

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 20 日現在

機関番号：82109

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23310018

研究課題名(和文)対流圏オゾンライダーを用いた日本域における対流圏オゾンに関する研究

研究課題名(英文)Research on tropospheric ozone in Japan using ozone lidar

研究代表者

眞木 貴史(MAKI, Takashi)

気象庁気象研究所・環境・応用気象研究部・室長

研究者番号：50514973

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円、(間接経費) 4,230,000円

研究成果の概要(和文)：佐賀、つくばでライダーを用いた対流圏オゾン高頻度鉛直分布観測を実施した。ライダー観測結果をオゾンゾンデ、衛星との比較を行ったところ、これらの観測データとよい相関を示し、ライダーの精度を確認できた。また、全球化学輸送モデルとも定性的によく一致しており、本モデルを用いて日本付近の対流圏オゾン動態の解析を行えることが分かった。

モデルを用いた結果によると、主に1～6月に日本付近で対流圏高濃度オゾン現象が見られたが、成層圏と大陸からの輸送が主な原因と考えられる。また、領域化学輸送モデルについてもオフライン版が完成し、オンライン版についてもプロトタイプを作成して地上観測データとの比較でよい一致を示した。

研究成果の概要(英文)：We performed high-frequency observations of vertical ozone distribution in troposphere here using differential absorption lidar (DIAL) at Saga and Tsukuba. The validation of DIAL data against ozone sonde data showed that there are good correlations and we could confirm the accuracy of DIAL. The DIAL data have also good agreement with satellite data (GOSAT TANSO-FTS TIR data). In addition, we have good qualitative agreement against MRI-CCM2, we found it possible to analyze tropospheric ozone near Japan by using this model. According to the simulation results of MRI-CCM2, high concentration ozone phenomena in the troposphere around Japan were observed from mainly Jan. to Jun. We considered transport from the continent and the inflow from the stratosphere is the main cause. In addition, we could develop off-line version and also prototype of on-line regional chemical transport model (NHM-Chem). These models showed a good agreement in comparison with ground-based observation data.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：リモートセンシング 対流圏オゾン 大気質

### 1. 研究開始当初の背景

(1)近年日本付近で増加傾向が見られる対流圏オゾンは、強力な酸化作用で大気汚染物質の動態を左右するほか、光化学オキシダントの主要物質であると共に北半球では二酸化炭素に次ぐ温室効果気体である。

(2)一方、対流圏オゾンの実態把握はまだ不十分であり、対流圏中層におけるオゾンの数時間スケールの動態は観測的研究の空白域である。加えて、日本付近を主要なターゲットとした領域化学輸送モデルの開発もまだ端緒についたばかりである。

### 2. 研究の目的

(1)日本地域の大気化学的環境が悪化する中、最新の観測機器(オゾンライダー)を用いて対流圏全域のオゾン濃度を高度分解能120m、系統誤差数%以下で30分毎に高頻度連続観測を行い、日本域における対流圏オゾンの動態を監視する。

(2)全球に加え、領域化学輸送モデルを開発する。これらのモデルを用いて、対流圏高濃度オゾン現象の短時間予測のための技術基盤を世界に先駆けて確立し、これまで明かされてこなかった日本付近における対流圏オゾンの立体構造や動態を明らかにする。

### 3. 研究の方法

(1)差分吸収法ライダー(DIAL)2基(つくば、佐賀)を高度化し、精度確認を行う。DIALによる対流圏オゾンの観測を行い、データセットを作成する。更に、DIALによる対流圏オゾンデータと温室効果ガス観測技術衛星(GOSAT)、モデルデータとを比較しそれぞれの特徴を明らかにする。

(2)これらの観測データと全球・領域化学輸送モデルを用いて日本付近の対流圏オゾンの立体構造を連続的に監視・予測できる技術基盤を確立する。

### 4. 研究成果

(1)佐賀大学に移設したDIALの送信部・

受信部を高度化し調整を行った後、試験観測を開始した。3波長(276 nm, 287 nm, 299 nm)同時発振で各出力が7 mJ程度のレーザー、口径10 cmと50 cmの受信望遠鏡、光電子増倍管からなる検出部、AD変換法及び光子計数法が同時にできる信号処理部を備えたDIALにより取得された観測データの予備解析を行った結果、高度1~6 kmのオゾン濃度分布の観測が可能であることが分かった。

