

東京大学大学院新領域創成科学研究科
環境学研究系自然環境学専攻
地球環境モデリング学分野

平成 25 年度

修士論文

**NICAM-CHASER 非静力学大気モデルによる
領域スケールの大気化学モデリングの研究**

A study on the regional scale modeling of
atmospheric chemistry with use of a non hydrostatic
atmospheric model NICAM-CHASER

2014 年 2 月 27 日 提出
2014 年 3 月 修了

指導教員 中島映至 教授

47-126645 村田諒

目次

1. はじめに	2
1.1 対流圏オゾンの影響	2
1.2 対流圏オゾンの生成機構	5
1.3 対流圏オゾン前駆物質	6
1.4 日本における対流圏オゾン	8
1.5 全球三次元化学輸送モデル	11
1.6 本研究の目的	12
2 研究手法	13
2.1 NICAM-CHASER	13
2.2 本研究による手法の改良	15
2.3 実験設定	17
2.4 比較検証データ	19
2.5 比較検証モデル	20
3. 夏季標準実験の結果および考察	21
3.1 オゾン	22
3.2 NO _x ,OH ラジカル	30
3.3 CO	33
4 春季実験の結果	37
5 まとめと今後の展望	40
謝辞	41
参考文献	42
付録 関東地方各地点における気象場の検証	46

1. はじめに

地球の大気中には様々な気体があり、それらは自然現象や人間活動によって大気中に放出される。放出された気体は、化学的変質や除去過程を伴いながら輸送・拡散され、地球大気中に広く分布する。本論文では、大気中に存在する気体の中でも気候・大気汚染問題から人間の健康影響や植生などへの農業影響まで幅広く影響を及ぼす活性化微量気体である対流圏オゾンとその前駆物質に焦点を当てた。

1.1 対流圏オゾンの影響

1.1.1 気候影響

産業革命以降の工業化に伴う化石燃料燃焼の急増によって温室効果気体の排出量が増加し、地球温暖化が問題化されることは気候変動に関する政府間パネル (Intergovernmental Panel on Climate Change; IPCC) などの報告により広く知られている (IPCC-AR4, 2007; IPCC-AR5, 2013)。温室効果気体は地表面からの赤外放射を吸収・射出し、大気-地表面系の放射収支を変化させるはたらきをもつ。このような人為起源の温室効果気体の増加に伴う放射フラックスの変化は、気候システムに加えられる外的駆動力であるため、放射強制力と定義され、気候変化の定量的尺度の一つとして用いられている。大気上端における放射フラックスの正味変化量が、正の場合は地球を加熱し、負の場合は地球を冷却する効果を示す。気候変動に関する政府間パネル (IPCC) による最新の第五次報告書では、1750-2011年の対流圏オゾンは正の放射強制力 (+0.40 W/m²) を示し、二酸化炭素 (+1.82 W/m²)、メタン (+0.48 W/m²) に次いで、第三の温室効果気体とされている (図 1.1)。また、1850年から1990年にかけてのオゾン増加による放射強制力は、全球平均値で +0.37~+0.42 W/m²、北半球平均値で +0.48~+0.51 W/m²、南半球平均値で +0.27~+0.33 W/m² という値が得られている (Brasseur et al., 1998)。このオゾンの放射強制力は、全球平均でメタンの値に近く、北半球ではメタン以上で二酸化炭素に次ぐ温室効果気体となっている。

しかしながら、図 1.1 より対流圏オゾンの放射強制力の値は二酸化炭素やメタンのそれに比べて大きな不確実性をもつことがわかる。これは、対流圏オゾンが大気中で非常に複雑な過程を経験するため、その大気寿命が数日から数ヶ月となり、二酸化炭素やメタン (長寿命気体) に比べて寿命が短い (短寿命気体) からである。その結果、対流圏オゾンの空間分布は地球上では不均一になり (図 1.2)、その季節変化も顕著に表れる (図 1.3)。図 1.3 は対流圏オゾン濃度の時系列変化を示しており、人間活動の影響を強く受ける大陸では夏季に最小となるのに対して、人間活動の影響を直接受けにくい春季に最大となると観測されている (Lelieveld and Dentener, 2000)。対流圏オゾンの放射強制力の見積りに含まれる不確実性を減らすには、対流圏オゾンの時空間的な偏在性をより精度良く見積もることが必要となる。

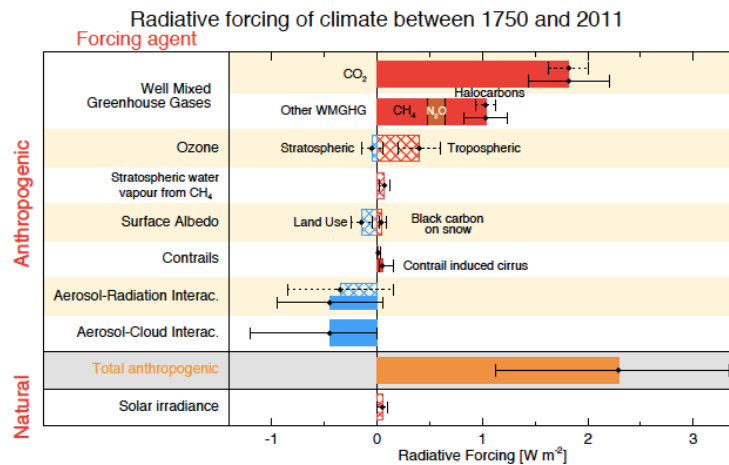


図 1.1 1750 年から 2011 年にかけての放射強制力の全球推定平均値。エラーバーの長さは推定値の不確か性の大きさを表している。本研究で取り扱う対流圏オゾンは、“Ozone”の項にある正の放射強制力を示している”Tropospheric”に該当する。(IPCC AR5, 2013)

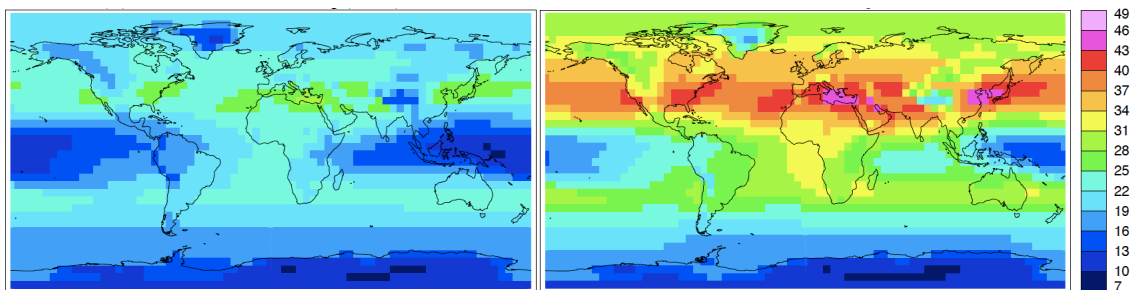


図 1.2 大気化学の全球輸送モデル相互比較プロジェクト (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project; ACCMIP) で計算された対流圏オゾンの年平均全球分布図 (左図:1850s,右図:2000s)。単位は ppbv (percentage per billion in volume)である。(Stevenson et al., 2013)

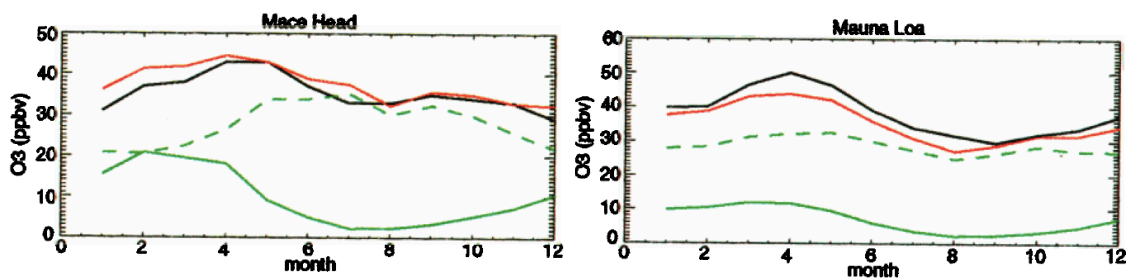


図 1.3 メースヘッド/アイランド (Mace Head) および マウナロア/ハワイ (Mauna Loa) の地表付近におけるオゾン濃度の季節変化 (春季最大夏季最小を表す代表的な地点) 赤線が計算値、黒線が観測値、緑実線が成層圏起源オゾン、緑破線が対流圏起源オゾンを示している。単位は全て ppbv である。(Lelieveld and Dentener, 2000)

1.1.2 人体,植生影響

対流圏オゾンは、光化学スモッグの原因となる光化学オキシダント（光化学反応によって生成されるオゾン等の物質の総称）の成分の約90%を占めている。オゾンは水に溶けにくく酸化力が強いので、呼吸によって吸引されることで肺の奥深くの肺胞にまで達する。オゾンの濃度レベルや曝露条件によって症状は異なるが、咳などの気道刺激症状、慢性の気管支炎、肺機能の低下、気道反応性の亢進といった呼吸器系への影響が挙げられる。また粘膜刺激性でもあるため、目や喉、鼻の粘膜にも影響を及ぼすことが確認されている。さらに近年の疫学研究によると、オゾン濃度の増加した当日あるいは翌日の死亡率の増加が報告され、オゾン濃度の増加による非事故日死亡率の上昇が明らかにされた（US EPA, 2006）。また、長期曝露影響の見積もりとして、田村ら（2009）によって日本におけるオゾン濃度の将来予測と死亡リスクの推計結果（増加死亡数は、20年間の6-8月の延べ60ヶ月の増加数を面積1km²当たりの死亡数である）を図1.4に示している。2031年からの20年間では関東全体で0.2%の増加が見られ、2081年からの20年間では全ての都県で増加傾向を示し全体で0.6%の増加と推定された。これは、高齢者の増加による脆弱集団の増加や将来のオゾン濃度の増加が原因と考えられる。しかし、この疫学研究で使用されたオゾン濃度分布はその地域における過去の気象パターンごとに推定したものであり、大気化学輸送モデルによる大気汚染物質排出量の変化や大陸からの移流は考慮されていないため、不確実性も非常に大きい。

オゾンの植物影響に関しては、短期・長期曝露影響の研究結果が報告されている。高濃度のオゾンは葉の気孔から吸収され植物の内部に侵入すると強い酸化力で葉の細胞組織を破壊する。その結果、葉に白色や黄色の斑点が生じるといった可視障害が現れる。葉に障害が出るほど高濃度でなくても長期間オゾンに曝露されると植物の光合成速度が低下し葉の老化速度が早まる。それが農作物の成長抑制、収量減少に繋がることは明らかである。オゾンによる減収は農作物の種類間で異なるが、日中平均オゾン濃度が上昇すると農作物の減収率が増加することが複数の研究で示されている（Lesser et al., 1990; Kobayashi et al., 1995）。

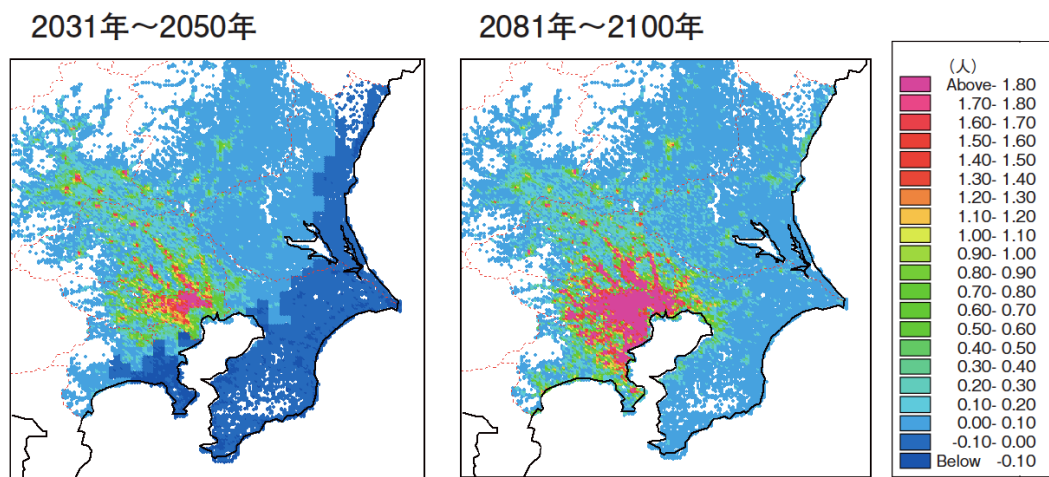
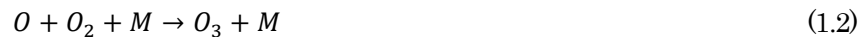
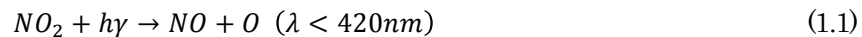


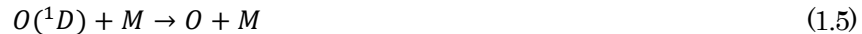
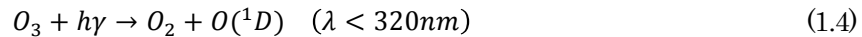
図 1.4 オゾン濃度増加に伴う関東地域の増加死亡数。左図が 2031-2050 年の結果、右図が 2081-2100 年の結果に対応する。単位は、人/km²である。（田村ら, 2009）

1.2 対流圏オゾンの生成機構

対流圏オゾンは、成層圏からの流入と光化学反応による生成によって供給される。前者は後者に比べて圧倒的に小さいため、光化学反応による生成が対流圏オゾンの主要供給源である。オゾン生成の反応に用いられる気体は自動車や工場などから排出される窒素酸化物 (NO_x) であり、これが太陽光を受け光化学反応が進むことでオゾン (O₃) が生成される。生成したオゾンは一酸化窒素 (NO) と反応し、再び二酸化窒素 (NO₂) になる。式 (1.1)~(1.3) の NO と NO₂ 間のサイクルではオゾン濃度に対して正味の影響は与えない。ここで M は再結合反応に必要な反応の第三体で、大気中では窒素分子 (N₂) や酸素分子 (O₂) がその働きをする。



一方で O₃ は光化学的に活性な分子であり、紫外から近赤外域までの太陽光を吸収し光解離が起こる。



オゾン分解により生じた OH ラジカルは強い酸化力を有しているため非常に反応性が高い。OH ラジカルが一酸化炭素(CO)およびメタン(CH₄)と反応することで HO₂ ラジカル、CH₃O₂ ラジカルが生成され、これらが NO と反応することで NO₂ が生成する。海洋大気中などの清浄大気中では NO₂ 生成反応の約 70% が式(1.7)の反応であり、約 20% が式(1.10)の反応である(Lelieveld and Dentener, 2000)。



陸上では、NO_x や CO に加えて、植生・人為起源の非メタン炭化水素類 (Non-Methane Hydrocarbons; NMHCs) の排出もあり、NMHCs はオゾン前駆物質として重要な気体の一つである。CO や CH₄ と同様に、NMHCs も OH ラジカルとの反応を初期過程とする一連の反応を経て NO₂ を

生成しオゾン生成量に影響を与える。

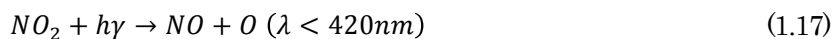


NMHC 濃度がオゾン生成にとって無視できないレベルにある場所 (陸上) では、 O_3 - NO_x -NMHCs の複雑な非線形として応答している。この詳細は 1.3.3 で明記する。

1.3 対流圏オゾン前駆物質

1.3.1 NO_x

オゾン生成に関わる窒素酸化物 (NO , NO_2 , NO_3 , N_2O_5 , HNO_2 , HNO_3 , HNO_4 , 有機硝酸など) の 90%以上は、 NO の形で大気中に放出された後に、大気中での化学的変質により生成される。 NO_2 は式 (1.16) - (1.18) の反応に従って NO から NO_2 に酸化され、 NO_2 は可視光で光解離反応が起こることで NO に戻る。 NO と NO_2 は数分間の時定数で光化学平衡になるため NO と NO_2 をまとめて NO_x と定義することができる。なお、 NO_2 は OH ラジカルとも反応し HNO_3 が生成する。この反応は NO_x の消失過程として極めて重要であり、大部分の対流圏領域における NO_x の大気寿命は式 (1.16) によって決まる。そのため、 NO_x の大気寿命は OH 濃度の時空間変動に付随して変動し、季節や高度によって異なる。 NO_x の寿命は北半球中緯度では平均的に 0-5km の高度で 1-2 日、10km の高度で 1 週間程度であり極めて短い (Ehhalt et al., 1992)。



対流圏内での NO の供給源は、雷放電や成層圏での N_2O の分解反応による降下もあるが、約 70% が化石燃料およびバイオマス燃焼によるものであり、土壌中の微生物の脱硝・硝化作用による放出も合わせると地表面からの発生が大部分を占める (WMO, 1995)。このため NO_x の生成率は、緯度、土地利用、季節によって大きく異なる。化石燃料による放出は産業活動が活発な北半球中緯度で多く、バイオマス燃焼による放出は熱帯域の大陸上に分布している (van Noije et al., 2006)。

1.3.2 NMHCs

1.2.2 で述べたように、NMHC はメタン以外の炭化水素類の総称であり、地球上で最も多く存在する NMHC は、植物の代謝によって大気中に放出されるイソプレン (C_5H_8) である (Brasseur et al., 1998)。その他、植物からはテルペン類も放出され、特に熱帯地域ではイソプレン・テルペンがオゾン生成の重要な役割を担っている (Sudo et al., 2002b)。人間活動に伴う排出源としては、化石燃料等の燃焼、バイオマス燃焼、溶剤の使用、化学製造工場といった人為起源による排出があり、エタン (C_2H_6) やプロパン (C_3H_8) などのアルカン類、エチレン (C_2H_4) などのアルケン類、アセトン (CH_3COCH_3) などのケトン類、トルエン ($C_6H_5CH_3$) などの炭素数の多い有機化合物、といった揮発性有機物 (Volatile Organic Compounds; VOC) が放出される。

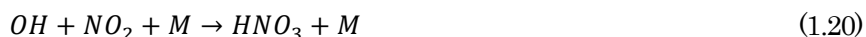
こうした NMHCs あるいは VOC は、オゾン前駆物質として重要である。NMHCs は多種多様に存在するが、式 (1.14) を起こすのにどの程度重要であるかは NMHCs の量と OH との反応性で決まり、一般に NMHCs の分子量の大きさとともに反応性は増す。NMHCs の寿命はほぼ数日またはそれ以下と非常に短いことから反応性が高く、光化学過程において重要な役割を担っている。

