

令和元年6月13日現在

機関番号：14602

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04051

研究課題名（和文）アジアのオゾン汚染の実態把握と越境汚染の影響評価：衛星観測と化学輸送モデルの比較

研究課題名（英文）Evaluation of air pollution over Asia and effects of transboundary pollution: Comparison of satellite measurements and ACTM simulations

研究代表者

林田 佐智子（Hayashida, Sachiko）

奈良女子大学・自然科学系・教授

研究者番号：70180982

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,400,000円

研究成果の概要（和文）：申請代表者らはAura衛星搭載のOMIセンサーから、中国上空における対流圏下層オゾンの時空間変化を示すことに成功した(Hayashida et al., 2015)。本研究では、過大評価されている可能性のあるデータを取り除く手法を開発し(Hayashida et al., 2018a)、スクリーニングを行った後の中国上空における下層オゾンの季節変動シグナルから、華北平原や四川盆地で強いオゾン汚染が繰り返し発生していることを示した(Hayashida et al., 2018b)。領域化学モデルとの比較により、前駆物質放出量の削減効果による地上オゾン濃度変化を有意に検出可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

中国の大気汚染は極めて深刻であり、住民への健康影響も甚大であると認識されている。中国の風下に位置する日本へも、大気汚染物質が越境して流入することが懸念されており、中国の大気汚染は日本国民の健康にも影響を及ぼしうる重大な問題であり、中国・韓国との環境大臣会合などで取り上げられて来た環境問題でもある。過去20年の間に、衛星からの大気汚染物質監視が飛躍的に進んだにも関わらず、オゾンは成層圏に90%が存在するため、対流圏下層のオゾンを衛星観測から導出することは極めて困難であるとされてきた。そのような困難を克服した本研究の意義は大きく、学術的意義のみならず、社会的にも大きなインパクトがあると考えられる。

研究成果の概要（英文）：We analyzed the ozone profile product (PROFOZ) derived from Ozone Monitoring Instrument (OMI) ultraviolet spectra to reveal spatial and temporal variations in lower tropospheric ozone distributions over China (Hayashida et al., 2015). In this JSPS study, we developed a scheme to eliminate the artificial effect of ozone variability near the tropopause on the lower tropospheric ozone retrieval (Hayashida et al., 2018a). After applying the developed screening scheme, we tracked the ozone enhancement under polluted conditions by using a cluster analysis. We distinguished the areas in which outstanding ozone enhancement with clear seasonality over the North China Plain and Sichuan basin (Hayashida et al., 2018b). Comparison with simulations by the regional atmospheric chemical transport model developed in Meteorological Research Institute (MRI) proved the possibility of ozone-change detection expected from reduction of ozone precursors according to environmental policies.

研究分野：大気科学

キーワード：対流圏オゾン 衛星観測 大気汚染 OMI 中国 リトリーバル 領域化学輸送モデル

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

(1) アジアの発展途上国においては、近年の産業活動の飛躍的進展により、大量の汚染物質を大気中に排出している。特に中国における大気汚染が深刻であることはよく知られている。大気中に放出される汚染物質の多くは対流圏においてオゾン前駆物質として働き、光化学反応によって大気中オゾンを増加させる。高濃度オゾンの発生によって、人間への健康被害や農作物への被害が引き起こされる。日本では最近になって光化学スモッグが頻発しており、この原因として中国からの越境汚染の可能性が指摘されている。これまで様々なシミュレーションによって研究がされてきたが、観測データが欠如しているために、モデルシミュレーション結果の妥当性を検証できなかった。

(2) 過去 20 年の間に人工衛星からの対流圏微量成分の観測的研究は大きな飛躍を遂げた。しかし、オゾンは成層圏に 90%が存在するため、大気下層のオゾンを衛星で観測することは極めて困難であるとされてきた。これに対し申請代表者らは、EOS Aura 衛星に搭載された OMI(Ozone Monitoring Instrument)センサーから導出された対流圏下層のオゾンデータを分析し、中国上空における下層大気中のオゾンの時空間変化を世界で初めてマップとして示すことに成功した。このデータを活用して中国上空のオゾンの動態を解明することが期待される。