次に、DIALによる対流圏オゾンとオゾンゾンデ、GOSAT熱赤外(TIR)スペクトルから導出した下部対流圏オゾンカラム量および気象研究所の化学気候モデル(MRI-CCM2)と比較した。オゾンゾンデとの比較を図1に示す。それぞれの観測誤差範囲内で一致していることが分かった。

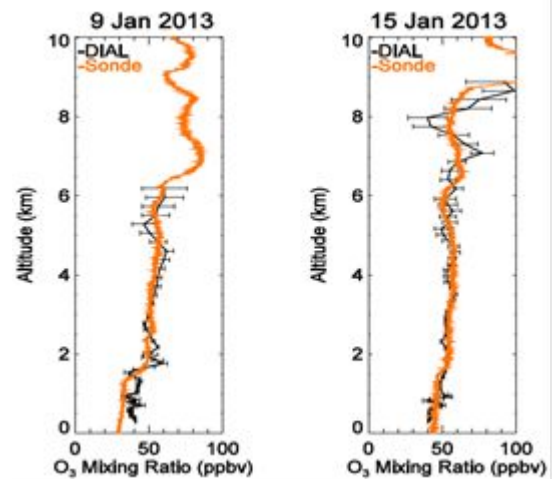


図1:DIALとオゾンゾンデの比較。黒色はDIAL、オレンジ色はオゾンゾンデによるオゾンプロファイルである。

DIALとGOSAT TIRの比較例を図2に示す。GOSAT TIRはAK(アベレーシングカーネル)を用いたDIALにより全体的に値は少し小さいが、季節変化や夏場の変動を良く捉えている。DIALとGOSAT TIRの高度1~6 kmのオゾンカラム量は良い相関を示し、相関係数は0.79であった。GOSAT TIRはDIALに対してバイアスが-10%、バラツキは11%程度であった。

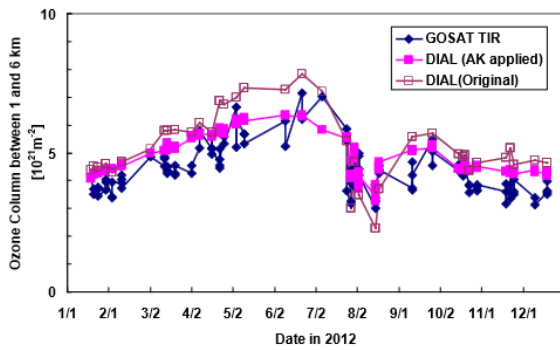


図 2: DIAL と GOSAT TIR による対流圏オゾンカラム量の比較。青色は GOSAT TIR、ピンク色は AK を適用した DIAL による対流圏オゾンカラム量である。

MRI-CCM2 と DIAL との比較を図 3 に示す。MRI-CCM2 の予測値も DIAL とほぼ一致しているが、4~5 月の高度 2 km 付近の高濃度オゾン層や 7 月中旬~8 月のオゾン濃度の大きな変動をうまく再現できない場合がある。MRI-CCM2 はオゾン前駆物質の排出量を固定していること、水平分解能 (x~110km) が粗いことなどが要因として考えられる。

排出量変動 (バイオマス燃焼等) の考慮や高水平分解能の領域モデル (NHM-Chem) 導入により改善が期待される。

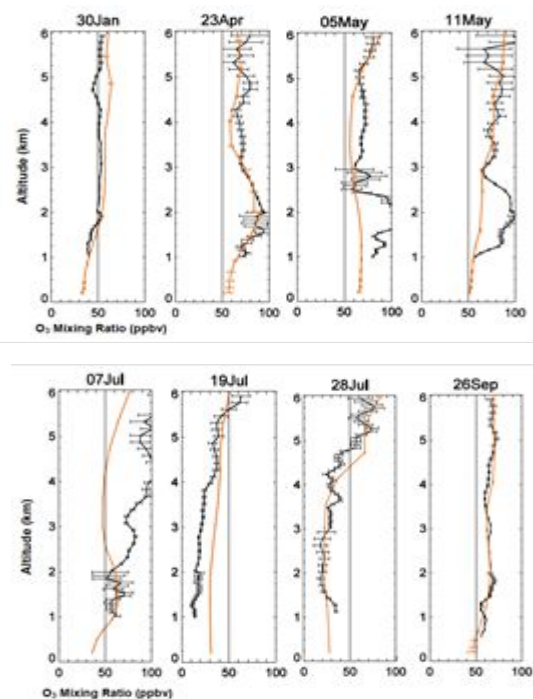


図 3: DIAL と MRI-CCM2 によるオゾンプロファイルの 2012 年での比較。黒色は DIAL、オレンジ色は MRI-CCM2 である。

(2) 気象研究所に設置したライダーに関しては、平成 23 年度にライダー装置の送信光学系の一部変更や安定化を計るなどの改良を行い、送信用レーザーの消耗部品の交換、光学調整等を行ってライダー装置を高頻度観測に適した状態に整備した。平成 24 年度には、レーザー装置に発生した不具合に対処しつつ、観測を行った。平成 25 年度にも送信系に別の不具合が発生したが、不具合に対処しつつ観測を続けた。