1.3.3 NO_x/NMHCs

図 1.5 は、Kanaya et al. (2008) によって行われた東京都心部 (目黒区駒場) における実測に基づく NO_x-NMHCs 依存性解析を行った結果である。オゾン生成に対する NO_x/NMHC の非線形応答は、図 1.5 で示すような相関によって説明することができる。その関係性には 2 つの特徴的な領域が存在する。1 つはオゾンの生成速度が NO_x 濃度に敏感に応答する領域 (NO_x 律速) であり、もう 1 つは VOC 濃度に敏感に応答する領域 (VOC 律速) である。NO_x 律速の領域では VOC の変化ではオゾン生成速度はほとんど変化しないが、NO_x 濃度の増加には著しく敏感に反応する。VOC 律速の領域では VOC の増加に対してオゾン生成速度は敏感に反応するが、NO_x 濃度の増加に対してはオゾン生成速度が減少する領域である。NO_x 律速の領域では以下の反応式に従って、OH ラジカル濃度が増加し、オゾン生成速度が増加する。



一方、VOC 律速の領域では、NO_x 濃度の増加に伴って OH ラジカル濃度の減少に寄与し、オゾン速度が減少する。



Kanaya et al. (2008) によると、ボックスモデルシミュレーションに基づいた解析とラジカル実測に基づいた解析から、東京都心部では主に VOC 律速であることが示唆された。また、気象条件に基づいた前駆物質排出量を用いてオゾン濃度低減効果をシミュレーションすることが可能であることも示している。

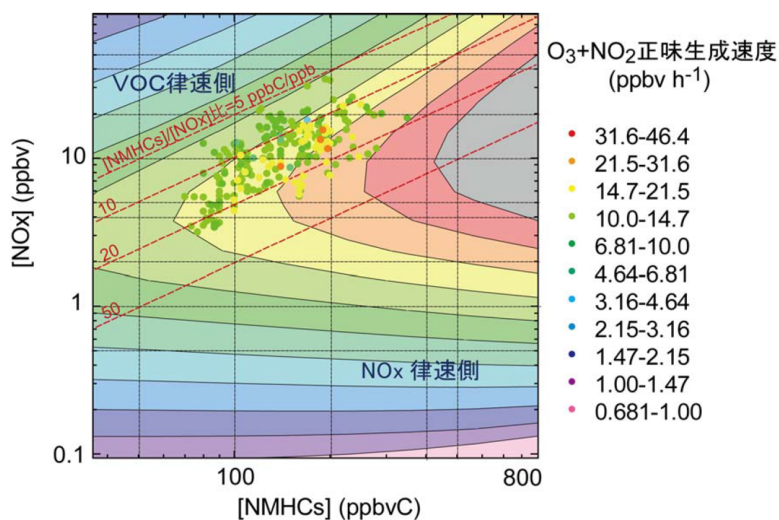


図 1.5 オゾン生成速度の NO_x-NMHCs 濃度に対する依存性

等高線はモデルシミュレーションによる計算結果。

丸は観測点で色は HO₂ ラジカル濃度を用いて計算されたもの。(Kanaya et al., 2008)

1.4 日本における対流圏オゾン

1.4.1 濃度レベル

日本では大気汚染に関する環境基準項目の一つとして光化学オキシダントが定められている。環境基準の告示において光化学オキシダントは「オゾン、パーオキシアセチルナイトレート (PAN)、その他の光化学反応により生成される酸化性物質の総称」と定義され、その大部分はオゾンが占める。光化学オキシダント濃度の 1 時間値が 120ppbv 以上で、気象条件からみてその状態が継続すると認められる場合には光化学オキシダント注意報が発令される。光化学オキシダント注意報の発令都道府県数は増加傾向にあり、発令地域の広域化が進行しているという現状である。平成 18 年 (2006 年) は長崎県と熊本県では初めて発令され、さらに平成 19 年 (2007 年) には新潟県と大分県では初めて発令され、全国での発令地域は過去最多となった。図 1.6 は平成 23 年 (2011 年) における光化学オキシダント注意報の発令日数分布図であるが、都道府県によって発令日数にばらつきが見られ、関東地方での発令日数が非常に多いことがわかる。これは、人口が多く人間活動が活発な関東地方にはオゾン前駆物質を排出する工場や自動車などの人為起源大気汚染物質の排出源が多く存在するからであると考えられる。一方、オゾンの前駆物質である NO_x 及び NMHCs の全国平均濃度の経年変化を見ると、NO_x は 1996 年度から減少を示しており、NMHCs は 1985~2004 年度の 20 年間で減少傾向を示している (図 1.7)。これは大気汚染防止法や自動車 NO_x・PM 法、自治体による大気汚染物質の排出量削減対策の効果であると考えられる。

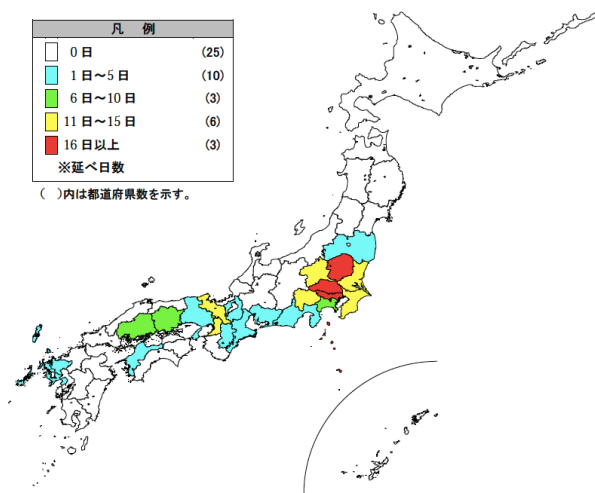


図 1.6 2011 年の光化学オキシダント注意報の発令日数分布図

(環境省報道発表資料 光化学大気汚染の概要, 2012)

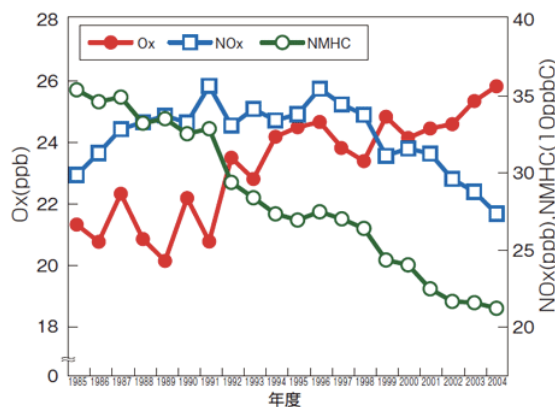


図 1.7 1985～2004 年度の Ox、NOx、NMHCs の年平均濃度の経年変化

(越境大気汚染の日本への影響、環境儀 No.33 国立環境研究所, 2009)

1.4.2 越境汚染

図 1.7 が示す通り、対流圏オゾンの前駆物質である NOx と NMHC あるいは VOC の濃度は排出削減対策の効果により減少傾向を示しているが、対流圏オゾンの年平均値は増加傾向を示している。考えられる要因としては、1.3.2 で述べたオゾン生成に対する NOx-NMHC の非線形応答が挙げられるが、日本以外の国からの越境汚染である可能性もある。

図 1.8 には、Ohara et al. (2007) によって推定されたアジアにおける排出量の時系列変化を示した。アジアでは、NOx 排出量は 1980 年から 2000 年の 20 年間で約 2.5 倍に増加し、特に中国は 3.1 倍に達し、その増加率が顕著であることがわかる。NHMCs も 1980 年から 2000 年の 20 年間で約 1.9 倍の増加を示し、中国では約 2.4 倍の増加を示している。これらの原因は火力発電所による石炭燃焼、自動車排出、バイオマスや農業活動などによる燃焼、溶剤等の使用による蒸発発生の増加が挙げられる。このような前駆物質の増加に伴い、オゾン濃度の増加が示唆されて、その影響が国を超えた広い地域で見られる。

日本近隣におけるオゾンの空間分布を見るために、図 1.9 に、Tanimoto et al. (2005)による三次元領域化学輸送モデルを用いた東アジアのオゾン濃度を示した。このモデル結果から、4 月は東アジアからの前駆物質起源のオゾンが西日本に輸送され、5-10ppbv 程度の寄与がみられると見積もられた。しかしこのようなアジア大陸からの越境汚染は常に一定の量が供給されているわけではなく、日本に到達する空気塊のルートによって変動する。さらに日本に影響する越境汚染は、ヨーロッパからの寄与も示唆されている (Nagashima et al., 2010)。そのため、我が国の局所的な大気汚染問題であっても、東アジア規模および全球規模での定量的な越境汚染の影響評価を行う必要があるといえる。

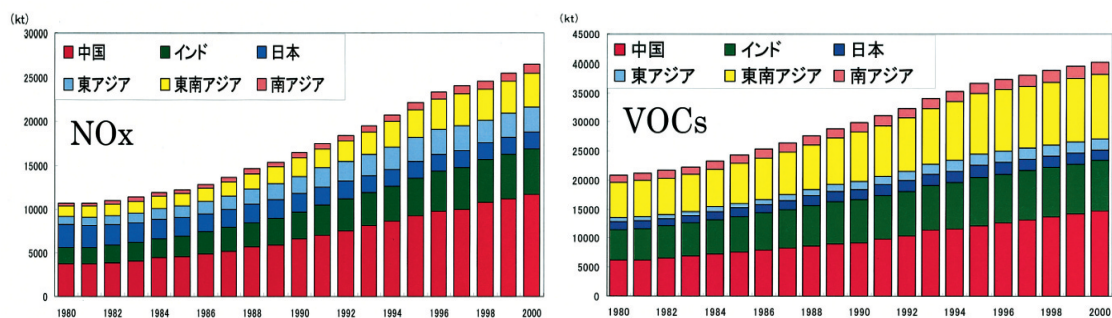


図 1.8 アジア各国 (中国、インド、日本) および、東アジア、東南アジア、南アジアにおける NO_x と VOCs の排出量経年変化図 (1980~2000 年) (Ohara et al., 2007)

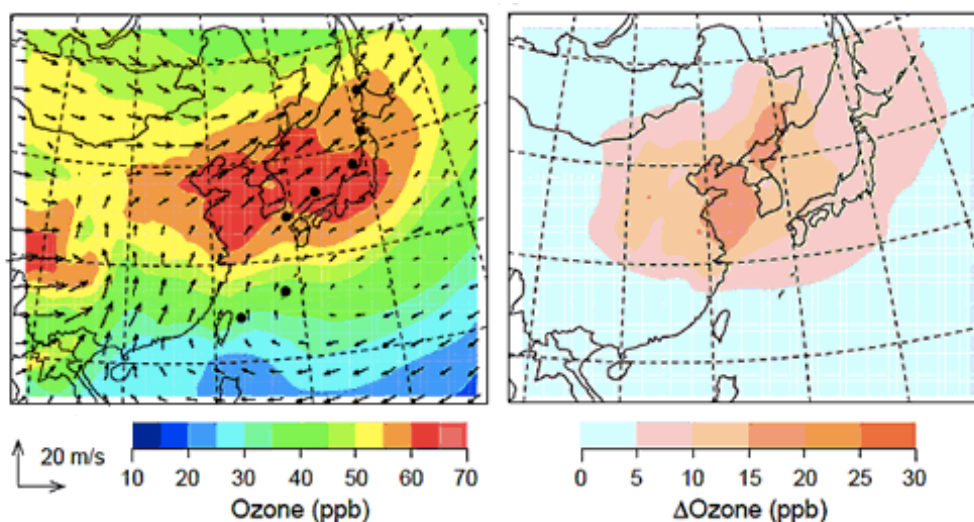


図 1.9 領域化学輸送モデルにより求めた 2002 年 4 月の越境汚染の様子
左図は地表オゾンの濃度分布図。右図は中国・韓国からの前駆物質によるオゾンの生成量 (Tanimoto et al., 2005)

1.5 全球三次元化学輸送モデル

対流圏オゾンの広域的な空間分布の把握のためには、三次元大気化学輸送モデルが必要となる。このモデルには、主に気候影響や地球規模の大気汚染に焦点を当てた全球規模のモデル (e.g., Stevenson et al., 2013) と、地域的な越境汚染・都市汚染の複合汚染とその健康・植生影響を対象とした領域規模のモデル (e.g., Carmichael et al., 2009) の2種類がある。計算コストの問題から、領域規模のモデルの方が全球規模のモデルに比べて高解像度実験を行うことが可能であり、その結果、計算対象地域では精度の良い結果を得ることができる。また領域規模のモデルの方が、時空間スケールの小さな現象を取り扱うことになるため、化学モジュールもより精緻化したものが利用される傾向がある (Fast et al., 2006)。しかし近年では、計算機やその周辺機器の性能が発達し、日本でも理化学研究所の「京」や海洋研究開発機構の地球シミュレータなどの超大型スーパーコンピュータが運用されていることにより、全球対象モデルの高解像度実験が可能となった (e.g., Miura et al., 2007; Miyamoto et al., 2013)。そこで、文部科学省 (MEXT) 気候変動適応研究推進プログラム (RECCA) の1つの課題である「大気環境物質のためのシームレス同化システムとその応用」(以下、MEXT/RECCA/SALSA と呼ぶ) プロジェクトの下で、高解像度実験にも対応可能な大気化学輸送モデルの開発がはじまった (SALSA, 2013; Goto et al., 2014)。

東京大学大気海洋研究所 (AORD)・国立環境研究所 (NIES)・海洋研究開発機構 (JAMSTEC) によって共同開発されている大気海洋結合モデル MIROC は、全球三次元化学輸送モデル CHASER (Sudo et al., 2002) と結合されている (以後、このモデルを”MIROC-CHASER”と呼ぶ)。MIROC-CHASER は、IPCC や ACCMIP といった様々な国際的な貢献を続けている (IPCC-AR4, 2007; IPCC-AR5, 2013; Stevenson et al., 2013)。CHASER で取り扱っている化学反応数や化学種は、世界的に広く使われている WRF-Chem モデル (Fast et al., 2006) や CMAQ モデル (Byun and Schere, 2006) で加味されたものと同程度である。MIROC-CHASER で計算されたオゾンや前駆気体の分布は各観測値との整合性が取れ、オゾンの生成から消滅に至る過程の妥当性が確認されている (Sudo et al., 2007; Nagashima et al., 2010)。しかし、一般に MIROC-CHASER では、計算コストの制限から、空間分解能 100-300km 程度が最適であるため、都市付近のような領域規模での物質シミュレーションを行うには空間スケールがやや粗く、オゾン濃度が高い都市域の再現性を評価するには適していないと考えられる。

そこで、高解像度で実験を行うことができる全球雲解像モデル NICAM (Tomita and Satoh, 2004; Satoh et al., 2008) のような力学モデルと結合した化学輸送モデルが必要となる。そのため、MEXT/RECCA/SALSA では NICAM と結合した CHASER (以後このモデルを”NICAM-CHASER”と呼ぶ) の開発が始まった (SALSA, 2013)。但し、全球規模高解像モデルとして計算を行うには京のような超大型スーパーコンピュータが必要になるため、MEXT/RECCA/SALSA ではある領域のみ高解像度で実験を行うことが可能なストレッチ格子法 (Tomita, 2008a) による NICAM のシミュレーションを行われ、全球規模から領域規模までシームレスに動く全球モデルとして開発された (e.g., Goto et al., 2014)。ストレッチ格子法を適用した NICAM を用いることで計算コストを抑えながら高

解像度での実験が可能になり感度実験や追加実験が容易にできるという利点もある。また、精緻化した NICAM-CHASER を全球気候モデルとして利用することで、対流圏オゾンの不確実性を低減に向けた気候変動問題への取り組みも行うことが期待できる。

1.6 本研究の目的

本研究は、高解像度実験が可能な全球化学輸送モデル NICAM-CHASER を用いて、空間不均一性の高いオゾンおよびその前駆気体の領域規模でのモデル再現性の向上を目的とした。限られた計算機資源を最大限利用するために、NICAM-CHASER にストレッチ法を適用し、夏季に対流圏オゾン濃度が高くなる関東地域に焦点を当てた。2 章では使用した数値モデルである NICAM-CHASER の概要、検証に使用した観測データと比較モデルについて記した。また、NICAM-CHASER で計算されるオゾンの日変動をうまく再現するために重要な改良部分に関する記述もした。3 章では NICAM-CHASER によって計算された関東地方夏季の気象場およびオゾンとその前駆物質に関して、モデルと観測の比較検証結果を述べた。4 章では我が国における越境汚染の影響が強く出る春季のオゾン濃度に注目した考察を展開した。最後に 5 章では結論と今後の研究方針について記した。

2 研究手法

本章では本研究で用いた NICAM-CHASER モデル及びモデル検証で使用した観測データと比較モデルについて述べる。本研究では、オゾンとその前駆物質である NO_x、さらに一次生成物質である CO に注目し、大気化学輸送モデルとしての性能を評価した。また、気象場に関する検証も行った(結果は付録を参照)。本研究でモデル改良および評価のために行ったのは以下の4点である。

- 1) NICAM-CHASER の改良を行い、2007 年夏季の数値実験を行った。
- 2) 関東地方の気象場を MSM 客観解析データと比較し、NICAM-CHASER の力学場(風向・風速・気温・日射量・降水量)の再現性を検証した。
- 3) 関東地方のオゾンおよびそれに関連する微量気体成分(NO_x、CO、OH ラジカル)を観測結果および領域モデル結果と比較し、NICAM-CHASER の化学成分の再現性を検証した。
- 4) 関東地方以外の日本各地におけるオゾンと観測結果を比較検証した。さらに 2007 年春季の数値実験を行い、越境汚染による影響を見積もった。

2.1 NICAM-CHASER

本研究で用いる力学モデルは、東京大学大気海洋研究所 (AORI)、海洋研究開発機構 (JAMSTEC)、理化学研究所計算科学研究機構 (RIKEN Advanced Institute for Computational Science; AICS) で開発された全球雲解像モデル NICAM(Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model) (Tomita and Satoh, 2004; Satoh et al., 2008)であり、この NICAM に全球三次元化学輸送モデル (Chemical Atmospheric General Circulation Model for Study of Atmospheric Environment and Radiative Forcing: CHASER) (Sudo et al., 2002a, 2002b)を組み込んだ NICAM-CHASER (SALSA, 2013)を使用した。