2. 研究の目的

本研究計画の目的は、中国中東部におけるオゾンの増加現象の実態を把握し、その時空間分布の特徴を把握すること、さらにそのメカニズムを明らかにすることである。併せて農業残渣焼却によって放出される大気汚染物質がオゾン濃度に与える影響についても精査する。

3. 研究の方法

(1) OMI で観測されたデータを Hayashida et al. (2015)の方法と同様に解析し、中国上空のオゾンの挙動を明らかにする。解析対象とするのは Liu et al. (2010)で OMI から導出された 0 から 60 km の高度範囲を 24 層に分割してリトリーバルされたオゾンプロファイル(PROFOZ)である。比較解析として、二酸化窒素(NO_2)については OMI から導出されたプロダクト L3 (OMNO2d)を、一酸化炭素(CO)については EOS Terra 衛星搭載の MOPITT (Measurement of Pollution in the Troposphere)で観測されたプロダクト L3 version 6 を用いる。また、火災検知については、MODIS(MODERate resolution Imaging Spectroradiometer)の結果を用いる。

(2) 観測結果を大気化学輸送モデルシミュレーション結果と比較する。モデルシミュレーションには気象研究所で開発された化学気候モデル MRI-CCM2 (Deushi and Shibata, 2011)を用いる。標準実験(CNTL)として、工業活動・自動車の排ガスなどの人為起源の発生源について最新のエミッションインベントリデータを含めた計算を行う。また、現地観測では地上オゾン濃度に対する冬小麦収穫後の野焼きの影響が強いことが知られている(Kanaya et al. 2013)。そこでさらに農業残渣焼却(Open Crop Residue Burning: OCRB) の影響を含めたエミッションについて、分担者の山地によって開発されたエミッションデータ(Yamaji et al., 2010)を加えて感度実験を行う。これによって、OCRB のオゾンへの影響を定量的に評価する。

(3) さらに、気象研究所で開発されたアジア領域モデル NHM-Chem のシミュレーション結果との比較を行う。全球モデルと比較して高分解能のシミュレーションを行うことで、OMI や将来予定されているセンサーから期待されるオゾン変動検出の可能性について検討する。

4. 研究成果

(1) UT/LS 効果のスクリーニング手法の開発とスクリーニングの実施

OMI から導出されたオゾンプロファイルプロダクト(PROFOZ)を詳細に検討した結果、リトリーバル手法の鉛直平滑化誤差が大きく、上部対流圏/下部成層圏(UT/LS)のオゾン変動による影響が下方に伝播している可能性が明らかになった。この効果によって、最下層のオゾン濃度が見かけ上大きく見える(過大評価)。以下、この効果を UT/LS 効果と記すことにする。この見かけ上の誤差を取り除くために、独自のスクリーニング手法を開発した。

まず、解析対象期間(2006年6月)を対象に、全球化学輸送モデル MRI-CCM2 を用いてモデルシミュレーションを行い、モデルで再現されたオゾンプロファイルを「真のオゾン値」とみなして、最下層である第 24 層(0-3km に対応)のオゾン層に与える各高度層からの影響を評価した。i 番目の高度層が第 24 層に与える影響は式(1)で評価できる。

図 1 の上段において、灰色で示されているのはアприオリのオゾンプロファイル(オゾン気候値)、赤で示されているのはモデルで再現されたオゾンプロファイルのアприオリからの偏差である。下段には、第 24 層のオゾンを決めている式(1)の第 2 項が示されている。例えば、6月15日から20日前後では、第 24 層に現れているオゾン増大は、確かに下部対流圏におけるオゾン増大の結果であることが示されている。一方、6月10日前後の事例では、圏界面付近から第 24 層へ影響するオゾン量が大きくなっており、第 24 層のオゾンは、実際には圏界面付近のオゾン量で左右されていることがわかる。従って、この場合、第 24 層におけるオゾン量の増大は、下層での実際のオゾン増大を示しているわけではなく、上層の変化が伝播した見かけ上のものである。このようなケースを式(2)の判定条件を用いて選び出し、該当する観測イベントを全て OMI のデータセットから取り除いた。このように、過大評価された危険性のあるイベントを全てスクリーニングした後でも、中国中東部上の下部対流圏オゾン増大現象を明瞭に示

