

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 14 日現在

機関番号：32615

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2015

課題番号：24710003

研究課題名(和文)酸素と二酸化炭素比観測、モデル、逆推定法を用いた東アジアの使用化石燃料分布推定

研究課題名(英文) Estimation of fossil fuel mixes used in East Asia by O₂/CO₂ ratio observations, model simulations and inversion analysis.

研究代表者

峰島 知芳 (MINEJIMA, Chika)

国際基督教大学・教養学部・准教授

研究者番号：20550198

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：大気中で観測されるO₂/CO₂変動比の観測値と、大気輸送モデルを用いて、東アジアに於ける使用化石燃料の推定を行った。風下で大気を観測することにより、発生源に於ける使用化石燃料について推測することが出来る。後方粒子拡散型の大気輸送モデル、逆推定法を組み合わせることにより、経済発展を続ける大国の風下で、観測と共に発生源の位置・量を正確に推定することを試みた。シミュレーションは、濃度については観測値を非常に正確に再現したが、O₂/CO₂比の再現性は高くなかった。2つ以上の物質の比が大気輸送モデル、発生源分布の精度の鋭敏な指標になることがわかった。また、波照間島におけるメタンの逆推定を試みた。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to estimate the amount and the kind of fossil fuels used on the continent upper wind of Japan. In order to do that, atmospheric observations of O₂, CO₂, and its variations O₂/CO₂ were used. Atmospheric transport model, FLEXPART, was used to identify the sources of the air plumes observed at the observation point, Hateruma Island, Okinawa. By monitoring the air plume coming from the continent, it is possible to deduce the most likely fossil fuel mix being used at the emission sources and its amount. The model simulation well reproduced the observed concentration changes of CO₂ and O₂ separately. O₂/CO₂, however, was not reproduced as well. It is suggested that the ratios of two chemical species are much more sensitive indicators of accuracy of atmospheric transport models and emission distributions. Estimation of emission distribution of methane (CH₄) in East Asia was tried by combining the observation, FLEXPART and the inversion calculation.

研究分野：大気化学・環境動態

キーワード：大気動態 酸素 モニタリング 大気輸送モデル ソースレセプター解析 二酸化炭素 FLEXPART 粒子拡散モデル

1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、大気中の二酸化炭素 (CO_2) 濃度の上昇が問題になっている。特に、東アジア地域、特に中国では化石燃料燃焼による CO_2 排出量が急激に増加している。しかし、中国の排出量見積り不確実性は 15~20% と依然として大きく、過去には中国国家統計に基づく排出が過小評価されているとして、大幅に上方修正された経緯がある (Gregg et al., 2008)。衛星からの大気観測結果等からの指摘 (Akimoto et al., 2006) だけでなく、さらに、沖縄県波照間島での CO_2 濃度の短期変動の上昇傾向からも、排出量の上方修正の妥当性が確認された (Tohjima et al., 2010)。このように、発生源近傍や風下における大気観測は、発生量の変化を追跡する為非常に有力であることが示されている。

(2) 化石燃料を燃焼する際、 CO_2 を発生するのに伴って、酸素 (O_2) が消費される。その為、大気中の CO_2 は増加し、 O_2 は減少する。大気中に O_2 は元来 20% 程度存在する為、燃焼によってわずかに減少する O_2 の濃度を精確に計測するのは、非常に困難であった。しかし、最近になって高精度・高時間分解能の連続測定が実施されるようになったので、本研究で初めてこの手法を実際に試みることができる。

(3) 化石燃料由来の O_2 とラグランジュ型粒子拡散モデルに注目して研究を行っているグループは、我々の他にはドイツのマックスプランク研究所の Gerbig 教授のグループのみで、彼らは、ヨーロッパの国々の使用燃料割合の違いに着目している。従って、 O_2 とラグランジュ型拡散モデルを用いて、東アジアの使用燃料割合について研究を行うのは、非常に新奇性が高く、必須であった。

(4) これまで、化石燃料の種類別組成についてはボトムアップ的な推定に頼るしか方法がなかった。しかし、それは非常に大きな誤差を含む。近年、トップダウン的な手法が発達してきたことにより、平均的な O_2/CO_2 を決定し、比較によって種類別組成の妥当性を検証することは非常に有効な方法として現実となっている。