2.1.1 NICAM

全球雲解像モデル NICAM は、次世代の全球大気モデルである正 20 面体格子非静力学モデルであり、全球 870m の雲解像実験 (Miyamoto et al., 2013)、全球 3.5km 実験による MJO 再現実験 (Miura et al., 2007)、全球 7km 実験によるエアロゾル高解像実験 (Suzuki et al., 2008) などの先端的な成果を挙げられてきた。NICAM の特徴の一つに正二十面体を細かく分割した多面体格子を用いていることが挙げられる。この格子は正二十面体の各面を 4 分割していき (n 回分割を繰り返して作られた格子を glevel-n と定義している)、球面上に分割した格子を投影することで全球ほぼ一様な格子を得ることができる。そのため分割数を増やすことで局所的に格子が集中することなく水平解像度を上げることが可能である。

本研究では NICAM にストレッチ格子法を用いた実験を行う。Tomita (2008a)によって開発されたストレッチ格子法は、全球ほぼ一様な格子をある特定の領域に集中させ、その領域付近の解像度を上げる方法である。ストレッチ法を用いることで全球の格子数を変えることなく実験対象領域を高解像

度にすることができる (図 2.1)。この利点として、全球一様格子法で高解像度実験を行う際に必要な膨大な計算資源が不要であることが挙げられる。また、一般の領域規模のモデルに必要な境界条件が不要であり、境界値問題が発生しないことも利点として挙げられる。さらに、計算資源が十分に整備されたときのための高解像度実験のテストランをスムーズに行うことが可能となる。従って、時空間的に不均一なオゾンをはじめとした短寿命気体の高解像度実験をより効率的に行うことができる。そのためストレッチ格子法を用いて各地域の微量気体の再現性評価を行っていくことは将来 CHASER の高精度化を進めていく上で非常に重要な手法の一つと考えられる。

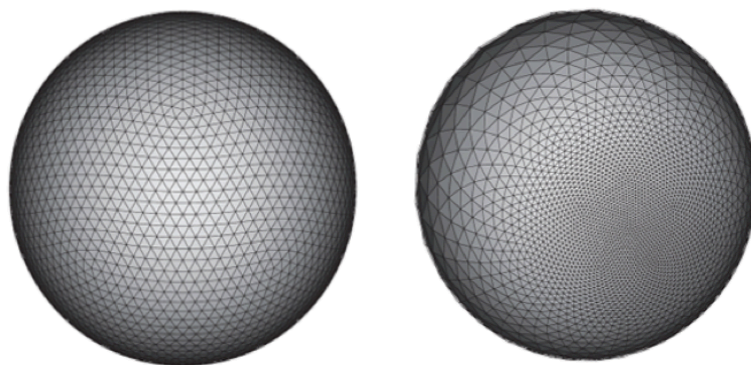


図 2.1 左図:ほぼ一様な多面体格子のイメージ図
右図:ストレッチ格子法を用いた多面体格子のイメージ図 (Tomita, 2008a)

2.1.2 CHASER

全球大気化学モデル CHASER の化学過程では 56 種類の化学種と 142 種類の化学反応を取り扱っており、対流圏光化学の基本サイクルである O_3 - NO_x - HO_x - CO - CH_4 循環や非メタン炭化水素の酸化反応、硫酸塩エアロゾルシミュレーションのための SO_2 、DMS の酸化反応が考慮されている。化学過程に加えて人為・自然起源による地表面からの放出、雷による NO_x 生成、水平・鉛直輸送、重力沈降や大気乱流による地面への沈着(乾性沈着)や雨水への沈着(湿性沈着)が組み込まれている (Sudo et al., 2002a, 2002b)。

また、MIROC-CHASER で計算されたオゾンや前駆気体の分布は各観測値や別の化学輸送モデルとの比較・検証が行われており、オゾンの生成から消滅に至る過程の妥当性が確認されている (Sudo et al., 2007; Nagashima et al., 2010; Lee et al., 2013)。

2.2 本研究による手法の改良

図 2.2 に MEXT/RECCA/SALSA で開発した NICAM-CHASER のつくばでのオゾン濃度の時系列変化を示す。オゾン濃度は日中増加し夜間減少する日変動を示すが、従来の NICAM-CHASER では日変動の再現ができていなかった。そこで本研究ではオゾンおよびそれに関連する微量気体成分の再現性の向上を図るため NICAM-CHASER に改良に取り組んだ。まず NICAM-CHASER の力学場と気相反応計算モジュールの時間分解能を整合的になるように修正した。

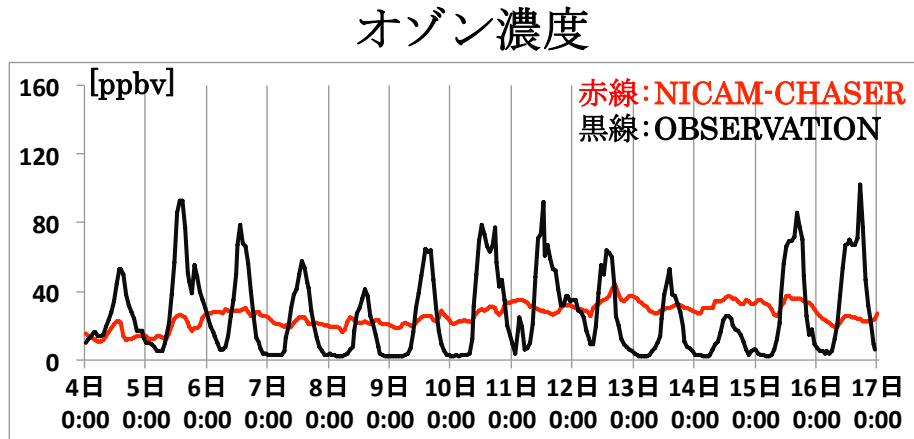


図 2.2 改良前のつくばでのオゾン濃度の時系列変化。

期間は 2007 年 8 月 4 日から 8 月 17 日までである。赤線は NICAM-CHASER によるオゾン濃度を示し、黒線は FAMIKA(詳細は 2.3.2 章で明記)によるオゾン濃度の観測値を示す。

次に、気体の光化学反応に関する修正も行った。光化学反応で使用する光解離定数 J は、放射スキームである MSTRN-X (Sekiguchi and Nakajima, 2008) で計算された太陽放射フラックス I を光解離反応が起こる物質の吸収断面積 σ とその量子効率 ϕ の積に波長ごとに掛け合わせ、オンラインで算出している(式 2.1)。光化学平衡が成立しているときには、例えば NO_2 の光解離定数 J_{NO_2} は(式 1.3)(式 1.9)(式 1.12)(式 1.15)を用いて(式 2.2)のようにあらわすことができる。

$$J = \int_{\lambda} I_{(\lambda)} \sigma_{(\lambda)} \phi_{(\lambda)} d\lambda \quad (2.1)$$

$$J_{\text{NO}_2} = (k_1[\text{O}_3] + k_2[\text{HO}_2] + k_3[\text{CH}_3\text{O}_2] + k_4[\text{RO}_2]) \frac{[\text{NO}]}{[\text{NO}_2]} \quad (2.2)$$

光化学反応をより厳密に計算するには、(式 2.1)で用いる太陽放射フラックスの波長間隔 (チャンネル数) をより細かく分ける必要がある。そのためチャンネル数を増やし MIROC-CHASER に対応させた(図 2.3)。その結果、光解離速度定数の不均一性がうまく再現された(図 2.4)。さらに、NICAM ではヒマラヤなどの峻峭な地形付近では計算不安定を回避するために解像度を粗くしていたが、日本の山地による計算不安定は起こらないことが確認できたため、その地形場の勾配を解像度に合わせて表現した。その結果、関東地方北部および西部の山脈が表現された (図 2.5)

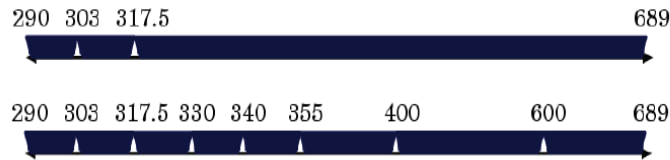


図 2.3 上図:GCM で用いられている波長分解能(単位:nm)
 下図:対流圏光化学用に修正した波長分解能(単位:nm)
 (須藤健悟 東京大学院理学研究科博士課程学位論文, 2003)

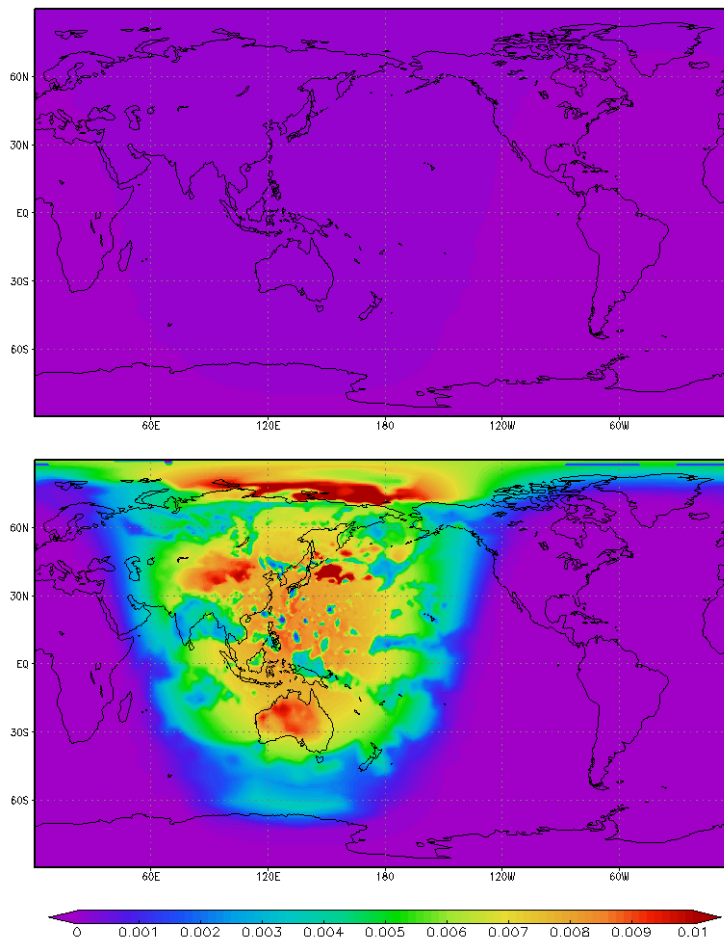


図 2.4 2007 年 8 月 9 日 12:00(Japanese Standard Time)の NO₂ の光解離速度定数の全球分布

上図 : GCM で用いていた波長分解能での光解離速度定数 (従来の NICAM-CHASER)

下図:MIROC-CHASER に対応させた波長分解能での光解離速度定数(改良した NICAM-CHASER)

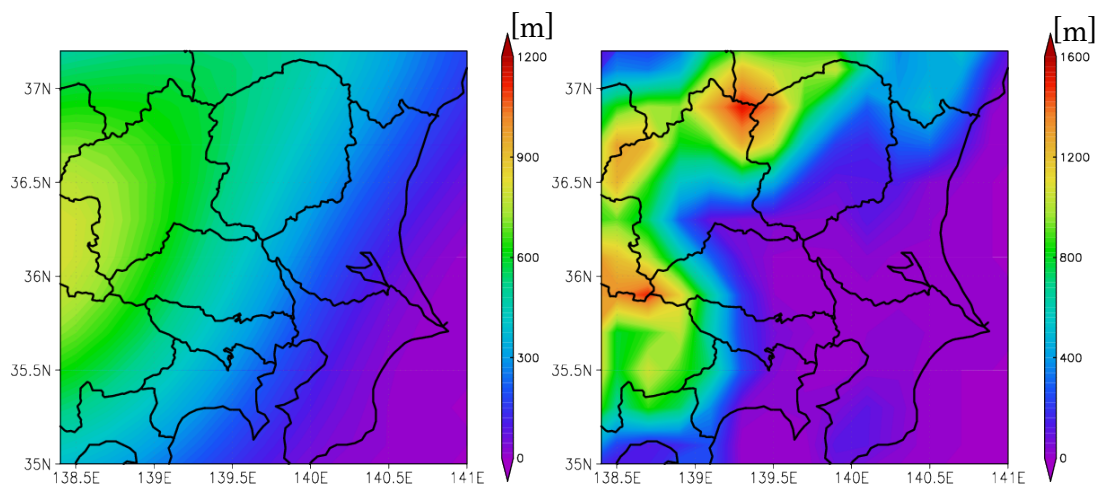


図 2.5 関東地方周辺の地表圏高度(m)

左図は地形の勾配を変える前の地形場を表し、右図は勾配を変えた後の地形場を表している。

2.3 実験設定

本研究では2007年8月1日から2007年8月20日まで関東地方を中心に数値実験を行った。この期間は観測結果が比較的豊富にあり、2.4章で述べる観測データの採取期間とも重複する。glevel=6でストレッチの中心を北緯35度、東経140度として関東域の水平分解能が10km程度となるように設定した。鉛直層数は40層で、最下層は80.841mである。時間分解能は30秒として計算した。

初期値は米国環境予報センター (NCEP) による全球客観解析データ (NCEP-FNL) を使用した。気象場は6時間ごとにNCEP-FNLを用いて、風速、気温、水蒸気量のナッジングを行い、海面水温は24時間ごとにNCEP-FNLを用いてナッジングを行った (Niwa, 2011)。

本研究では、関東域を中心に数値シミュレーションによる微量気体の再現性を評価するため複数のエミッションインベントリを組み合わせ使用した。EAGrid2000は日本を対象として水平分解能1kmのエミッションインベントリであり、Moss et al. (2010)などによるRCP4.5シナリオ (代表濃度シナリオ経路:Representative Concentration Pathways) の年変動傾向を加味した排出量となっている (図2.6)。日本に対してはEAGrid2000 (Kannari et al., 2007)をベースにしたもの (SALSA, 2013)を用いた。日本以外のアジア域のエミッションインベントリは水平分解能0.25度のREASv2.0 (Regional Emission Inventory in Asia version 2) (Kurokawa et al., 2013)を使用し、その他の地域に対してはRCP4.5シナリオのエミッションインベントリ (Lamarque et al., 2010; Moss et al., 2010)を用いた。

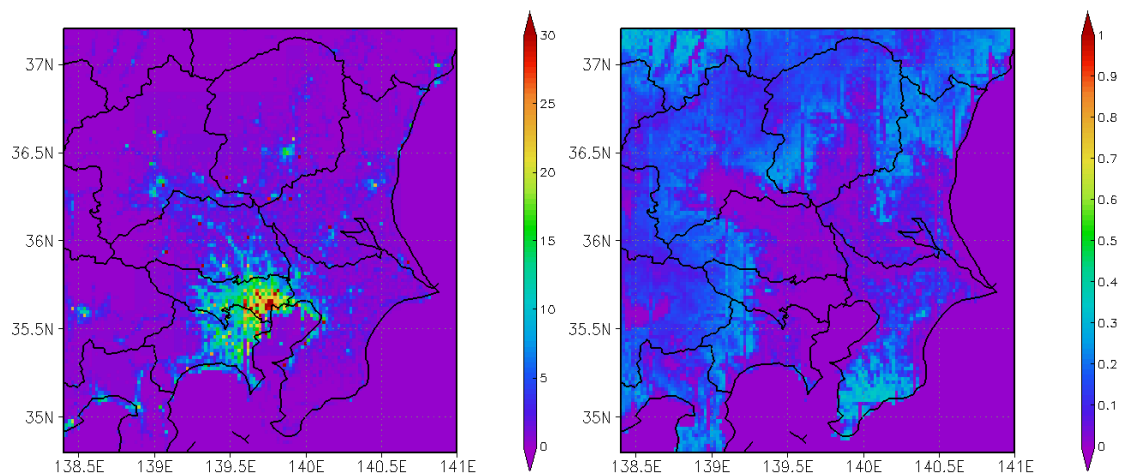


図 2.6 本研究で使用了 EAGrid2000 と RCP4.5 から作られたエミッションインベントリの例

左図:NOx のエミッション分布図(単位:ng/m²/sec)

右図:イソプレンのエミッション分布図(単位:ng/m²/sec)

NICAM の物理過程に関しては、乱流スキームは MY2MOIST (Mellor and Yamada, 1974, 1982; Nakanishi and Niino, 2004, 2009)、雲微物理スキームには水蒸気・雲水・氷・雪・霰・雹を陽に取り扱った 1-moment bulk 法 (Tomita, 2008b) を使用し、積雲パラメタリゼーションは使用していない。

以下に実験設定をまとめた表を記す。

表 3.1 実験設定一覧

使用モデル	NICAM-CHASER		
実験期間	2007 年 8 月 1 日~8 月 20 日		
水平分解能	関東地方最小約 10km (glevel6, rlevel2, stretch_factor=100)		
鉛直分解能	40 層(大気最下層:80.841m)		
時間分解能	30 秒		
初期値	NCEP-FNL (緯度 1°×経度 1°)		
ナッジング	NCEP-FNL (緯度 1°×経度 1°)	気象場	6 時間毎
		海面温度	24 時間毎
乱流スキーム	MY2MOIST		
雲物理スキーム	1-moment bulk 法		
エミッション	EAGrid2000+REASv2.0+RCP		
	人為起源	自然起源	
	C ₂ H ₄ , C ₂ H ₆ , C ₃ H ₆ , C ₃ H ₈ , CH ₃ COCH ₃ , CO, NO _x , ONMV, SO ₂	C ₅ H ₈ , C ₁₀ H ₁₆ , CH ₃ OH	

2.4 比較検証データ

本研究で使用した比較データの観測地点を図 2.7 に示す。

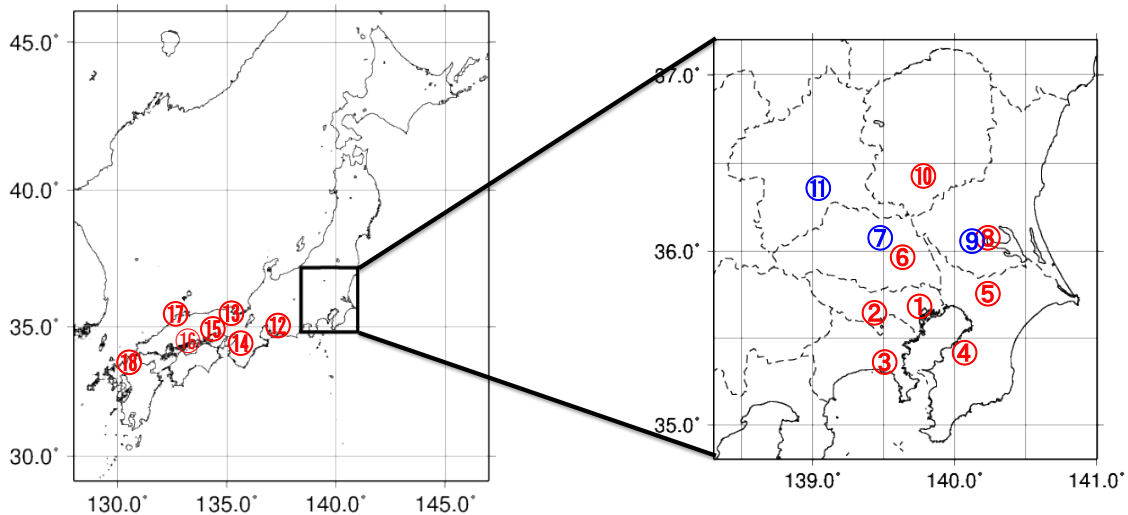


図 2.7 日本および関東地方の観測地点の分布図

- ①新宿/東京都、②多摩/東京都、③藤沢/神奈川県、④市原/千葉県、⑤成田/千葉県、⑥さいたま/埼玉県、⑦騎西/埼玉県、⑧土浦/茨城県、⑨つくば/茨城県、⑩小山/栃木県、⑪前橋/群馬県、⑫名古屋/愛知県、⑬八幡/京都府、⑭大阪/大阪府、⑮尼崎/兵庫県、⑯倉敷/岡山県、⑰松江/島根県、⑱北九州/福岡県