すことができた(図2:左端図)。このように、「中国中東部で毎年6月にオゾンが高濃度になる」という Hayashida et al. (2015)の報告の妥当性を確認することができた。

(2) 中国中東部におけるオゾン増加現象と OCRB の影響の分析

(1)で述べたスクリーニング後、2006年6月の中国上空を対象として、さらにシミュレーション結果と OMI で得られたオゾン分布を比較した。シミュレーションでは、標準実験(CNTL)として、工業活動・自動車の排ガス等の人為起源の発生源を含めた計算を行った。さらに感度実験として、農業残渣焼却(OCRB) の影響を含めたエミッションについて、分担者の山地が開発したエミッションデータを加えてシミュレーションを行った。入力エミッション条件の詳細は表1の通りである。

シミュレーションされた最下層(第24層)のオゾン濃度を図2に示す。左端は OMI の観測結果、右の2つのパネルはそれぞれ標準実験と感度実験の結果である。観測と比較するためにリトリーバルで用いられたアベレージングカーネルをかけてコンボリューションを行なった結果を示している。標準実験のシミュレーションでは、6月のオゾン増大現象をよく再現できており、オゾン増加の原因は主として工業活動や車などの人工起源のエミッションと強い紫外線による光化学生成によるものと解釈できた。一方、図の中央と右のパネルを比較してわかる通り、感度実験における OCRB のオゾン濃度への影響はさほど顕著ではないことがわかった。これは鉛直方向の平滑化効果が大きく、OCRB による程度のオゾン増加は検出できないことを示している(Hayashida et al., 2018a)

(3) 上記(1)で得られたスクリーニング手法を、2005年から2013年の9年間に観測されたすべての OMI 観測データに適用し、最下層のオゾンデータの時系列を調べた。中国上空のオゾン濃度変動の季節変動パターンを、クラスター解析手法を用いて分類した結果、非常に明瞭な区分ができた。図3に4つのクラスターに分類した場合のクラスター分布を示したが、華北平原と四川盆地が同じクラスターに分類されている。4つのクラスターの季節変動パターンは図4に示した通りである。クラスター1では、6月に最大値をとる明瞭なオゾンの季節変動が示されている。また、クラスター1の地域は NO₂ の発生が多いと評価されている中国中東部(華北平原)および四川盆地と明瞭に一致した。MRI-CCM2 の計算結果とも比較したところ、オゾンが夏期に高濃度になる領域は、化学生成項が大きい領域とも一致した。また、中国東部の海岸付近では8月頃オゾン濃度が低くなることも明らかになったが、気象データとの比較から、この原因は、太平洋高気圧の発達に伴い清浄な海洋性気団が内陸に侵入しているためと解釈できる(Hayashida et al., 2018b)。

(4) オゾン変動の検出可能性について

アジア領域モデル NHM-Chem のシミュレーション結果を OMI のアベレージングカーネルをかけてスムージングし、どの程度のオゾン濃度の変動であれば、検出できるかについて検討した。その結果、「環境政策によって大気汚染物質の放出を緩和した場合に期待しうる程度のオゾン濃度変動を検出可能である」との結論を得た。この成果は2018年に国際学術誌に投稿したが、査読に時間がかかり、現在改稿中の段階である。

(5) 中国の農業残渣焼却の年々変動について

MODIS で観測される火災検知数を時系列で解析したところ、2016年から2017年の間で急激な減少がいくつかの省で観測された。この原因は中国政府の政策によるもので、多数の監視カメラや自警団の組織化によって、農民の活動が監視されるようになったことが原因と考えられる。OCRB で発生するエミッションの年々変化はインベントリとしてまとめており、国際会議で発表し、現在論文を準備中である。