2. 研究の目的

(1) 大気中で観測される O_2/CO_2 変動比の観測値と、大気輸送モデルを用いて、東アジアに於ける使用化石燃料の推定を行うことである。化石燃料燃焼の際、 CO_2 の発生に伴い O_2 が使用され、大気中濃度の減少が観測される。 O_2 の減少は、石炭や天然ガスなど、使用化石燃料の化学組成により異なる。風下で大気を観測することにより、発生源に於ける使用化

石燃料について推測することが出来る。後方粒子拡散型の大気輸送モデル、逆推定法を組み合わせることで、経済発展を続ける大国の風下で、観測と共に発生源の位置・量を正確に推定する試みであるが、他の物質への応用も目指す。

3. 研究の方法

(1) 東アジアに注目し、使用化石燃料種分布、使用化石燃料種ごとの O_2/CO_2 比を調べた。そのデータを基に、 O_2 フラックス分布、 O_2/CO_2 比分布を作成した。また、既存のフラックスと FLEXPART モデルにより計算される空気塊の起源分布を用いて波照間島に於ける O_2/CO_2 比をシミュレートし、観測される O_2/CO_2 比と比較した。

(2) 作成された O_2 フラックスを基に、波照間島に於ける O_2 濃度、 O_2/CO_2 比を再現し、観測値と比べることにより、モデル再現性が高く、または、低くなる条件について詳細に解析した。モデル再現性は、フラックス分布と大気輸送それぞれの正確さに依存するため、それらについて評価することが可能になると考えられる。

(3) 国立環境研究所では、 CO_2 や酸素だけでなく、 CO 、 CH_4 、 N_2O 、 H_2 等の連続観測を行っている。国立環境研究所の持つ観測結果と、大気輸送モデルを用いて、さらに、観測に整合するようにフラックスを補正する逆推定法を用いて、メタン (CH_4) のフラックス分布図の検証を行った。

4. 研究成果

(1) 東アジア地域の使用燃料内訳のデータを収集した。次に、燃焼に伴う O_2 と CO_2 の交換比が、燃料の化学組成により異なるため、東アジア地域、特に中国の CO_2 、 O_2 発生量分布図を省ごとの使用燃料種内訳より作成した (図 1)。

(2) また、全球大気輸送モデル、FLEXPART、結合モデルを用いて、波照間島における CO_2 、 O_2 濃度を計算し (図 2)、 O_2/CO_2 比を再現するか検討した (図 3)。比較には、2006 年 10 月~2008 年 12 月までのデータを用いた。結果として、 CO_2 濃度、 O_2 濃度の再現性は非常に高かったが、 O_2/CO_2 比の再現性は低かった。そこで、モデルの再現性の低くなる条件について詳細に解析した。

後方流跡線解析 (METEX) を用いて、空気塊が複数の国を通過している場合、空気塊が滞り付近を逡巡しており、移動速度が遅い場合には再現性が悪くなると考え、それらを除いて解析を行った。その場合には、 O_2/CO_2 比の

再現性は大幅に改善した。 O_2/CO_2 比を比較したことにより、大気輸送モデルの精度、発生源分布を評価する際には、単一の化学物質ではなく、化学物質の変化量の比が遥かに鋭敏な指標となることが分かった。

また、鉛直混合スキームの異なる FLEXPART モデルを用いて、シミュレーションを行い、比較を行った結果、鉛直混合スキームの違いは O_2/CO_2 変動比の計算結果に大きな影響を与えていないことがわかった。FLEXPART モデルが観測結果をよりよく再現できる条件を解明する為、空間分解能の高い気象場を導入した。計算結果について解析中である。