赤字は本研究で用いた大気汚染物質常時観測データの観測地点を示し、
青字は本研究で用いた短期集中観測データ FAMIKA の観測地点を示す。

2.4.1 気象庁メソ客観解析データ (MSM)

気象庁のメソ数値予報モデル MSM では完全圧縮系の非静力学方程式系で鉛直座標は地形に合わせた高度を用いた座標系を採用している。計算領域は北緯 22.4 度・東経 120 度～北緯 47.6 度・東経 150 度で、水平分解能は 5km の高解像度である。鉛直層数は 14 層 (1000, 975, 950, 925, 900, 850, 700, 500, 400, 300, 250, 200, 150, 100hPa) であり、時間分解能は 3 時間ごとで 1 日 8 回の予報を行っている。これら 8 回の予報の初期値のみを取り出して NICAM-CHASER による物理量との比較を試みた。なお、MSM で取り扱っている物理量は東西風、南北風、気温、相対湿度であり、地上物理量は海面更正気圧と降水量を、p 面物理量はジオポテンシャル高度と鉛直 p 速度を取り扱っている。

2.4.2 短期集中観測データ FAMIKA

2007 年 7 月 30 日から 8 月 16 日まで関東地方で行われた、微小粒子を対象とした広域的なフィールド集中観測とモデリングのプロジェクト FAMIKA (Fine Aerosol Measurement and Modeling in Kanto Area; Hasegawa et al., 2008; Fushimi et al., 2011) で得た観測データを本研究の比較観測データとして使用した。本研究で用いる観測地点は、つくば/茨城県つくば市 (国立環境研究所; 140.11°E, 36.08°N)、騎西/埼玉県加須市 (埼玉県環境科学国際センター; 139.55°E, 36.08°N)、前橋/群馬県前橋

市（群馬県衛生環境研究所; 139.09°E, 36.40°N）の3地点である。FAMIKAで観測された物理量は気温、風速、風向、湿度、降水量、日射量であり、観測された気体成分はO₃、NO_x、CO、SO₂である。また、観測の時間分解能は1時間である。

2.4.3 大気汚染物質常時観測データ

大気汚染物質常時観測データは環境省の大気汚染物質広域監視システムにより1時間ごとに測定しているデータである。観測された物理量は主に気温、風速、風向、湿度であり、気体成分はO₃、NO_x、CO、SO₂などであるが国設測定局では日射量や降水量の観測もされている。各成分の測定方法は、O₃は吸光光度法・電量法・紫外線吸収法・化学発光法を、NO_xは吸光光度法・化学発光法を、COは非分散型赤外線吸収法を、SO₂は溶液導電率法・紫外線蛍光法を、それぞれ採用している。

本研究で用いるデータの観測地点は関東地域では、国設東京/東京都新宿区 (139.71°E, 35.68°N)、多摩/東京都多摩市 (139.43°E, 35.63°N)、藤沢/神奈川県藤沢市 (139.49°E, 35.33°N)、市原/千葉県市原市 (140.11°E, 35.51°N)、成田/千葉県成田市 (140.35°E, 35.76°N)、さいたま/埼玉県さいたま市 (139.57°E, 35.92°N)、小山/栃木県小山市 (139.79°E, 36.31°N)、土浦/茨城県土浦市 (140.18°E, 36.16°N)の8地点である。また、国設名古屋/愛知県名古屋市 (136.95°E, 35.15°N)、国設京都/京都府八幡市 (135.69°E, 34.87°N)、国設大阪/大阪府大阪市 (135.53°E, 34.67°N)、国設尼崎/兵庫県尼崎市 (135.41°E, 34.72°N)、国設松江/島根県松江市 (133.01°E, 35.07°N)、倉敷/岡山県倉敷市 (133.77°E, 34.60°N)、北九州/福岡県北九州市 (130.85°E, 33.88°N)の7地点のデータも検証データとして用いた。

2.5 比較検証モデル

本研究における比較検証モデルは領域気象モデル WRF-ARW v2.2 (Weather Research and Forecasting – Advanced Research WRF)に領域大気質汚染モデル CMAQ v4.6 (Community Multiscale Air Quality Model)を組み込んだ WRF-CMAQ である。WRF は米国大気研究センター (NCAR)と米国環境予測センター (NCEP) を中心とする共同プロジェクト (WRF プロジェクト) によって開発された完全圧縮系の非静力学モデルである (Skamarock et al., 2005)。CMAQ は米国環境保護庁 (EPA) によって開発されているオイラー型の大気質シミュレーションモデルで、既に各物理・化学過程について複数の計算モジュールが整っている (Byun and Ching et al., 1999)。この WRF-CMAQ による関東地方での計算結果は、Morino et al., (2010a, 2010b)などで既に観測データとの整合性が確認されている。

WRF-CMAQ での計算期間は2007年7月24日~8月17日である。東アジア領域から三重ネスティングをして関東地方において水平分解能は5km、鉛直最下層70mと設定したものである。気象場はNCEP-FNLを用いて、第一番目の領域の境界条件はMIROC-CHASERで計算された値を用いている。エミッションデータは第二番目の領域ではREAS v1.11を、第三番目の関東領域ではEAGrid2000を使用している。従って、モデル比較で対象とした地域は関東であるため、本研究とほぼ同一のエミッションデータを使用したと考えてよい。

3. 夏季標準実験の結果および考察

ストレッチ法を適用した NICAM-CHASER によって計算された気象場の再現性は、概ね良く再現されていた(詳細は付録)ため、本章では化学成分の比較検証結果を中心に載せた。まず、NICAM-CHASER の改良前と改良後のオゾン濃度の変化について示す。図 3.1 では 2007 年 8 月 7 日から 8 月 16 日までのつくばにおけるオゾン濃度および NO_x 濃度の時系列変化を示した。NICAM-CHASER 改良前のオゾン濃度を橙線で、改良後のオゾン濃度を赤線で記した。また、青線では改良後の NO_x の濃度、黒線は FAMIKA で得たオゾンの観測値である。

特筆すべきは、全ての期間で日中にオゾン濃度のピークが現れる日変動が、従来の NICAM-CHASER はうまく再現できていなかったが、改良後にはうまく再現できていることである。また、観測値と比較するとモデルのオゾン濃度はオゾンの観測値に近づいていることが見てとれる。したがって、モデルの再現性が改善され、より正確なオゾンの日変動を表現できるようになった。

また、オゾン濃度を決める主要な化学物質である NO_x は夜間に増加し朝方にピークが表れ、昼間に減少する、オゾンとは反対の日変動を示す。図 3.1 にはその様子が見てとれる。この結果より、オゾンに関連する化学反応過程が NICAM-CHASER で正常に取り扱われていることがわかった。なお、モデルによる NO_x 濃度と観測値との比較検証は 3.3 章で行う。

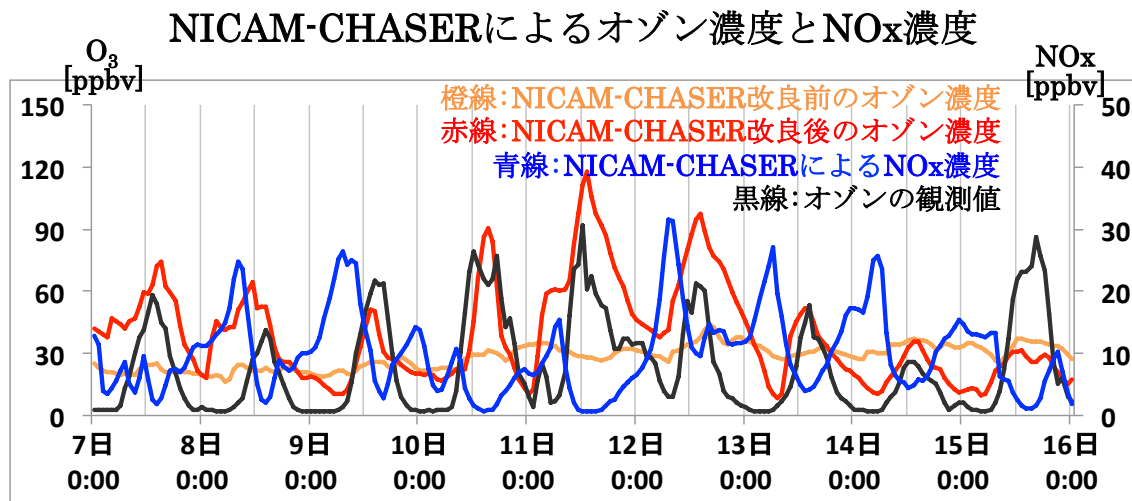


図 3.1 2007 年 8 月 7 日から 16 日までのつくばにおけるオゾン濃度と NO_x 濃度の時系列変化
橙線が改良前の NICAM-CHASER によるオゾン濃度を、赤線が改良後の NICAM-CHASER による
オゾン濃度を、青線が改良後の NICAM-CHASER による NO_x 濃度を示し、
黒線が FAMIKA で得た観測値である。

3.1 オゾン

3.1.1 各地点でのオゾン濃度の検証

図 3.2 では関東地方 9 地点における NICAM-CHASER と WRF-CMAQ による結果と観測値のオゾンの時系列変化を示した。観測値は前橋のみ FAMIKA による観測結果で、それ以外の地点は大気汚染物質常時観測データの観測値である。また NICAM-CHASER による結果と観測値の散布図を描画し相関確認を行った。

まず、図 3.1 で確認したオゾンの日変動が全ての地点において再現できている様子がみてとれる。特に 11 日や 16 日の新宿の日中や 11 日の多摩の日中では、観測値では 160ppbv 程度の高濃度の値を示しているが、NICAM-CHASER でも同程度の値を示すことができた。また、各地点における NICAM-CHASER の日変動は WRF-CMAQ による結果と比較しても、遜色ない結果である様子がみてとれる。

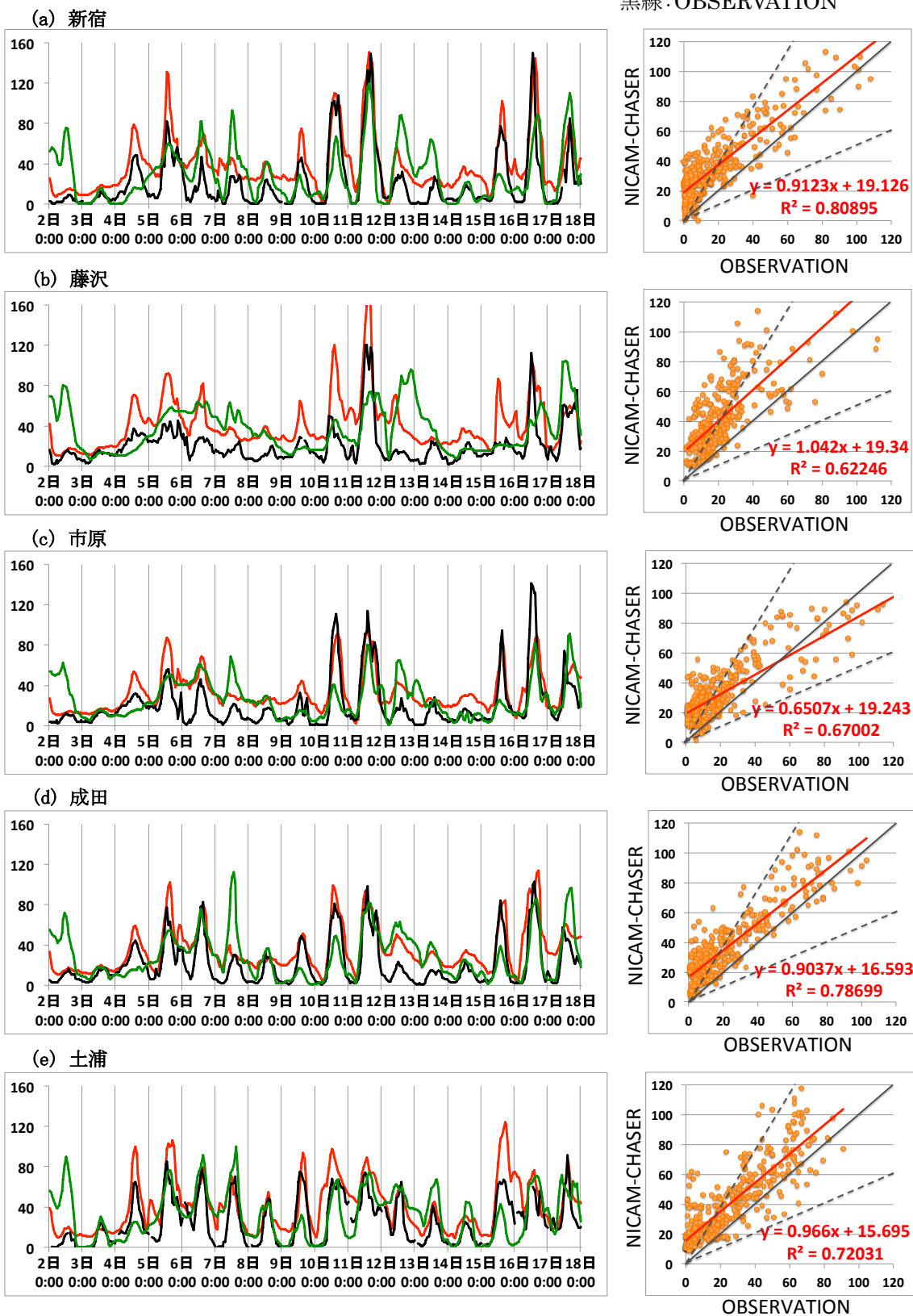
次に散布図を用いて観測値に対する NICAM-CHASER のより詳細な評価を行った。散布図には単回帰直線と決定係数を載せた。各 9 地点とも単回帰直線の傾きは 1 に近くよく相関がとれていることがわかる。しかし、20ppbv 程度の過大評価であり、この過大評価は夜間にオゾン濃度が 0 付近まで下がらないことに起因していると考えられる。このオゾン濃度の夜間過大評価は世界中の大気化学モデルで生じている共通の問題であり、NICAM-CHASER の精度をさらに高めるためには今後この原因追求に努める必要がある。

各地点の決定係数は新宿で 0.809、成田で 0.786、土浦で 0.720 と都心部の中心域及び北東の臨海部で非常に高い数値が示された。この結果、これらの地域ではとても精度が高いシミュレーションを行えることがわかった。市原は 0.67、藤沢は 0.622 と南部及び南東部の臨海部では決定係数の数値が先ほどの数値よりも少し下がった。これは、モデルの市原でのエミッションは過大評価であるためだと考えられる。3.2 章で確認するが、市原は前駆物質である NO_x 濃度が過大評価されている地点であるため NO_x の光解離反応が進み、オゾン濃度が過大評価されたことが原因であると推察される。付録で示したが、藤沢は関東地方南部の日射量が少し過大評価されていた川崎の地点と近い距離に位置している。そのため藤沢の日射量も過大評価であったと推測でき、日射量の過大評価により光解離反応の促進はオゾン濃度が過大評価されてしまった一因であると考えられる。

内陸部の決定係数は多摩で 0.785、さいたまで 0.722、小山で 0.578、前橋で 0.559 であった。都心部の西に位置する多摩及び北に位置するさいたまでは高い数値が示された。しかし、さいたまのさらに北に位置する小山では 0.578、さいたまの北西に位置する前橋では 0.559 と決定係数が下がってしまった。付録で示したが、内陸の地点ほど風の場のずれが生じているため、オゾンの移流を正確に表現できていなかったことが小山や前橋で決定係数が下がった原因であると推察される。なお、この結果よりさいたままでのオゾン濃度は精度よく再現できることが示された。