引用文献

- ①Deushi M, Shibata K, Development of a Meteorological Research Institute Chemistry-Climate Model version 2 for the Study of Tropospheric and Stratospheric Chemistry. Papers in Meteorology and Geophysics 62:1-46, 2011.
- ②Granier C. et al., Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions of air pollutants at global and regional scales during the 1980–2010 period. Climatic Change 109 (1):163-190, 2011.
- ③Hayashida S, Liu X, Ono A, Yang K, Chance K, Observation of ozone enhancement in the lower troposphere over East Asia from a space-borne ultraviolet spectrometer. Atmospheric Chemistry and Physics 15 (17):9865-9881, 2015.
- ④Hayashida S, et al. 2018a (業績③に同じ) .
- ⑤Hayashida S, et al., 2018b (業績④に同じ) .
- ⑥Kanaya Y. et al., Overview of the Mount Tai Experiment (MTX2006) in central East China in June 2006: studies of significant regional air pollution. Atmospheric Chemistry and Physics 13 (16):8265-8283, 2013.
- ⑦Lamarque J. F. et al., Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: Methodology and application. Atmospheric Chemistry and Physics 10 (15):7017-7039, 2010.
- ⑧Liu X, Bhartia PK, Chance K, Spurr RJD, Kurosu TP, Ozone profile retrievals from the Ozone Monitoring Instrument. Atmospheric Chemistry and Physics 10 (5):2521-2537,

2010.

- ⑨ Yamaji, K. et al., Impact of open crop residual burning on air quality over Central Eastern China during the Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006), Atmos. Chem. Phys., 10, 7353-7368, 2010.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

- ① Kajino Mizuo, Deushi Makoto, Sekiyama Tsuyoshi Thomas, Oshima Naga, Yumimoto Keiya, Tanaka Taichu Yasumichi, et al., NHM-Chem, the Japan Meteorological Agency's Regional Meteorology-Chemistry Model: Model Evaluations toward the Consistent Predictions of the Chemical, Physical, and Optical Properties of Aerosols, Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II, 97, 337-374, 2019. (査読あり) doi:10.2151/jmsj.2019-020
- ② Taketani Fumikazu, Aita Maki N., Yamaji Kazuyo, Sekiya Takashi, Ikeda Kohei, Sasaoka Kosei, Hashioka Taketo, Honda Makio C., Matsumoto Kazuhiko, Kanaya Yugo, Seasonal Response of North Western Pacific Marine Ecosystems to Deposition of Atmospheric Inorganic Nitrogen Compounds from East Asia, Scientific Reports, 8-9324, 1-9, 2018. (査読あり) doi:10.1038/s41598-018-27523-w
- ③ Hayashida Sachiko, Kajino Mizuo, Deushi Makoto, Sekiyama Tsuyoshi Thomas, Liu Xiong, Seasonality of the lower tropospheric ozone over China observed by the Ozone Monitoring Instrument, Atmospheric Environment, 184, 244-253, 2018a. (査読あり) doi:10.1016/j.atmosenv.2018.04.014.
- ④ Hayashida Sachiko, Kayaba Satoko, Deushi Makoto, Yamaji Kazuyo, Ono Akiko, Kajino Mizuo, Sekiyama Tsuyoshi Thomas, Maki Takashi, Liu Xiong, Study of Lower Tropospheric Ozone over Central and Eastern China: Comparison of Satellite Observation with Model Simulation, Chapter 13 in Land-Atmospheric Research Applications in South and Southeast Asia, 255-275, 2018b. (査読あり) Print ISBN: 978-3-319-67473-5, Electronic ISBN: 978-3-319-67474-2.

〔学会発表〕(計 11 件)