ライダー、オゾンゾンデ、数値モデル 3 者の比較を行った例を図 4 に示す。3 者は良く一致する場合もあれば、条件により差が出てくることもあるが、ライダーとゾンデに関しては条件を整えば一致することから、装置の基本的な検証は行えたと考えている。

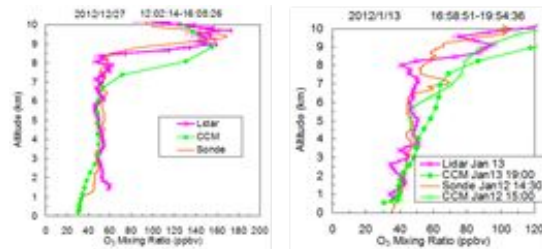


図 4: オゾン鉛直分布の比較。ライダー、ゾンデ、モデルが良く一致した例 (左) 及び、高度により若干違いが見られる例 (右)。

また、鉛直分布の連続観測結果を比較した例を図 5 に示す。この例では、ライダーで観測された高濃度オゾンがモデルでは再現できておらず、モデルに改良の余地が残っていることが分かる。

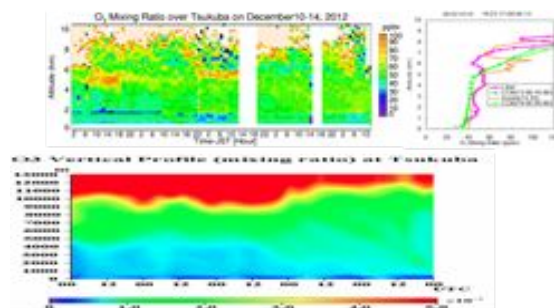


図 5: ライダーとモデルの比較。成層圏から貫入してきた高濃度オゾン (4~6km 付近) がモデルでは再現されていない。

(3)MRI-CCM2 を毎日運用して関係者にオゾンの予測結果を提供すると共に、同モデルを用いて日本付近における対流圏オゾンの振る舞いをシミュレートした。モデルの解像度はTL159(水平約 110km)L48 とした。実験条件としては東アジアにおけるオゾン前駆物質等の排出データとして国立環境研究所が公開した排出量インベントリ (REAS V1.11) 等を用いた。また、気象データとして気象庁が実施した長期再解析 (JRA-55) を用いた。佐賀とつくばにおける輸送によるオゾン変化量鉛直分布を図 6 に示す。図 6 を見ると、主に春季において大気上層からオゾンが流入するイベントが起きていることが分かる。

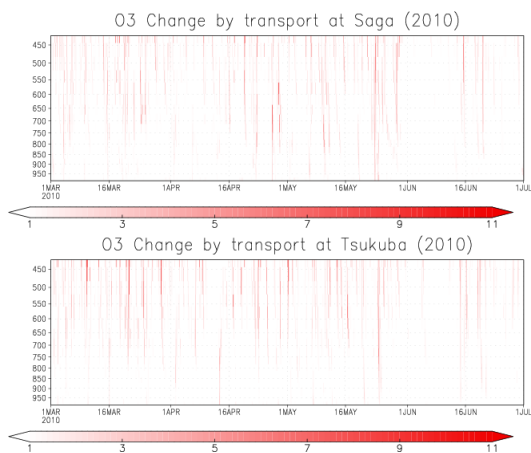


図 6: 2010 年前半の MRI-CCM2 による佐賀 (上) とつくば (下) における輸送に起因するオゾン変化量 (ppb/sec)

これは佐賀よりもつくばにおいて顕著である (図省略)。オゾン濃度の水平マップ等から検討すると、この成層圏からの流入は主に上空の低気圧の東進に伴って生起しており、圏界面の折りたたみ (tropopause folding) と見られる。また、佐賀においてよくみられる大気上層からの流入が見られない対流圏下部によるオゾン変化量が正の領域は主に大陸からの流入によるものと考えられる。このように、今回ライダー観測を行った 2 地点は緯度的には大きく違わ