(3) CH_4 濃度の観測結果を用いて、逆推定法を試みた。逆推定法とは、モデルシミュレーションと観測値の差が最少になるような発生源分布を推定する方法である。波照間島に於ける CH_4 の観測値と FLEXPART モデル、オイラー型大気輸送モデルによるシミュレーション結果を比較した。データ同化の方法としては最小二乗法を用いた。その際、評価関数は、観測濃度と計算濃度との差だけでなく、データ同化後の排出量分布が現実からかけ離れた排出量分布にならないように、既存の排出量分布との差を合わせて考慮した。2007年1月1日～15日のデータを用いてデータ同化を行い、2007年1月16日～31日について排出量分布と微小空気塊の軌跡を用いて計算した濃度と、観測濃度とを相関係数、分散比で比較して検証した。図4に、2007年1月の CH_4 観測濃度と、データ同化前後のモデル計算濃度を示した。図より、データ同化を行うことによって、より観測値に近い濃度が推定されていることがわかる。データ同化前後の排出量分布を用いて計算した CH_4 濃度と観測濃度の相関係数と分散比を比較すると、データ同化によって相関係数が 0.029、分散比が 0.067 向上しており、推定を改善できていることが検証された。今後、データ同化により得られた排出量分布の確からしさをより詳細に、また別の角度から評価していく必要がある。

(4) インドネシアの Bukit Kototabang Station において観測された、一酸化炭素 (CO) 濃度についても、FLEXPART を用いて、シミュレーションを試みた。その結果、観測値の方が CO_2 濃度が平均して高く、観測値とモデルシミュレーションの解離は大きかった。この地域の空気塊の輸送、また、バイオマス燃焼による CO の発生量についてより正確に推定することが、モデルシミュレーションの結果を大きく向上させる結果に繋がると推測される。

(5) 2012年に、Linらのグループにより、粒子拡散モデルの一つである STILT(Stochastic Time-Inverted

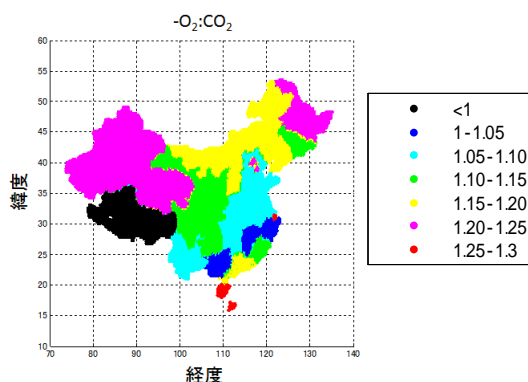


図1 中国の各省毎の、 CO_2 発生量と、消費される O_2 量の比 (化石燃料 (石炭、石油、天然ガス) 使用量とセメント製造量を考慮)

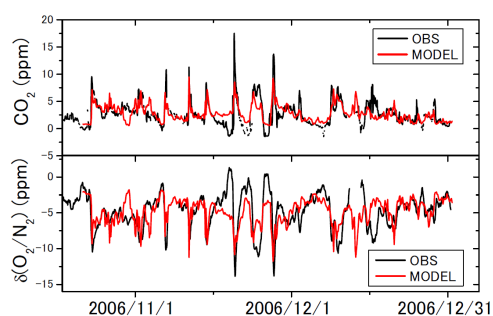


図2 観測された(a) CO_2 の濃度変動と(b) O_2/N_2 の比較。

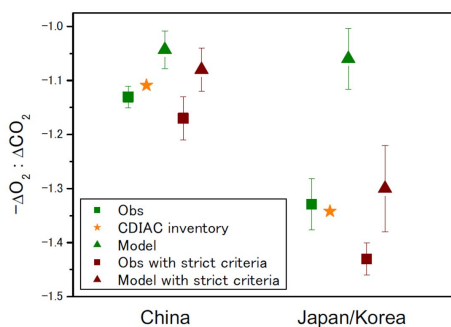


図3 中国から飛来した空気塊と日本/韓国を通過した空気塊の O_2/CO_2 の観測値とモデルシミュレーションの比較

Lagrangian Transport model)を用いて、反応性の高い化学物質 (NO_x , O_3 等) について濃度を再現する為のモデルシミュレーションが初めて試みられた (Wen et al., 2012)。このことを受け、FLEXPART を用いた NO_x 濃度の再現を目指して、 NO_x の計測を開始した。

参考文献

Akimoto et al., Verification of energy consumption in China during 1996-2003 by using satellite