- ① 梶野瑞王, 林田佐智子, 関山剛, 出牛真, 伊藤一輝, 衛星観測により対流圏下部オゾンに対する前駆物質排出量削減の効果は検出できるのか, 日本気象学会 2018 年度秋季大会, 仙台国際センター, 11/1, 2018 (口頭)
- ② 呂曉萍, 林田佐智子, 山地一代, 中国の農業残渣焼却が与える大気汚染への影響分析, 日本気象学会 2018 年度秋季大会, 仙台国際センター, 11/1, 2018 (ポスター)
- ③ 山口小雪, 林田佐智子, 那覇で観測された対流圏オゾンの増大現象について, 日本気象学会 2018 年度秋季大会, 仙台国際センター, 11/1, 2018 (ポスター)
- ④ Yamaji, K., X. Lu, S. Hayashida, Recent trend of atmospheric emissions due to open crop residue burning in the central east China, 2018 joint iCACGP Symposium and IGAC Science Conference, "Sunport Takamatsu" Convention Center, 9/26, 2018 [Poster]
- ⑤ 林田佐智子, 中国で観測されたオゾン時空間分布のクラスター解析, 第 23 回大気化学討論会, サポートホール高松, 10/2~4, 2017. (口頭)
- ⑥ Hayashida, S., M. Kajino, M. Deushi, T. Sekiyama, X. Liu, Clustering of seasonality of the lower tropospheric ozone over central China observed by Ozone Monitoring Instrument (OMI), The 2017 Joint IAPSO-IAMAS-IGA Assembly, Cape Town, South Africa, August 27 - September 1, 2017. [Poster]
- ⑦ Hayashida, S., M. Kajino, M. Deushi, T. Sekiyama, X. Liu, Enhancement of the lower tropospheric ozone over China: Comparison of Ozone Monitoring Instrument (OMI) and model simulations, The third ACAM workshop, China, June 5-9, 2017. [Oral]
- ⑧ Hayashida, S., M. Kajino, M. Deushi, T. Sekiyama, X. Liu, Outstanding seasonality of the lower tropospheric ozone over central China observed by Ozone Monitoring Instrument (OMI), JpGU-AGU joint 2017, Chiba, Japan, May 20-25, 2017. [Poster]
- ⑨ Hayashida, S., Comparison of OMI Observation with Model Simulations to Study Lower Tropospheric Ozone Enhancement Over Central and Eastern China, GEMS Science Meeting, Korea, 2016.10.11 [Oral]
- ⑩ 林田佐智子, 出牛真, 梶野瑞王, 山地一代, 関山剛, 眞木貴史, 東アジアにおける下部対流圏オゾンの衛星観測とモデルシミュレーションの比較, JpGU 2016, May, 22-26, 2016 (口頭)
- ⑪ 林田佐智子, 出牛真, 山地一代, 梶野瑞王, 関山剛, 眞木貴史, 中国中東部におけるオゾン増加: 衛星観測とモデルシミュレーションの比較, 日本気象学会 2016 年度春季大会, 国立オリンピック記念青少年総合センター, 5月18日~21日, 2016年 (口頭)

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：山地 一代

ローマ字氏名：Yamaji Kazuyo

所属研究機関名：神戸大学

部局名：海事科学研究科

職名：准教授

研究者番号 (8桁)：40399580

研究分担者氏名：関山 剛

ローマ字氏名：Sekiyama Tsuyoshi Thomas* (ミドルネーム)

所属研究機関名：気象庁気象研究所

部局名：環境・応用気象研究部

職名：主任研究官

研究者番号 (8桁)：90354498

研究分担者氏名：梶野 瑞王 ローマ字氏名：Kajino Mizuo

所属研究機関名：気象庁気象研究所 部局名：環境・応用気象研究部

職名：主任研究官 研究者番号 (8桁)：00447939

式と図表

$$\text{式 (1)} \quad X'_{24} = X_{a,24} + \sum_{i=1}^{24} A(i,24)[X_{m,i} - X_{a,i}]$$

第24層に与える他高度層からの寄与。iは高度層の番号、 $X_{m,i}$ はモデルで再現されたオゾン濃度(ドブソン単位 DU)、 $X_{a,i}$ はリトリバルで用いられているアприオリのオゾン濃度(DU)、 $A(i,24)$ は第24層導出に使われるアベレージングカーネルの第i層の値である。

$$\text{式 (2)} \quad \begin{aligned} &A(i,24)[X_{m,i} - X_{a,i}] > A(24,24)[X_{m,24} - X_{a,24}] \quad (i = 1, \dots, 21), \\ &\text{and} \\ &A(i,24)[X_{m,i} - X_{a,i}] > 0.5 \text{ DU} \end{aligned}$$