ないものの、異なったオゾン流入現象を把握しやすい地点であると考えられ、今後の観測データの蓄積により日本域による対流圏オゾン把握に有効と考えられる。

領域化学輸送モデル (NHM-Chem) に関しては、気象庁領域気象モデル (NHM) から一定時間間隔の気象データを受取り、このファイルを用いてモデルを駆動するオフライン版と NHM 自体に化学計算モジュールを組み込み、NHM の様々なパラメータを内挿することなく利用できるオンライン版の開発を行った。前者は概ね完成し、気象庁での大気汚染気象業務での運用を目指して検証作業を行っている。後者についてもプロトタイプ版が完成しており、この両者と観測データを用いた比較検証を行った (図 7)。

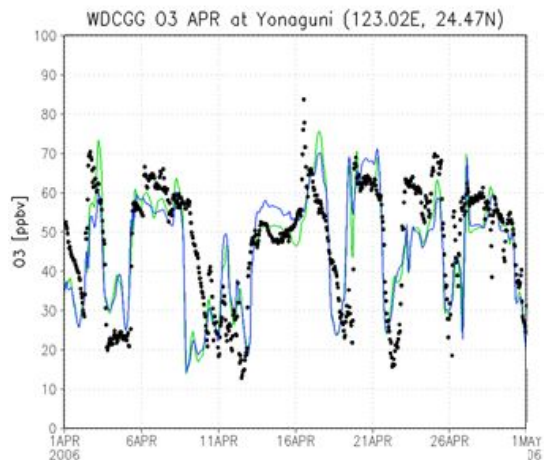


図 7: 与那国島における地上オゾン濃度 (単位 ppb)。黒点が観測値を、緑線がオフライン版の、青線がオンライン版の化学輸送モデルの計算結果を示す。

図 7 を見ると、オフライン版、オンライン版共に観測データに見られる数日程度の変化 (総観規模) をよくシミュレートできていることが分かる。若干ピークの位相がずれていたり、観測に見られる高濃度オゾン表現し切れていない例も見受けられるが、用いた放出源データ (全球モデルと同様) の不確かさに起因するものとみられる。

このように、MRI-CCM2 と NHM-Chem を組み合わせることによって、日本付近における対流圏オゾン精度よく再現できることが示された。今後は、これらのモデルをさらに改善し、今回観測を行ったライダー観測データ等と動的に組み合わせる（データ同化）ことによって、日本付近のオゾン動態をより解明するための基盤を構築することができると考えられる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

##### [雑誌論文](計8件)

O. Uchino, T. Sakai, T. Nagai, et al., DIAL measurement of lower tropospheric ozone over Saga (33.24° N, 130.29° E), Japan, and comparison with a chemistry-climate model, *Atmospheric Measurement Techniques*, 査読あり、, 2014, 7, 1385-1394.

doi: 10.5194/amtd-7-171-2014, 2014.

Sahu, L. K., V. Sheel, M. Kajino, et al., Seasonal and interannual variability of tropospheric ozone over an urban site in India: A study based on MOZAIC and CCM vertical profiles over Hyderabad, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 査読あり、, 2014, 119, 3615-3641, doi:10.1002/2013JD021215.

K. Arai, Method for estimation of aerosol parameters based on ground based atmospheric polarization irradiance measurements, *International Journal of Advanced Computer Science and Applications*, 査読あり、, 2013, Vol., 4,2, pp226-233, doi: 10.14569/IJACSA.2013.040234

H. Ohyama, S. Kawakami, K. Shiomi, et al., Retrievals of total and tropospheric ozone from GOSAT thermal infrared spectral radiances, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 査読あり、, 2012, Vol., 50, pp1770-1784.

Kajino, M., Inomata, Y., Sato, et al., Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type, *Atmos. Chem. Phys.*, 査読あり、, 2012, Vol., 12, 11833-11856, doi:10.5194/acp-12-11833-2012.

Kajino, M., Deushi, M., Maki, T., et al., Modeling wet deposition and

concentration of inorganics over Northeast Asia with MRI-PM/c, *Geosci. Model Dev.*, 査読あり、, 2012, Vol., 5, 1363-1375,

doi:10.5194/gmd-5-1363-2012.

内野修、酒井哲、永井智広ら、GOSAT プロダクト検証用可搬型ライダーの開発、*日本リモートセンシング学会誌*、査読あり、, 2012, 31 巻、 pp435-443.