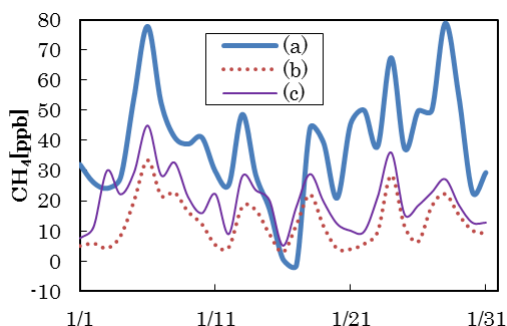


図4 波照間島におけるCH₄濃度変動
(a)観測値、(b)データ同化前の排出量分布を用いた計算値、(c)データ同化後の排出量分布を用いた計算値

observational data, *Atmos. Environ.*, 40, 7663-7667, 2006.

Gregg et al., China: Emissions pattern of the world leader in CO₂ emissions from fossil fuel consumption and cement production, *Geo. Phys. Lett.*, 35, L08806, doi:10.1029/2007GL032887, 2008.

Tohjima et al., Increasing synoptic scale variability in atmospheric CO₂ at Hateruma Island associated with increasing East-Asian emissions, 10, 453-462, 2010.

Wen et al., A backward-time stochastic Lagrangian air quality model., *Atmospheric Environment*, 54, 373-386, 2012.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

峰島 知芳, 中根 令以, 島田 幸治郎, 利谷 翔平, 佐藤 啓市, 大山 正幸, 寺田 昭彦, 細見 正明, "水田土壌からの亜硝酸ガス (HONO) 直接発生フラックスの測定および大気濃度への寄与評価", *大気環境学会誌*, 50(6), 259-256, 2015. 【In English】 Chika Minejima, Ray Nakane, Kojiro Shimada, Shohei Riya, Keiichi Sato, Masayuki Ohyama, Akihiko Terada, Masaaki Hosomi, Measurements of Nitrous Acid (HONO) Direct Emission from Rice Paddy Soil and Its Contribution to Atmospheric HONO Concentration, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 50(6), 269-256, 2015.

Yasunori Tohjima, Megumi Kubo, Chika Minejima, Hitoshi Mukai, Hiroshi Tanimoto, Alexander Ganshin, Shamil Maksyutov, Kenichi Katsumata, Toshinobu Machida, and Kazuyuki Kita, Temporal changes in the emissions of CH₄ and CO from China estimated from CH₄ / CO₂ and CO / CO₂ correlations observed at Hateruma Island, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1663 - 1677, 2014, www.atmos-chem-phys.net/14/1663/2014/, doi:10.5194/acp-14-1663-2014.

〔学会発表〕(計6件)

峰島 知芳, 中根 令以, 島田 幸治郎, 利谷 翔平, 佐藤 啓市, 大山 正幸, 寺田 昭彦, 細見 正明, 水田土壌からの亜硝酸の直接発生フラックスの測定, 第56回大気環境学会年会, 2015/9/15-17, 早稲田大学 西早稲田大学(東京都・新宿区)

Chika Minejima, Yasunori Tohjima, Megumi Kubo, Hitoshi Mukai, Hiroaki Yamagishi, Kazuyuki Kita, Yuji Koyama, Shamil Maksyutov, Ray Nakane, Kojiro Shimada, Shohei Riya, Keiichi Sato, Masayuki Ohyama, Masaaki Hosomi, Guessing the fossil fuel mix used at emission sources at a downwind location, Fourteenth Japanese-American Frontiers of Science Symposium, 2014/12/4-8, Hotel New Ohtani(Chiyodaku Tokyo)

Yasunori Tohjima, Hiroaki Yamagishi, Hitoshi Mukai, Toshiaki Machida, and Chika Minejima, Analysis of Inter-Annual Variations in Seasonal Cycle of APO at Cape Ochi-ishi, Third International Symposium on the Arctic Research, 2013/1/14-17, Miraikan, National Museum of Emerging Science and Innovation(Koto-ku, Tokyo)