スクリーニングのための判定式。記号は式(1)と同じ。

Lat.34.205°N Lon.118.125°E

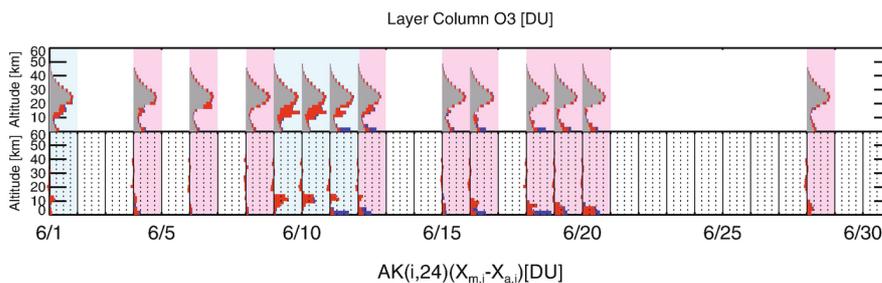


図1 (上段) 灰色：アприオリのオゾンプロファイル (オゾン気候値)、赤：MRI-CCM2で再現されたオゾンプロファイルのアприオリからの偏差である。(下段) 式(1)の第2項。赤：標準実験、青：感度実験に対応。

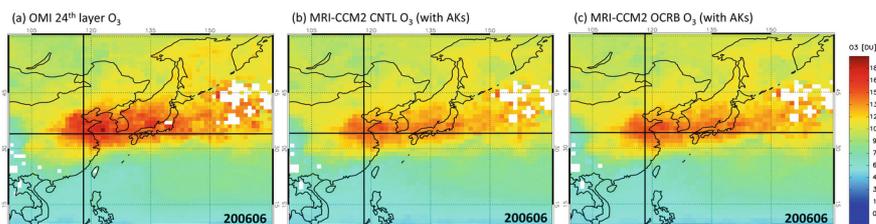


図2 (左端) シミュレーションされた最下層(第24層)のオゾン濃度。(中央) 標準実験で再現された最下層に対応するオゾン。(右端) 同様に感度実験の結果。

表 1. 標準実験(CNTL)および OCRB 感度実験に入力された条件

	Control run (CNTL)	Sensitivity study for open crop residue burning (OCRB)
Anthropogenic	MACCity (monthly)* (Lamarque et al. 2010; Garnier et al. 2011)	
Biomass burning	GFED ver.3 (monthly)*	GFED ver.3 + OCRB emission inventory developed by K. Yamaji

*Monthly values were divided by 30 to convert them to daily values for calculations.

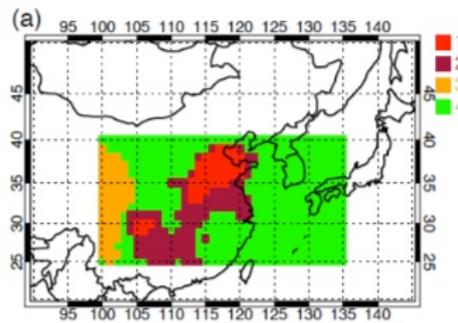


図 3 季節変動パターンを4つのクラスターに分類した場合のクラスター分布

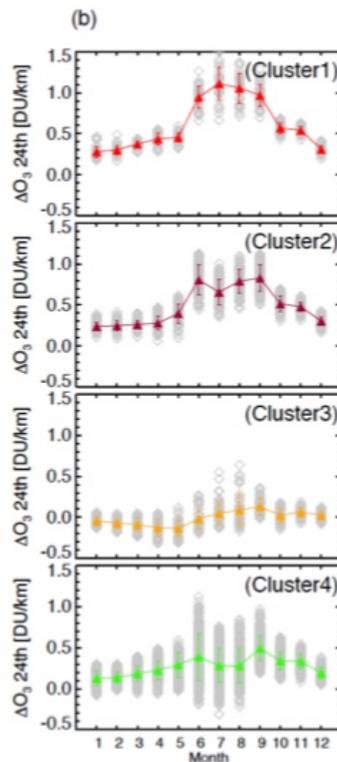


図 4 図 3 の 4 つのクラスターに対応するオゾン季節変動のパターン。色は図 3 に対応。縦軸は ΔO_3 (リトリバル値とアプリアリの差)。(詳細は Hayashida et al., 2018b を参照)