新井康平、東健太、エアロゾルパラメータ推定における太陽直達及び散乱光の感度解析及び太陽追尾機構を伴わない太陽直達散乱光の計測装置、*日本写真測量学会誌*、査読あり、, 2012, 50 巻、 pp276-283.

##### [学会発表](計8件)

O. Uchino, et al., Comparison of lower tropospheric ozone columns observed by DIAL and GOSAT TANSO-FTS TIR, 2013 AGU Fall Meeting, 2013 年 12 月 9~13 日, Moscone Center (San Francisco, California, USA)

池上雅明ら、気象庁全球大気汚染気象予測モデルの更新による予測精度の向上について、*日本気象学会 2013 年度秋季大会*、2013 年 11 月 19~21 日、*仙台国際センター*(宮城県仙台市)

鎌田茜ら、高濃度オキシダントが大気領域で観測された事例について、*日本気象学会 2013 年度秋季大会*、2013 年 11 月 19~21 日、*仙台国際センター*(宮城県仙台市)

出生真ら、オンライン領域化学輸送モデル(NHM-Chem)の開発、*日本気象学会 2013 年度秋季大会*、2013 年 11 月 19~21 日、*仙台国際センター*(宮城県仙台市)

森野勇ら、ライダーによる下部対流圏オゾン観測と化学気候モデルとの比較、*日本気象学会 2013 年度春季大会*、2013 年 5 月 15~5 月 18 日、*国立オリンピック記念青少年総合センター*(東京都渋谷区)

H. Okumura, et al., Improvement of Web-base Data Acquisition and Management System for GOSAT Validation Lidar Data Analysis, *IS&T/SPIE Electronic Imaging 2013*, 2013 年 02 月 06 日, 米国、カリフォルニア州バーリントンゲーム市

T. Maki, et al., The Outline of Air Quality Operational and Research Activities in the Japan Meteorological Agency, 4th International Workshop on Air Quality Forecasting Research, 2012 年 12 月 14 日~2012 年 12 月 16 日, スイス、ジュネーブ

Kajino, M., et al., Modal Bin Hybrid Model: A surface area consistent, triple moment sectional method for use in process-oriented modeling of atmospheric aerosol, 2012 AGU Fall

Meeting, 2012年12月3~7日, Moscone Center (San Francisco, California, USA)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

眞木 貴史 (MAKI, Takashi)  
気象庁気象研究所・環境・応用気象研究部・室長  
研究者番号：50514973

### (2) 研究分担者

永井 智広 (NAGAI, Tomohiro)  
気象庁気象研究所・気象衛星・観測システム研究部・室長  
研究者番号：30343891

出牛 真 (DEUSHI, Makoto)  
気象庁気象研究所・環境・応用気象研究部・主任研究官  
研究者番号：00354499

酒井 哲 (SAKAI, Tetsu)  
気象庁気象研究所・気象衛星・観測システム研究部・主任研究官  
研究者番号：00377988

森野 勇 (MORINO, Isamu)  
独立行政法人国立環境研究所・地球環境研究センター・主任研究員  
研究者番号：90321827

新井 康平 (ARAI, Kouhei)  
佐賀大学・工学系研究科・教授  
研究者番号：10222712

奥村 浩 (OKUMURA, Hiroshi)  
佐賀大学・工学系研究科・准教授  
研究者番号：50251195

### (3) 連携研究者

梶野 瑞王 (KAJINO, Mizuo)  
気象庁気象研究所・環境・応用気象研究部・研究官  
研究者番号：00447939

川上 修司 (KAWAKAMI, Syuji)  
独立行政法人宇宙航空研究開発機構・地球観測研究センター・主任研究員  
研究者番号：40600961

大山 博史 (OOYAMA, Hiroshi)  
独立行政法人宇宙航空研究開発機構・地球観測研究センター・宇宙航空プロジェクト研究員  
研究者番号：50600962

### (4) 研究協力者

内野 修 (UCHINO, Osamu)  
独立行政法人国立環境研究所・地球環境研究センター・高度技能専門員

柴田 清孝 (SIHIBATA, Kiyotaka)  
気象庁気象研究所・環境・応用気象研究部・客員研究員

中里 真久 (NAKAZATO, Masahisa)  
気象庁観測部計画課情報管理室・突風災害対策情報調整官

池上 雅明 (IKEGAMI, Masaaki)  
気象庁地球環境・海洋部環境気象管理官付・品質評価係長

鎌田 茜 (KAMADA, Akane)  
気象庁地球環境・海洋部環境気象管理官付・広域大気汚染情報係員