各地点におけるオゾン濃度

赤線: NICAM-CHASER
 緑線: WRF-CMAQ
 黒線: OBSERVATION



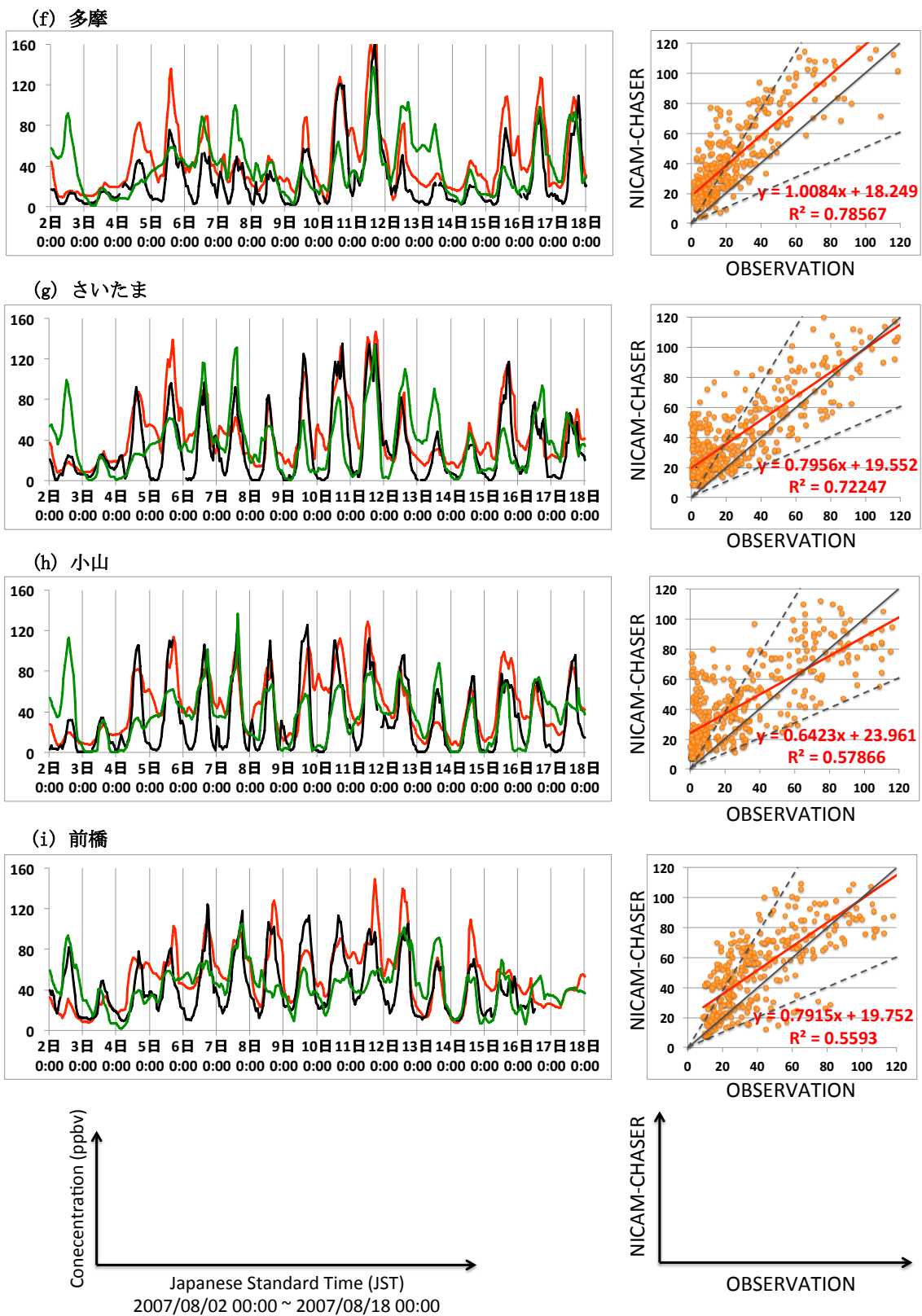


図 3.2 各地点でのオゾン濃度の時系列変化。

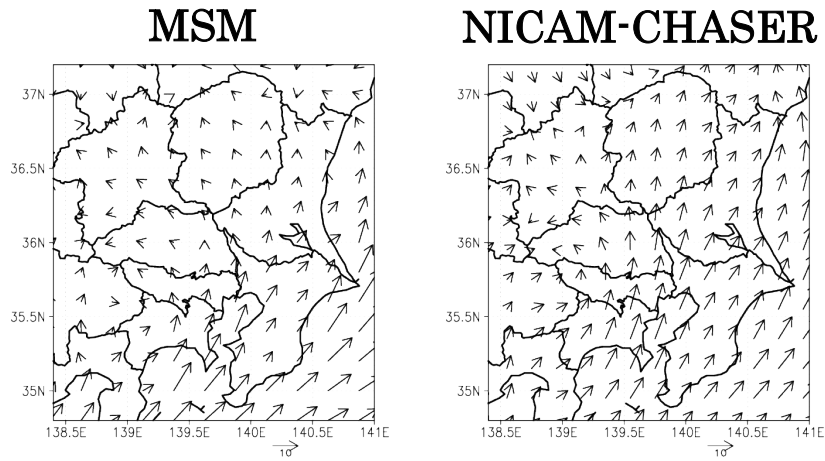
赤線が NICAM-CHASER、緑線が WRF-CMAQ による結果、黒線が観測値である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋である。

3.1.2 オゾン濃度の水平分布図

図 3.3 は 8 月 7 日 15:00 と 8 月 11 日 15:00 の関東域における水平風分布図を、図 3.4 では 8 月 7 日 12:00、15:00、18:00 のオゾン分布図を示した。図 3.5 は 8 月 11 日 12:00、15:00、18:00 のオゾン分布図である。8 月 7 日の関東地方の天気は概ね晴れで、この日は関東地方全域で南よりの風が卓越していた。図 3.3 より NICAM-CHASER による風の場合は関東地方全域で南よりの風が示しており、MSM による客観解析データとほぼ同様の風の場合を再現できていることがわかる。図 3.4 では、8 月 7 日 12:00、15:00、18:00 の 3 時間ごとの関東域におけるオゾン分布図を示したが、12:00 と 18:00 の風の場合も、15:00 の風の場合とほぼ同じ様子であった。図 3.4 をみると NICAM-CHASER の結果では都心部で発生した大気汚染物質が南よりの風によって北へ運ばれ、8 月 7 日 12:00 には 80ppbv 以上の濃度域が埼玉県北西部や群馬県南部、栃木県の南部に広がっていることがわかる。15:00 頃には群馬県南部や栃木県全域、茨城県北部で 100ppbv 以上の高濃度域が広がり、18:00 頃はオゾン濃度が減少に転じている様子がみてとれる。この一連の時間経過によるオゾン分布図の変化は左図の観測値の分布図と比較すると、各時刻とも非常によく再現できていることがわかる。右図には WRF-CWAQ による結果を示したが、8 月 7 日においては領域モデルである WRF-CMAQ の結果以上に NICAM-CHASER の結果の方が観測値に近いことがわかる。

図 3.5 では 8 月 11 日 12:00、15:00、18:00 のオゾン分布図を示した。この日の関東地方の天気も概ね晴れており、この日の関東地方では東よりの風が卓越していた。図 3.3 で 15:00 における水平風の分布図を示したが、この日も NICAM-CHASER による風の場合は MSM による客観解析データとほぼ同様の風の場合を再現できていることがわかる。この日は関東地方広域で高濃度のオゾンを観測した日であり、NICAM-CHASER では 12:00 の時点で神奈川県全域、東京都全域、埼玉県全域と栃木県南部で 100ppbv 以上の高濃度が示された。左図の観測値では高濃度域が東京都、埼玉県、神奈川県の中中央付近に位置しており、NICAM-CHASER では観測より高濃度域が広がった。15:00、18:00 の分布図をみると東からの風の影響を受け、山梨県の方向へ高濃度域が移っていく様子がみてとれる。しかし、どの時刻も NICAM-CHASER の高濃度域は観測より広がった。このことから、NICAM-CHASER の高濃度となる領域は観測と一致していたが、より広く広がっていたため、オゾンの水平拡散が現実よりも大きいことが考えられる。なお WRF-CMAQ の結果でも高濃度域が位置している場所は概ね一致していたが、観測よりも過小評価傾向であった。

(a) 8月7日 15:00



(b) 8月11日 15:00

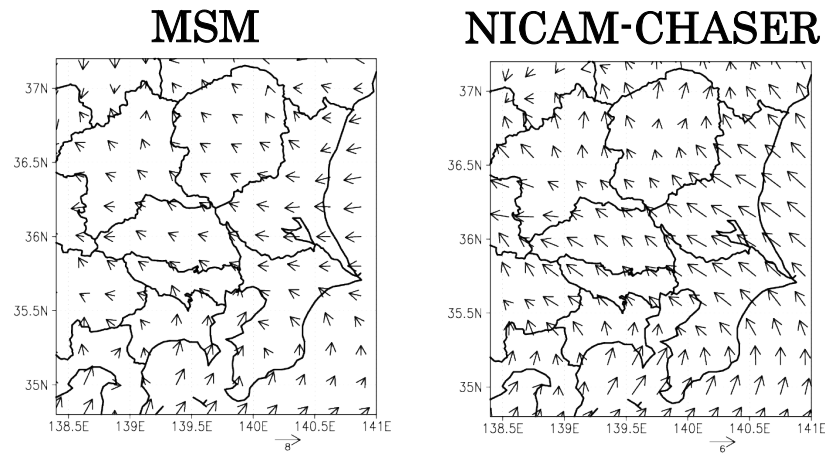


図 3.3 8月7日 15:00 と 8月11日 15:00 の NICAM-CHASER による水平風分布図と
MSM 客観解析データの水平風分布図

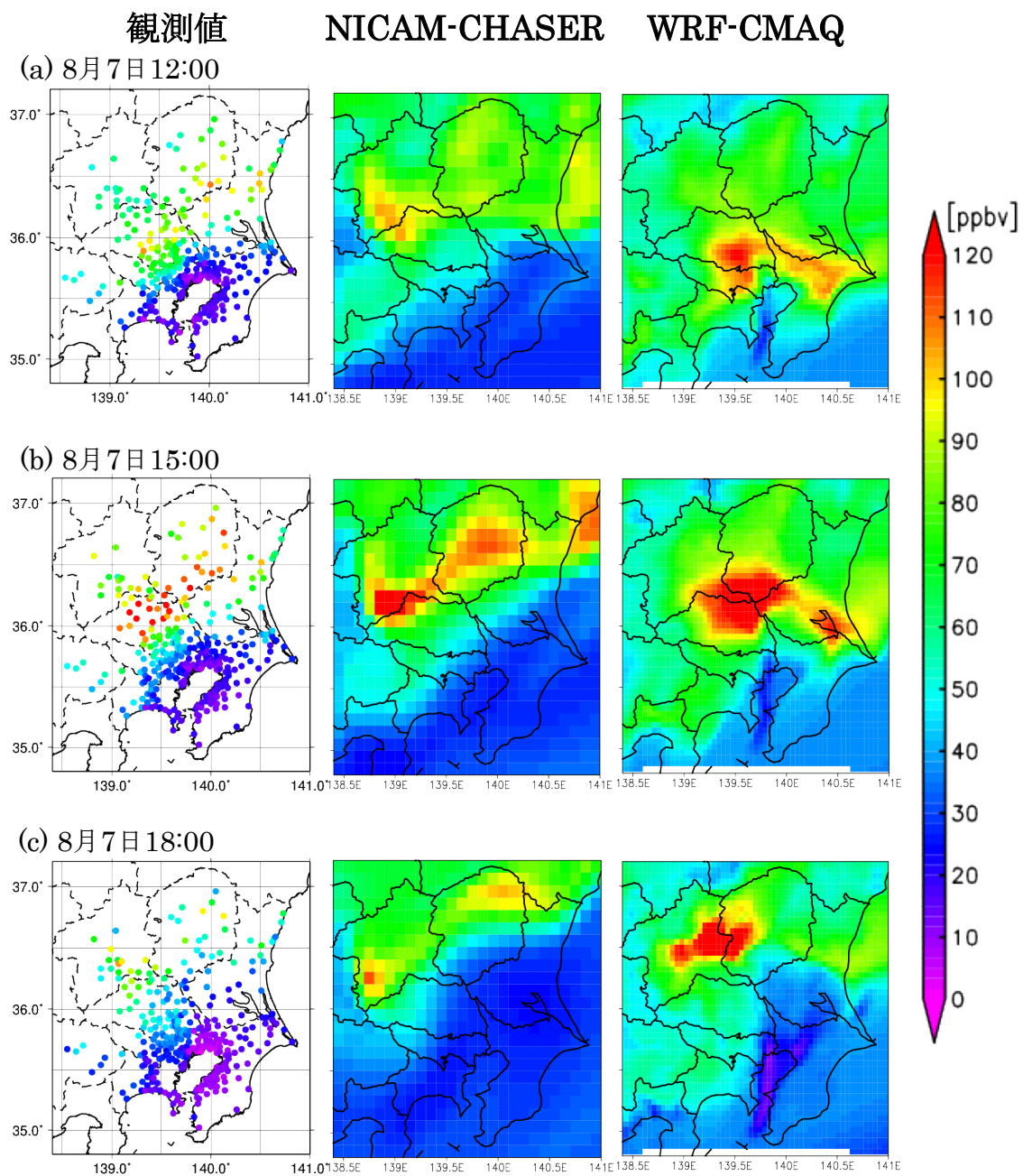


図3.4 8月7日12:00,15:00,18:00の関東地方における
NICAM-CHASER、WRF-CMAQ、観測によるオゾン分布図。

左図が観測値、中央図がNICAM-CHASERの結果、右図がWRF-CMAQの結果を示す。

(a)8月7日12:00、(b)8月7日15:00、(c)8月7日18:00である。

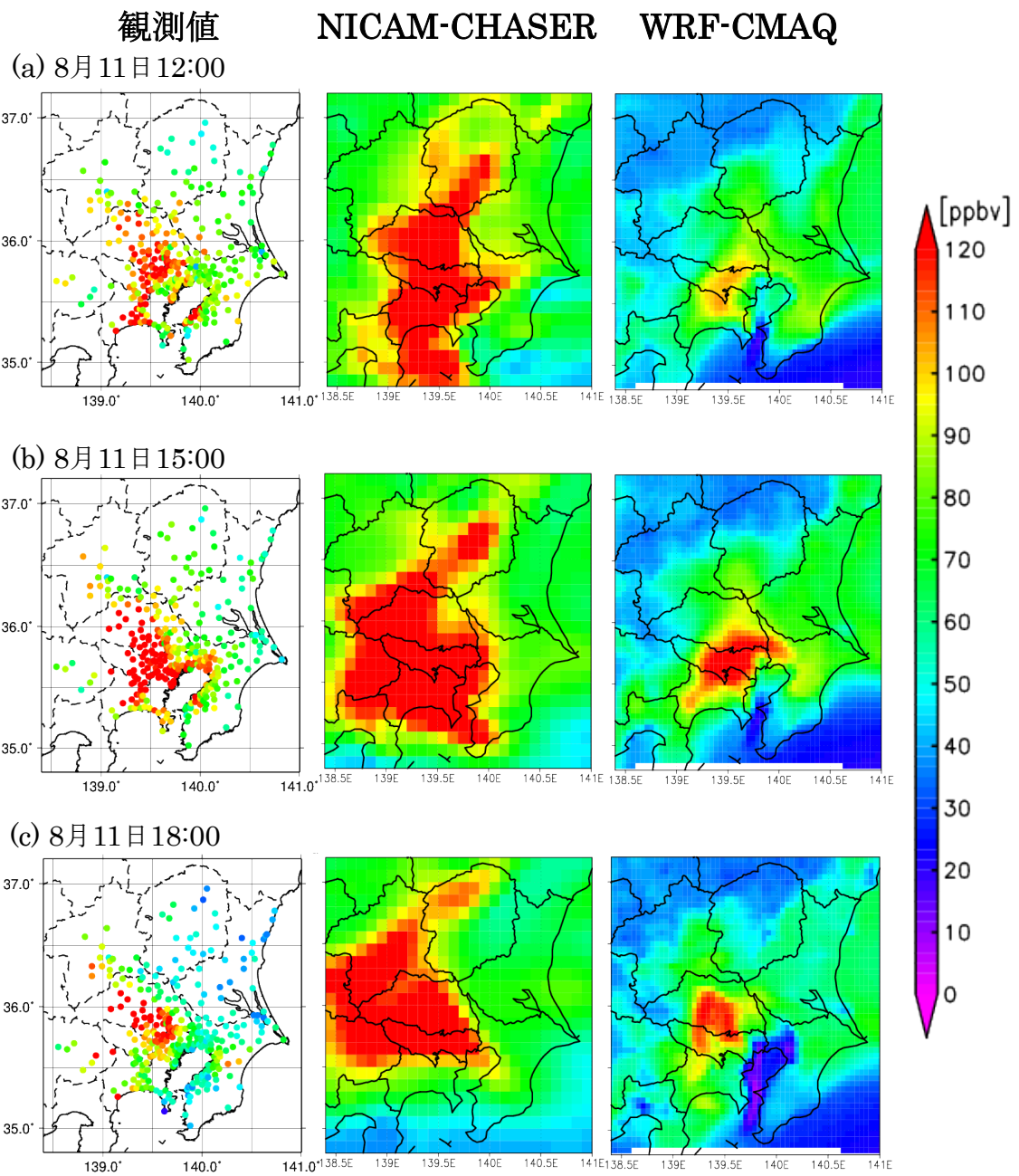


図 3.5 8月11日 12:00,15:00,18:00 の関東地方における

NICAM-CHASER、WRF-CMAQ、観測によるオゾン分布図。

左図が観測値、中央図が NICAM-CHASER の結果、右図が WRF-CMAQ の結果を示す。

(a)8月11日 12:00、(b)8月11日 15:00、(c)8月11日 18:00 である。

3.1.3 全国各地におけるオゾンの検証

夏季にオゾン濃度が高くなる西日本を中心に7地点でNICAM-CHASERによる計算結果と観測結果の比較を行った。図3.6より各地点でオゾンの日変動が表現出来ている様子がみてとれる。しかし、名古屋、八幡、倉敷は夜間観測値ほどオゾン濃度が下がらず、大阪、尼崎、松江、北九州は全体的に過大評価であった。考えられる要因としては、本研究では使用したストレッチ法では中心から遠ざかるほどモデル解像度が粗くなるため、西日本では東日本よりも低解像度であることが挙げられる。また、夜間に見られるオゾン低濃度が過大評価傾向にあるため、乾性沈着などの除去過程を改良する必要があることが示唆される。