Chika Minejima, Megumi Kubo, Yasunori Tohjima, Hiroaki Yamagishi, Yuji Koyama, Alexander Ganshin, Kazuyuki Kita, Hitoshi Mukai and Shamil Maksyutov, Comparison of -O₂/CO₂ changing ratio in pollution events observed at Hateruma with those based on emission inventories and model simulations using FLEXPART 3 and FLEXPART 8, International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health, 2012/11/29-12/1, Tokyo University of Agriculture and Technology(Koganei-shi, Tokyo)

遠嶋 康德, 久保 恵美, 峰島 知芳, 向井 人史, 谷本 浩志, 勝又 啓一, 町田 敏伸, 北

和之, Alexander Ganshin, Shamil Maksyutov, 福岡 波照間における CO/CO₂ 変動比から推定される中国起源 CO 放出量の経年変化, 第 18 回大気化学討論会, 2012/11/6-8, ホテル パーレンス 小野屋 (福岡県・朝倉市)

遠嶋 康德, 久保 恵美, 峰島 知芳, 向井 人史, 谷本 浩志, 北 和之, Alexander Ganshin, Shamil Maksyutov, 波照間で観測される CO₂, CH₄, CO の相関関係から推定される東アジアからの発生量の経年変化, 2012 年度 地球化学会年会, 2012/9/11-9/13, 九州大学箱崎キャンパス文系地区 (福岡県・福岡市)

[その他]

ホームページ等

<http://researchers.icu.ac.jp/Profiles/101/0010061/profile.html>

アウトリーチ活動情報
講演

国際基督教大学 一般教養科目「自然の化学的基礎 (Chemical Basis of Nature)」, 招待講演, 『Atmospheric Chemistry』 『Ocean Acidification due to Increased CO₂ emission』, 2016 年 1 月 27 日, 29 日, 2 月 15 日, 17 日

横浜市立大学 招待講演, 『大気汚染物質の発生・輸送・除去に関する研究 ~ 窒素酸化物の insitu 観測から温室効果気体の大気輸送モデル解析まで ~』, 2015 年 7 月 24 日

国際基督教大学 一般教養科目「自然の化学的基礎 (Chemical Basis of Nature)」, 招待講演, 『Atmospheric Chemistry』, 2015 年 6 月 5 日

国際基督教大学 一般教養科目「環境研究 (Environmental Studies)」, 招待講演 『Atmospheric Chemistry』, 2015 年 6 月 1 日

茗溪学園中学校 中学一年生 帰国生クラスモデル授業, 『目に見えない物質を追跡 - 大気汚染の化学 - 1. 東アジアからやってきた大気汚染物質からわかること 2. NO_x を追って』 (英語で), 2014 年 11 月 14 日

国際基督教大学 オープンキャンパス, 『目に見えない物質を追跡 - 大気汚染の化学 -』, 2014 年 8 月 16 日 2 回

国際基督教大学 Natural Sciences Forum, 『Chasing the fate of atmospheric

nitrogen oxides』, 2013 年 6 月 19 日

国際基督教大学 一般教養科目「自然の化学的基礎 (Chemical Basis of Nature)」, 招待講演, 『Atmospheric Chemistry』, 2014 年 5 月 23 日

FM 多摩データワークショップ, 『多摩丘陵における亜硝酸の観測』, 2012 年 12 月 20 日

US EPA Associate Director for Science Dr. Subhas K. Sikdar 招待セミナー, 『Where is HONO from?』, 2012 年 12 月 7 日

名古屋大学 地球惑星大気科学講究, 『大気汚染物質の発生・輸送・除去に関する研究 ~ 窒素酸化物の insitu 観測から温室効果気体の大気輸送モデル解析まで ~』, 2012 年 6 月 28 日

東京農工大学 平成 23 年度女性未来育成機構・研究報告会, 『東アジアの大気汚染物質および温室効果ガスの発生源と輸送に関する研究』, 2012 年 5 月 23 日

第 1 回カガクシャ・ネット総会兼公開イベント, 理系グローバルリーダーへの道しるべ, パネルディスカッションに於けるパネリスト, 2012 年 7 月 22 日 (<http://www.kagakusha.net/conferenc>)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

峰島 知芳 (MINEJIMA, Chika)

国際基督教大学・教養学部・自然科学デパートメント・准教授

研究者番号: 20550198