各地点におけるオゾン濃度

赤線: NICAM-CHASER
黒線: OBSERVATION

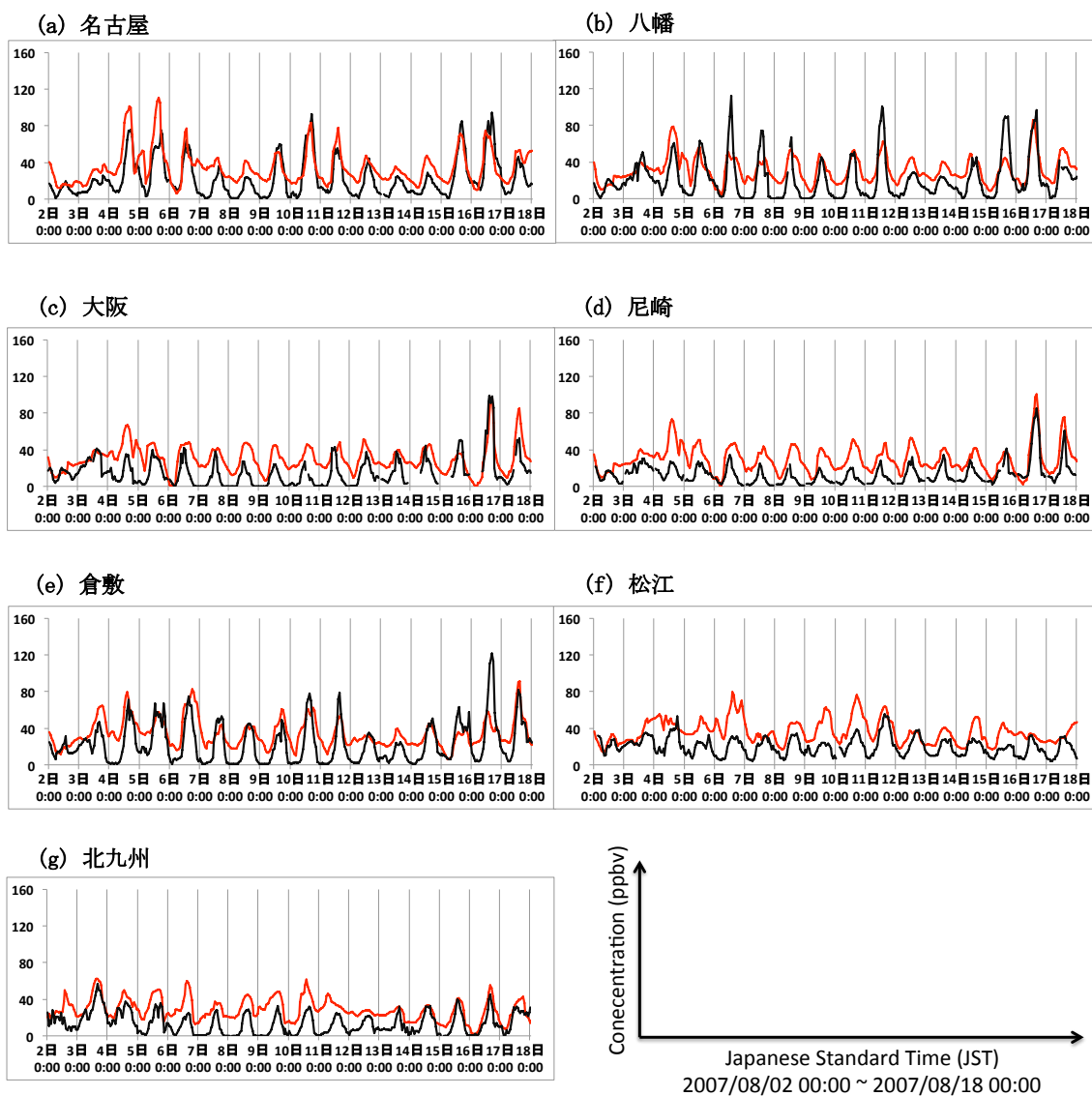


図 3.6 西日本の各地点でのオゾン濃度の時系列変化。赤線が NICAM-CHASER、黒線が観測結果である。(a)名古屋、(b)八幡、(c)大阪、(d)尼崎、(e)倉敷、(f)松江、(g)北九州

3.2 NO_x,OH ラジカル

オゾンに関連する微量気体成分として NO_x と OH ラジカル濃度の各地点における時系列変化を示す。図 3.7 では NO_x 濃度の NICAM-CHASER と観測値の時系列変化を示した。図 3.1 で示した通り、NO_x も日変動が生じる物質であるが、全ての地点において NO_x の日変動が確認できた。各地点で確認していくと成田、土浦の関東地方東部及び新宿や藤沢の都心域とその南部ではよく再現できていることがわかる。しかし市原はこの期間を通して過大評価であった。市原周辺に隣接している多くの工場からの NO エミッションが過大評価であるためだと推察される。一方で、特に 4 日から 12 日までの期間では、さいたまにおける過小評価が顕著であり、小山や前橋でも過小評価であった。この期間の新宿での風向は 5~7 日と 10~12 日は風向の変化が大きく、都心域から北に流れていない可能性があるが、7~10 日は概ね南風であり、都心域からさいたまが位置する北へ流れていくことが予測される。しかし、この期間もさいたまでの過小評価が確認された。このことからさいたまが過小評価である原因の一つに、反応性が高い NO_x はさいたまに移流するまでの間に様々な化学反応により消失したものと考えられる。また、NO は一次生成物質であることから、NO のエミッションインベントリの過小評価も考えられる。そのため感度実験などを行い、NO のエミッションインベントリを正確に評価する必要がある。

図 3.8 は OH ラジカルの NICAM-CHASER と WRF-CMAQ による算出結果の時系列分布を示した。OH ラジカルは式(1.6)によるオゾンの光解離反応によって生成されるため日射量が多いほど、かつオゾン濃度が高いほど OH ラジカルの生成量は増加する。OH ラジカルの最大値は藤沢のみ実験期間の前半で 3×10^7 (molecules cm⁻³) を超えた値を示したが、他の各地域の最大値は 3×10^7 (molecules cm⁻³) を超えない値であった。WRF-CMAQ による結果も同程度の最大値を示していたため、概ね妥当な値であると考えられる。藤沢で 3×10^7 (molecules cm⁻³) を超えた値を示したのは、関東地方南部では日射量が過大評価であることからオゾンの光解離反応が促進されたのではないかと考えられる。また、この期間中各地域で OH ラジカルが少ない日時を確認できたが、OH ラジカルが少ない日は雲が多く日射が遮られる日である。このことは、モデル間で雲の分布に違いがあることを意味しており、WRF-CMAQ では雲を表現できているが NICAM-CHASER は雲を表現できていない、もしくはその逆であるパターンも多々確認された。

各地点におけるNO_x濃度

赤線: NICAM-CHASER
黒線: OBSERVATION

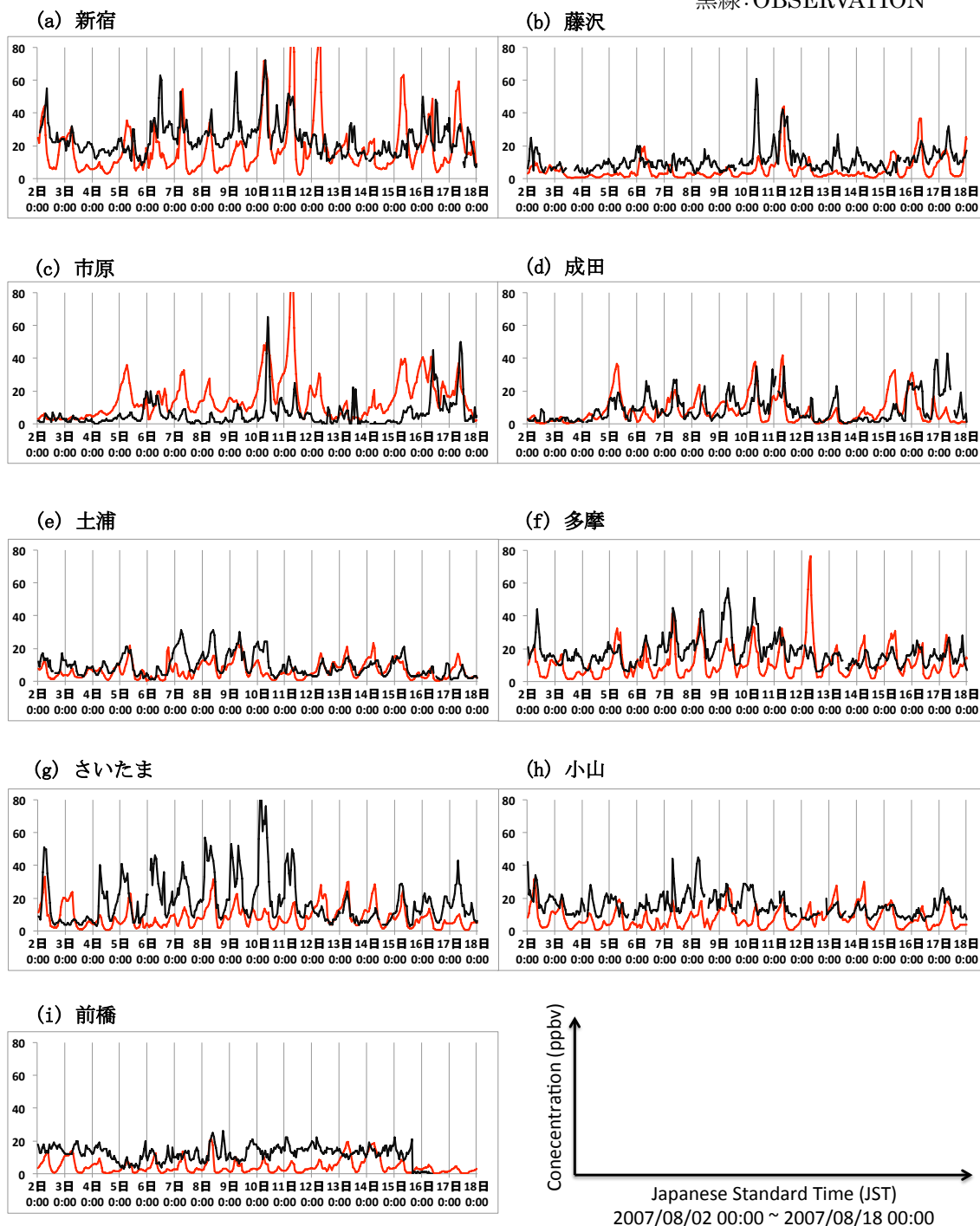


図 3.7 各地点での NO_x 濃度の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER による結果、黒線が観測値である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋

各地点におけるOH濃度

赤線: NICAM-CHASER
 緑線: WRF-CMAQ

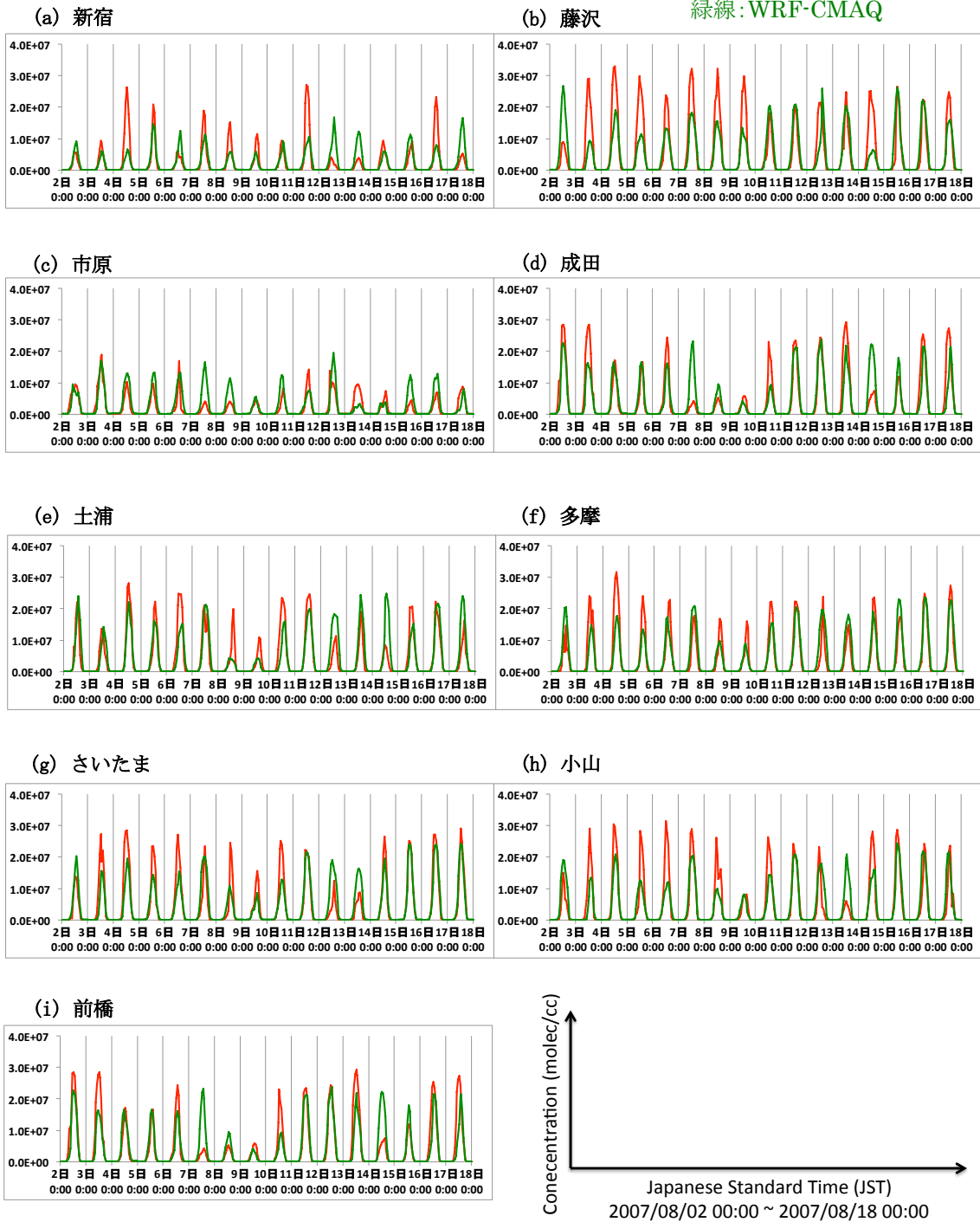


図 3.8 各地点での OH ラジカル濃度の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER、緑線が WRF-CMAQ による結果である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋

3.3 CO

3.3.1 各地点でのCO濃度の検証

図3.9ではCOのNICAM-CHASER、WRF-CMAQ、観測値の各6時間平均値を示した。COは一次生成物質であり他の微量気体成分に比べて寿命が長いため、COの濃度を決定する要因はエミッションと風による移流である。COの発生源は化石燃料の燃焼、バイオマス燃焼、メタンや他の炭化水素の酸化反応が挙げられるが、関東地方におけるCOの発生源は工業活動による化石燃料の燃焼が大きな割合を占める。そのため工業活動が盛んな都心部ではCOの放出が著しくCO濃度が高い傾向にある。そこでまずは都心部に注目して、NICAM-CHASERによるCO濃度の確認を行った。関東地方の都心部で人間活動が活発な地域の一つである新宿でのCO濃度は観測値よりも平均して100~200ppbv低い値がみてとれる。一方、周辺に多くの工場が隣接している工業地帯の市原のCO濃度は観測値と概ね近い値を示した。この結果より市原周辺の工業地帯からのCO排出量は再現できているが、東京湾西部に位置する人間活動が盛んな都心部ではエミッションインベントリの過小評価が示唆された。この他の各地点ではすべて過小評価であることが図3.8よりみられる。都心から離れた各地域では都心部のエミッションインベントリの過小評価に加えて、幹線道路のエミッションの過小評価も考えられる。幹線道路のエミッションもCOの排出源の一つであるが、幹線道路のエミッションは非常に細かい水平分解能で表現されるため、モデル中の1グリッド内でエミッションの量がなめされ、都心から離れた地域でのエミッションが過小評価になることも考えられる。

各地点におけるCO濃度

赤線: NICAM-CHASER
 緑線: WRF-CMAQ
 黒線: OBSERVATION

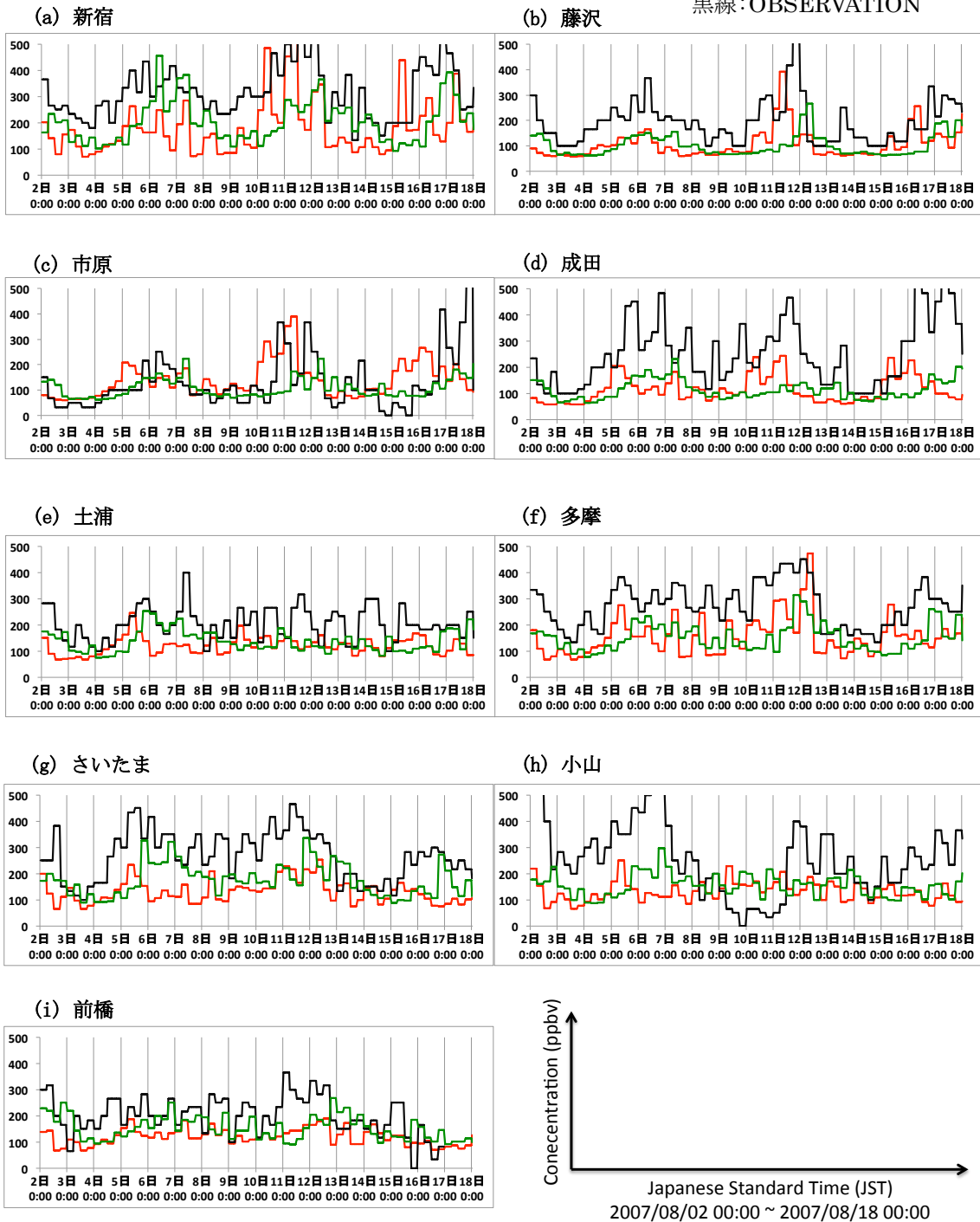


図 3.9 各地点での CO 濃度の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER、緑線が WRF-CMAQ による結果、黒線が観測値である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋

3.3.2 CO 濃度の水平分布図

図 3.10 は 8 月 13 日 9:00 の関東地方における水平風分布図を示した。8 月 13 日の午前中は概ね南よりの風が卓越しており、6:00 と 12:00 の風の分布図も 9:00 の風の分布図と同じような分布を示した。MSM による 9:00 の客観解析データも南よりの風の場を示しており 13 日の午前中は概ね風の場の再現性がとれている様子がわかる。図 3.11 では 8 月 13 日 6:00、9:00、12:00 の CO 濃度の水平分布図を示した。NICAM-CHASER による結果では 6:00 の分布図は 300ppbv 程度の CO 濃度が東京都東部、埼玉県東部、栃木県南部、茨城県南西部、千葉県北西部に広く広がっている様子がみとれる。また 500ppbv 程度の高濃度域が千葉県木更津市周辺でのみ確認された。左図には観測値による分布図を示したが 500ppbv 以上の高濃度域が東京湾周辺に点在している様子がみとれる。これらの図を比べると、NICAM-CHASER は観測で得られた水平分布を良く再現できていないことがわかる。また、NICAM-CHASER による結果では 9:00、12:00 と時間が経つにつれ 300ppbv 程度の CO の濃度域が減少していきながら北西に流れていく様子がみとれる。一方で、観測値による分布図では 9:00、12:00 と時刻が経過しても東京湾周辺では 500ppbv 以上の高濃度域が点在し続けていることがわかる。これらの図からも NICAM-CHASER による CO 濃度の分布図の再現性は低いといえる。なお、WRF-CMAQ による結果も最大値が 300ppbv 程度までであった。本研究とほぼ同一のエミッションデータを使用した WRF-CMAQ も過小評価が目立ったことから、CO のエミッションインベントリの排出量の過小評価や排出地の不一致などが示唆される。

8月13日9:00

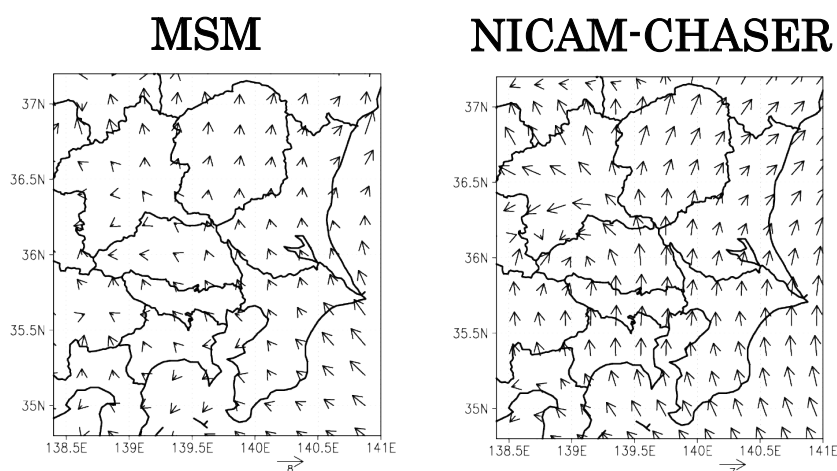


図 3.10 8 月 13 日 9:00 の NICAM-CHASER による水平風分布図と MSM 客観解析データの水平風分布図

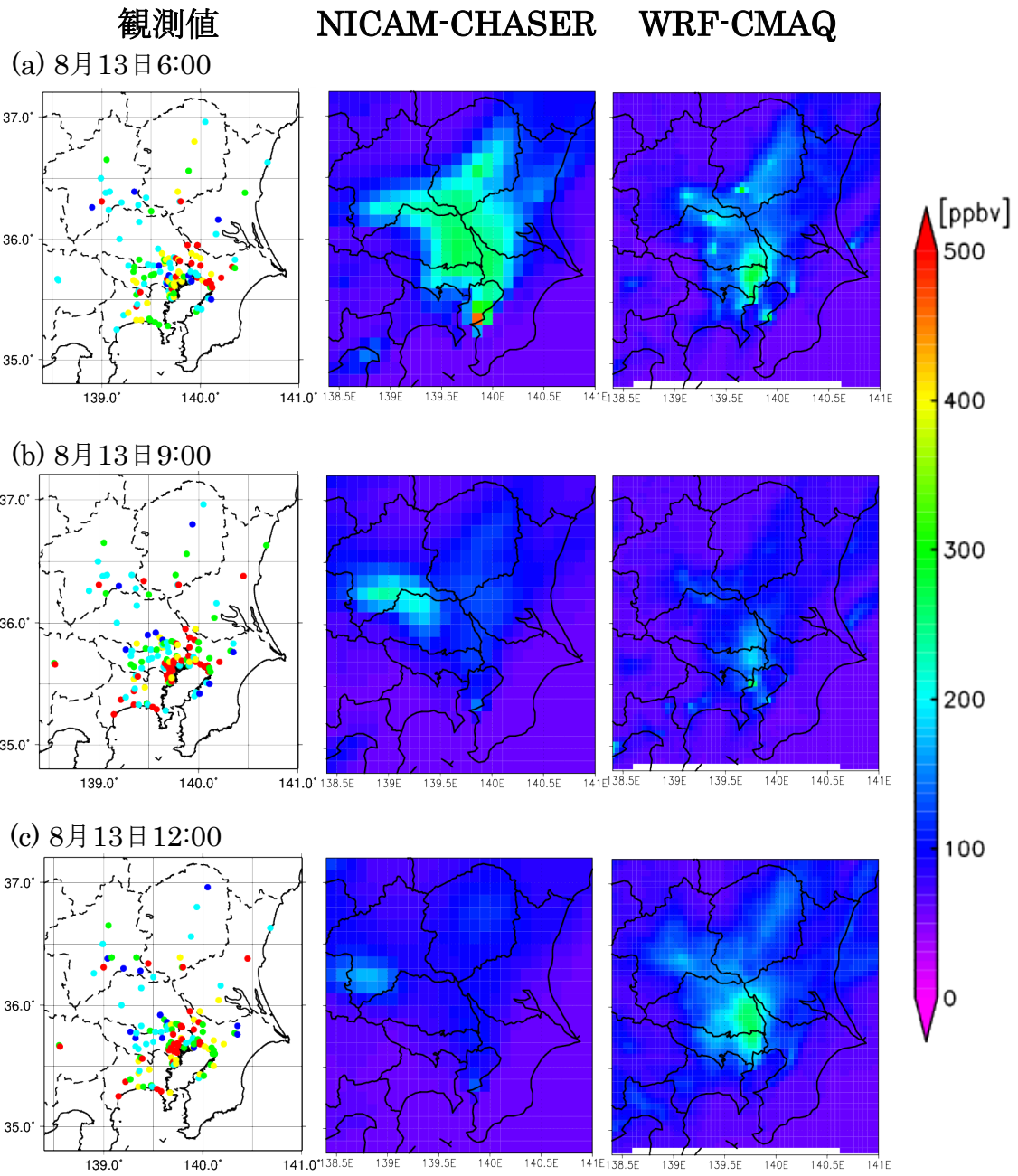


図 3.11 8月13日06:00,09:00,12:00の関東地方における
NICAM-CHASER、WRF-CMAQ、観測によるCO分布図。

左図が観測値、中央図がNICAM-CHASERの結果、右図がWRF-CMAQの結果を示す。

(a)8月13日06:00、(b)8月13日09:00、(c)8月13日12:00である。

4 春季実験の結果

本研究では関東地方に焦点を当て NICAM-CHASER の検証を行ってきたが、ストレッチ格子法を用いた全球でのシミュレーションを行っているため、特に東アジア地域でも計算結果が得られている。また、アジア域からの越境汚染は日本の大気汚染物質質量にも影響を及ぼしているため、越境汚染が深刻な春季に焦点を当て、2007年4月2日から4月20日までの実験を行った。図4.1には4月10日から19日までの10日間における、北九州、大阪、新宿におけるオゾン濃度の計算結果と観測値の時系列変化を示した。3章の夏季実験では大阪、北九州ともに過大評価がみられたが、図4.1によると北九州、新宿、大阪全ての地点でオゾン濃度は概ね再現できていることがわかる。特に北九州では、モデルと観測の双方で60ppbvを超える高い値を示していた。なお、ここで用いた観測値は大気汚染物質常時観測データの観測値である。

図4.2では北九州、大阪、新宿における2007年4月10日から4月19日までの10日間におけるNICAM-CHASERによるオゾン濃度の平均値と大気汚染物質常時観測データの平均観測値と同時に、2007年8月10日から8月20日までのNICAM-CHASERによるオゾン濃度の平均値と大気汚染物質常時観測データの平均観測値を示した。図4.2よりいずれの地点においても、モデル結果と観測値による結果どちらも、夏季に比べて春季の方が平均オゾン濃度が高いことがわかる。従って、モデルで季節変動性をうまく再現できたといえる。

図4.1の北九州の観測値の時系列分布図によると4月13日から4月14日までモデル結果は観測データをよく再現しており、40ppbv以上の値を示し続けている期間であった。そこで、再現性が高いこの期間の4月13日の午後から夜間にかけての東アジア地域のオゾン分布を図4.3に示した。左図は東アジア地域でのオゾン分布である。右図では、左図で示した東アジアのオゾン分布と、オゾン前駆気体など全ての一次排出気体のエミッションを日本領域以外で0に設定して算出したオゾン分布との差を図示した。この図から、中国臨海部や韓国で生成されたオゾンが13日の18:00ごろから風によって輸送され、14日0:00頃には九州地方の北部や山陰地方に20-30ppbvのオゾンが到達していることが確認できる。今後、大気汚染物質の排出量が著しい地域ごとにエミッションを抑制した実験を行うことで、その地域からの越境汚染の寄与度を定量的に見積もることが可能になり、越境汚染の正確な影響評価に繋がると考えられる。また、その地域以外のエミッションを抑制することで、その地域からの大気汚染物質がどの地域にどの程度の輸送されているのか、正確に評価することができる。

春季の主要地点のオゾン濃度

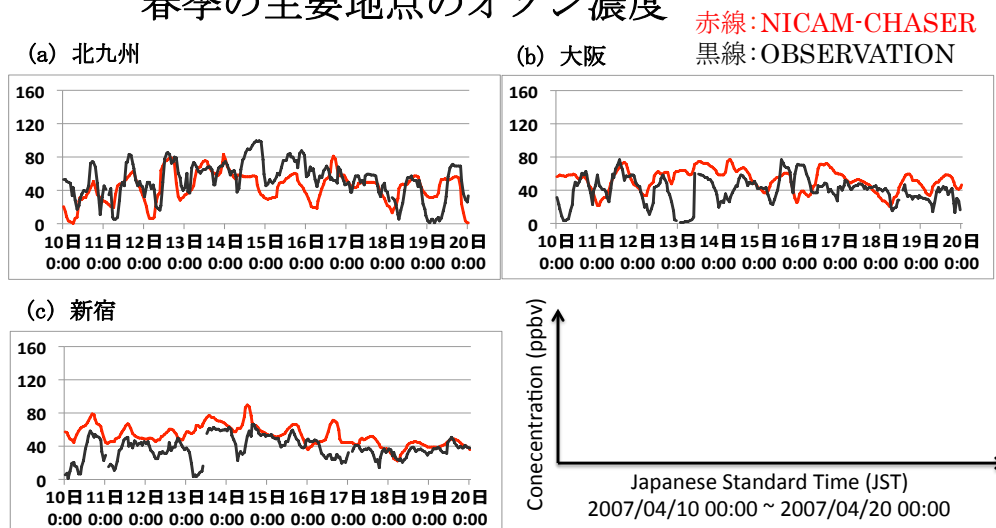


図 4.1 北九州、大阪、新宿での 2007 年 4 月 10 日から 4 月 20 日までのオゾン濃度の時系列変化。
赤線が NICAM-CHASER、黒線が観測結果である。(a)北九州、(b)大阪、(c)新宿

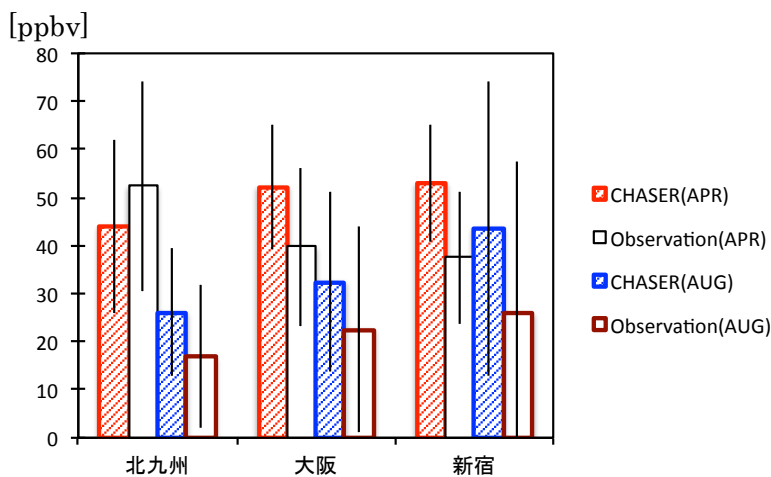


図 4.2 北九州、大阪、新宿における 4 月 2 日から 20 日までと 8 月 2 日から 20 日までのモデル結果および観測値の平均オゾン濃度。NICAM-CHASER によるオゾン濃度は 4 月 2 日から 20 日までの平均を赤い棒グラフで、8 月 2 日から 20 日までの平均を青い棒グラフで示す。白い棒グラフは 4 月 2 日から 20 日までの平均観測値を、濃赤で囲まれた白い棒グラフは 8 月 2 日から 20 日までの平均観測値を示す。なお、黒線の鉛直バーは標準偏差を示す。

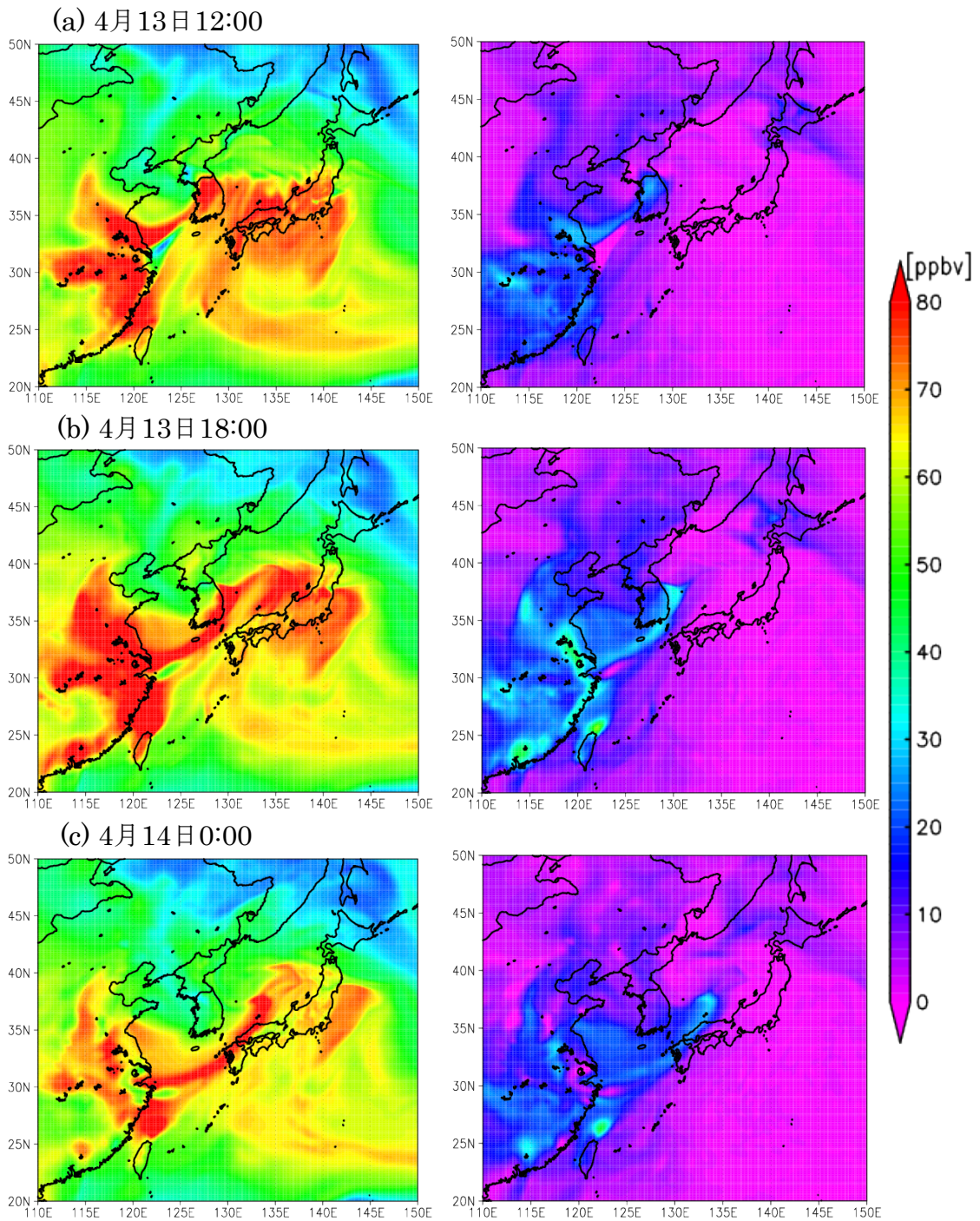


図 4.3 左図:東アジアにおけるオゾン分布

右図:左図と日本以外のエミッションを0にして計算したオゾン分布の差

(a)4月13日 12:00、(b)4月13日 18:00、(c)4月14日 0:00

5 まとめと今後の展望

本研究では時空間的に不均一な分布をするオゾンおよびその前駆気体の領域規模での再現性の向上を目指し、NICAM-CHASER の改良に取り組んだ。数値実験は、夏季にオゾン濃度が高くなる関東地方に焦点を当て、観測データが豊富にある 2007 年 8 月を対象とした。

従来の NICAM-CHASER では、観測で得られるようなオゾンの日変動がうまく再現できていなかったが、気相反応の計算モジュールの時間分解能を修正し、光解離反応で重要な物理量である J 値の波長分解能を細かくした結果、本研究で示した改良した NICAM-CHASER ではオゾンの日変動がうまく再現されるようになった。また、地形の取り扱いも改良し、物質の輸送を決める風の場の再現性を向上することができた。

関東地方のオゾンの水平分布は観測値による水平分布と非常に良く相関がとれていた。関東地方 9 地点におけるオゾンの時系列変化を観測値と比較したところ、決定係数は小山と前橋以外の各地点では 0.6 以上と非常によく相関がとれていることが明らかになった。小山や前橋で決定係数が下がった原因は風の場のずれによりオゾンの移流を正確に表現出来ていないからだと推察される。また、世界中の大気化学モデルで生じている夜間オゾン濃度の過大評価も確認された。今後、この夜間過大評価の原因追求に尽力する必要がある。次に、オゾン生成に関連する NO_x は、その日変動をモデルで再現できたが、その濃度は関東のほとんどの地域で過小評価であった。オゾンの光解離反応で生成される OH ラジカルは概ね WRF-CMAQ と同程度の値を確認できた。NICAM-CHASER と WRF-CMAQ の OH ラジカル濃度の差はモデル間の雲の分布の違いによるものであり、OH ラジカル濃度が少ないのは雲によって日射が遮られているためであると推測される。また、モデル計算による CO の水平分布は観測値による水平分布図とあまり相関がみられなかった。CO は NICAM-CHASER、WRF-CMAQ とともに関東のほぼ全域で過小評価であったため、エミッションインベントリの過小評価が考えられる。また、幹線道路のエミッションなど局所的な CO のエミッションはモデルグリッドサイズでは量がなめされ、過小評価になる傾向がある。上記のような検証を西日本各地域でも行った。オゾン濃度の時系列変化では全地点でオゾン濃度の日変動は確認できたが、オゾン濃度の過大評価が顕著であった。今後、関東地方以外の各地点におけるオゾン濃度の検証および、オゾンに関連する前駆物質や気象場の検証を進め、オゾン濃度が過大評価になった原因を追求する必要があると考えられる。

越境汚染の激しい春季を対象とした数値実験も試みた。2007 年 4 月のオゾン濃度の時系列分布図は新宿、大阪、北九州 3 地点において概ねよい再現性がみられた。また、北九州や大阪では観測結果のようにモデル結果でも春季のオゾン濃度の平均値の方が夏季よりも高い値を示せた。2 次元分布図でも中国や韓国からの越境汚染が示唆された。各地域からの越境汚染を定量的に明らかにするためには各地域からのエミッションを抑制した感度実験を行う必要があると考えられる。今後は各地域からのエミッションを抑制した感度実験を進めていくことで各地域からの越境汚染の寄与率を算出し、東アジア規模および全球規模での越境汚染の影響評価に繋げていく必要がある。

謝辞

本研究では東京大学大気海洋研究所の佐藤正樹教授、名古屋大学大学院環境学研究科地球環境科学専攻の須藤健悟准教授、理化学研究所計算科学研究機構の富田浩文様、八代尚様をはじめ多くの方々が開発に努めている NICAM-CHASER モデルを使用させていただきました。そして、国立環境研究所の森野悠様、大原利眞様には WRF-CMAQ モデルの計算結果を提供していただきました。また国立環境研究所が種々の研究機関と共同で実施した広域的なフィールド集中観測とモデリングのプロジェクト(FAMIKA)により収集された観測データ、環境省が行っている大気汚染物質広域監視システムにより収集された観測データ、日本及びその近海の大気を対象とした気象庁の数値予報モデル(MSM)による計算データ、米国国立環境予報センター(NCEP)の客観解析データを使用させていただきました。皆様に厚く御礼申し上げます。ありがとうございました。

本研究は東京大学大気海洋研究所気候システム研究系中島映至教授のご指導の下に行いました。中島先生には全球モデルを用いた領域規模での微量気体のモデリングというチャレンジングな研究テーマを頂いたことに心から感謝申し上げます。本当にありがとうございました。

中島研究室の先輩で国立環境研究所の研究者である五藤大輔さんには本研究で用いたモデルに関する情報をはじめ、研究に関する数々のご助言を頂きました。さらに、研究発表の場があると発表直前まで発表資料のチェックをして頂き、そしてこの修士論文も幾度もチェックして頂き、大変お世話になりました。ありがとうございました。中島研究室の先輩で理化学研究所計算科学研究機構の研究者である佐藤陽祐さんにもご助言を頂きました。特にディスカッションを通して理路整然たるご意見を伺ったことで論理的な考え方、研究の進め方について学ばせて頂きました。

同研究所の特任研究者である鶴田治雄さん、井上豊志郎さんには整備していただいたデータを使わせて頂きました。さらに、研究に関する大変貴重なアドバイスも多々頂きました。竹中栄晶さんには整備していただいた計算機を使わせて頂きました。打田純也さんには一緒にプログラムを読んで下さったり、英文の添削をして下さったりと困っているときには強力なご支援を頂きました。また、よくサッカーに誘って下さり気分転換の機会を頂きました。及川栄治さんには、デスクが近かったこともあり、質問を聞いてくださったり、愚痴を聞いてくださったりと、様々は面でお世話になりました。橋本真喜子さんはいつも笑顔で優しく接して下さりよく面倒をみて頂きました。大方めぐみさんはひょっこり現れては様々な話を聞かせて下さり、リフレッシュの機会を頂きました。三澤翔大さんは大学院での2年間、研究に関して常に面倒をみていただきました。計算機について無知な私に、親切丁寧な三澤さんからの教えがなければ、きっとこの修士論文は書けなかったことだと思います。皆様のお陰で充実した研究生活を送ることが出来ました。ありがとうございました。

今須良一准教授、林洋司さんをはじめ、今須研究室の皆様には放射コロキウムを通して研究に対するご指導をいただきました。

苦楽を共にした同期の皆様のお陰で有意義な大学院生活を送ることができました。

最後に多大な支援を頂いた両親に心から感謝をいたします。

参考文献

- Brasseur, G., Kiehl, J., Muller, J., Schneider, T., Granier, C., Tie, X., Hauglustaine, D.: Past and future changes in global tropospheric ozone: Impact on radiative forcing. *Geophysical Research Letters* 1998, 25 (20), 3807-3810.
- Byun, D., Schere, K.: Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. *Applied Mechanics Reviews* 2006, 59 (1-6), 51-77.
- Carmichael, G. R., Adhikari, B., Kulkarni, S., D'Allura, A., Tang, Y., Streets, D., Zhang, Q., Bond, T. C., Ramanathan, V., Jamroensan, A., Marrapu, P.: Asian aerosols: current and year 2030 distributions and implications to human health and regional climate change. *Environmental Science and Technology* 2009, 43, 5811-5817.
- Ehhalt, D., Rohrer, F., Wahner, A.: Sources and distribution of NO_x in the upper troposphere at northern midlatitudes. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 1992, 97 (D4), 3725-3738.
- Fast, J., Gustafson, W., Easter, R., Zaveri, R., Barnard, J., Chapman, E., Grell, G., Peckham, S.: Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully coupled meteorology-chemistry-aerosol model. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 2006, 111 (D21).
- Fushimi et al.: Radiocarbon (C-14) Diurnal Variations in Fine Particles at Sites Downwind from Tokyo, Japan in Summer. *Environmental Science and Technology* 2011, 45 (16), 6784-6792.
- Goto, D., Dai, T., Satoh, M., Tomita, H., Uchida, J., Misawa, S., Inoue, T., Tsuruta, H., Ueda, K., Ng, C.F.S., Takami, A., Sugimoto, N., Shimizu, A., Ohara, T., Nakajima, T.: Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan. *Geoscientific Model Development Discussion* 2014., 7,131-179.
- Hasegawa, S., Kobayashi, S., Ohara, T., Tanabe, K., Hayami, H., Yomemochi, S., Umezawa, N., Iijima, A., and Kumagai, K.: Fine aerosol measurement and modeling in Kanto area (1), overview of measurement, *Proceedings of the 49th Annual Meeting of the Japan Society for Atmospheric Environment* 2008, 377, (in Japanese).
- Huang et al., : Multi-scale modeling study of the source contributions to near-surface ozone and sulfur oxides levels over California during the ARCTAS-CARB period. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2011, 11 (7), 3173-3194.
- IPCC-AR5: Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group 1 to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge Univ. Press, Yew York, 2013.
- Kanaya, Y., Fukuda, M., Akimoto, H., Takegawa, N., Komazaki, Y., Yokouchi, Y., Koike, M.,

- Kondo, Y.: Urban photochemistry in central Tokyo: 2. Rates and regimes of oxidant (O₃+NO₂) production. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 2008, 113 (D6).
- Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., Murano, K.: Development of multiple-species 1 km x 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan. *Atmospheric Environment* 2007, 41 (16), 3428-3439.
- Kobayashi, K., Okada, M., Nouchi, I.: Effect of ozone on dry-matter partitioning and yield of japanese cultivars of rice (*oryza-sativa*). *Agriculture Ecosystems & Environment* 1995, 53 (2), 109-122.
- Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Janssens-Maenhout, G., Fukui, T., Kawashima, K., and Akimoto, H.: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys* 2013, 13, 11019–11058, doi:10.5194/acp-13-11019-2013.
- Lamarque et al.; Historical (1850-2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: Methodology and application. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2010, 7017-7039.
- Lee et al.; Evaluation of preindustrial to present-day black carbon and its albedo forcing from Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 2013, 2607-2634, doi:10.5194/acp-13-2607-2013.
- Lelieveld, J., Dentener, F.: What controls tropospheric ozone? *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 2000, 105 (D3), 3531-3551.
- Lesser, V., Rawlings, J., Spruill, S., Somerville, M.: Ozone effects on agricultural crops-statistical methodologies and estimated does-response relationships. *Crop Science* 1990, 30 (1), 148-155.
- Mellor, G. L. and T. Yamada: Development of a turbulence closure model for geostrophic fluid problems, *Rev. Geophys.* 1982, 20, 851-875.
- Mellor, G. L., Yamada, T.: Hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary-layers. *Journal of the Atmospheric Sciences* 1974, 31 (7), 1791-1806.
- Miura, H., Satoh, M., Nasuno, T., Noda, A. T.: Oouchi, K., A Madden-Julian Oscillation event realistically simulated by a global cloud-resolving model. *Science* 2007, 318 (5857), 1763-1765.
- Miyamoto, Y., Kajikawa, Y., Yoshida, R., Yamaura, T., Yashiro, H., Tomita, H.: Deep moist atmospheric convection in a subkilometer global simulation. *Geophysical Research Letters* 2013 40(18), 4922-4926. DOI:10.1002/grl.50944.
- Morino, Y., Chatani, S., Hayami, H., Sasaki, K., Mori, Y., Morikawa, T., Ohara, T., Hasegawa, S., and Kobayashi, S.: Evaluation of ensemble approach for O₃ and PM_{2.5} simulation, *Asian Journal of Atmos. Environ* 2010a, 4, 150–156.
- Morino, Y., Chatani, S., Hayami, H., Sasaki, K., Mori, Y., Morikawa, T., Ohara, T., Hasegawa, S.,

- and Kobayashi, S.: Inter-comparison of chemical transport models and evaluation of model performance for O₃ and PM_{2.5} prediction – case study in the Kanto Area in summer 2007, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ* 2010b, 45, 212–226, (in Japanese).
- Moss et al.: The next generation of scenarios for climate change research and assessment, *Nature* 2010, 463, 747–756, doi:10.1038/nature08823.
- Nakanishi, M. and Niino, H.: An improved Mellor-Yamada level-3 model with condensation physics: Its design and verification. *Boundary-Layer Meteorology* 2004, 112 (1), 1-31.
- Nakanishi, M. and Niino, H.: Development of an Improved Turbulence Closure Model for the Atmospheric Boundary Layer. *Journal of the Meteorological Society of Japan* 2009, 87 (5), 895-912.
- Nagashima, T., Ohara, T., Sudo, K., Akimoto, H.: The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2010, 10, 11305–11322.
- Niwa, Y.: Numerical study on atmospheric transport and surface source/sink of carbon dioxide, Ph.D thesis, Department of Earth and Planetary Science, University of Tokyo, Japan, pp178. 2010.
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., Hayasaka, T.: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2007, 7 (16), 4419-4444.
- Satoh, M., Matsuno, T., Tomita, H., Miura, H., Nasuno, T., Iga, S.: Nonhydrostatic icosahedral atmospheric model (NICAM) for global cloud resolving simulations. *Journal of Computational Physics* 2008, 227 (7), 3486-3514.
- Sekiguchi, M. and Nakajima, T.: A k-distribution-based radiation code and its computational optimization for an atmospheric general circulation model. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* 2008, 109 (17-18), 2779-2793.
- Stevenson et al.: Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP). *Atmospheric Chemistry and Physics* 2013, 13 (6), 3063-3085.
- Sudo, K. and Akimoto, H.: Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 2007, 112 (D12).
- Sudo, K., Takahashi, M., Akimoto, H.: CHASER: A global chemical model of the troposphere - 2. Model results and evaluation. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 2002, 107 (D21).
- Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., Akimoto, H.: CHASER: A global chemical model of the troposphere - 1. Model description. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 2002, 107 (D17).

- Suzuki, K., Nakajima, T., Satoh, M., Tomita, H., Takemura, T., Nakajima, T. Y., Stephens, G. L.: Global cloud-system-resolving simulation of aerosol effect on warm clouds. *Geophysical Research Letters* 2008, 35 (19).
- Tanimoto, H., Sawa, Y., Matsueda, H., Uno, I., Ohara, T., Yamaji, K., Kurokawa, J., Yonemura, S.: Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia. *Geophysical Research Letters* 2005, 32 (21).
- Tomita, H.: A Stretched Icosahedral Grid by a New Grid Transformation. *Journal of the Meteorological Society of Japan* 2008a, 86, 107-119.
- Tomita, H: New microphysics with five and six categories with diagnostic generation of cloud ice. *Journal of the Meteorological Society of Japan* 2008b, 86, 121-142.
- Tomita, H. and Satoh, M.: A new dynamical framework of nonhydrostatic global model using the icosahedral grid. *Fluid Dynamics Research* 2004, 34 (6), 357-400.
- US EPA.: Air Quality Criteria for Ozone and Related Photochemical Oxidants (2006 Final)
- van Noije et al.,: Multi-model ensemble simulations of tropospheric NO₂ compared with GOME retrievals for the year 2000. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2006, 6, 2943-2979.
- World Meteorological Organization (WMO), Scientific Assessment of Ozone Depletion, 1994, WMO Global Ozone Research and Monitoring Project 1995, Rep. 37, Geneva,.
- MEXT/RECCA/SALSA : 大気環境物質のためのシームレス同化システムの構築と応用 2014
- 環境省 報道発表資料 : 平成 22 年光化学大気汚染の概要 -注意報等発令状況、被害届出状況- , 2013
- 国立環境研究所 環境儀 No.33 大原利真 : 越境大気汚染の日本への影響 , 2009
- 田村憲治、松本幸雄、佐々木寛介、椿貴博 : 地球温暖化と大気汚染 : 光化学オキシダント濃度への影響と超過死亡リスク, 地球環境 Vol.14 No.2. 2009, p271-277.

付録 関東地方各地点における気象場の検証

本研究で対象とした2007年8月2日から8月18日までの期間の気象場の特徴を述べる。2007年8月2日~4日にかけて台風が接近した。そのためこの期間は風速が強く、南よりの風が卓越していた。また、この期間の天気は曇であったが降水はほとんど無かった。その他の期間は概ね晴れていた。

図A.1では関東地方9地点における風速の時系列変化によるモデル結果と観測結果の比較図を示した。8月2日~8月4日にかけて台風の接近による風速の強まりがよく表現されていることがわかる。特に藤沢、市原、成田、土浦の関東南部及び東部の臨海地域では非常によく再現できている。多摩、さいたま、小山、前橋の内陸地域と新宿では約5m/sほど過大評価であった。その他の期間では新宿、多摩、さいたまにおいて日中の過大評価が少しみられたが、全体的には概ねよく再現できており、風速が日中上昇し夜間に減少する日内変動が再現できていた。

図A.2では各地点における風向の時系列変化の図を示した。研究対象期間中、新宿、藤沢、市原、成田、土浦の臨海地域では主に南風が卓越していたが、8月10-11日にかけてと16-18日にかけて、風向の変化が生じた。NICAM-CHASERによる結果でも8月10-11日の期間と16-18日の期間の風向の変化を概ね良く再現できていることがわかる。これらの地域における風向は非常によく再現できていることが示された。内陸部も概ねよく再現できているが、多摩、さいたま、小山、前橋の順に、より内陸に位置する地点の方がMSMとのずれが大きいく。観測結果からも、内陸の地域の方が臨海の地域に比べて風向の変動が大きいくことが示されており、より内陸の地域の方が風向の再現性を高めるのは難しいようである。

図A.3では気温の時系列変化を示したが、非常によく再現できている様子がみてとれる。

全体的に気象場の再現性は概ね評価できるものと考えられるが、内陸部の風の場の精度をさらに上げる手法としては気象場のナッジング用のデータを高解像度のデータに変えるという手法が考えられる。本研究において用いたナッジング用の再解析データNCEP-FNL(1°×1°)の水平解像度は約110kmであり、本研究の水平分解能よりも粗いため、今回の研究のように関東地方に焦点を当てた研究では、日本周辺の気象場をMSMに置き換えるなどでさらなる再現性の向上が期待される。

図A.4では、関東地方中央付近の騎西、南部の川崎、南東部の千葉、北西部の前橋、北東部のつくばの5地点におけるNICAM-CHASERによる日射量の時系列変化を観測値とともに示した。騎西、前橋、つくばはFAMIKAの観測値を、川崎と千葉は大気汚染物質常時観測データの観測値を用いた。5地点の中で関東中央付近に位置する騎西および千葉の日射量は観測値の結果を非常によく再現できている。8月3日、4日の前橋、および8月5日、13日のつくばでは観測値の日射量は低い値を示しているのに対し、NICAM-CHASERでは観測値ほど値が下がらなかった。観測値の日射量が低い値を示す原因は上空に日射を遮る雲が発生しているためだと考えられるが、NICAM-CHASERでは観測値ほど日射を遮る雲を再現できなかったと考えられる。関東地方南部の川崎においてはこの期間を通して、NICAM-CHASERの値は観測値よりも50~100W/m²高い値を示した。

図A.5では関東地方南部の川崎、北西部の前橋、北東部のつくばの3地点における降水量の時系列

変化を示した。前橋とつくばは FAMIKA の観測値を、川崎は大気汚染物質常時観測データの観測値を用いた。各地点ごとに確認すると、前橋では 8 月 5 日、6 日の夜間に降水があったが、NICAM-CHASER による結果でも同じタイミングで降水がみられた。しかし、モデルでは過小評価であった。つくばでは 2 日、13 日の日中と 15 日の夜間に降水がみられたが、NICAM-CHASER ではこれらの降水は表現できていなかった。これらの降水は全て 5mm/hr 以下の弱い降水であり、弱い降水をモデルで表現することは難しいためであると考えられる。関東南部の川崎では実験期間中ほとんど降水がみられなかったが、モデルでも同様にほとんど降水がみられなかった。

各地点における風速

赤線: NICAM-CHASER
黒線: MSM

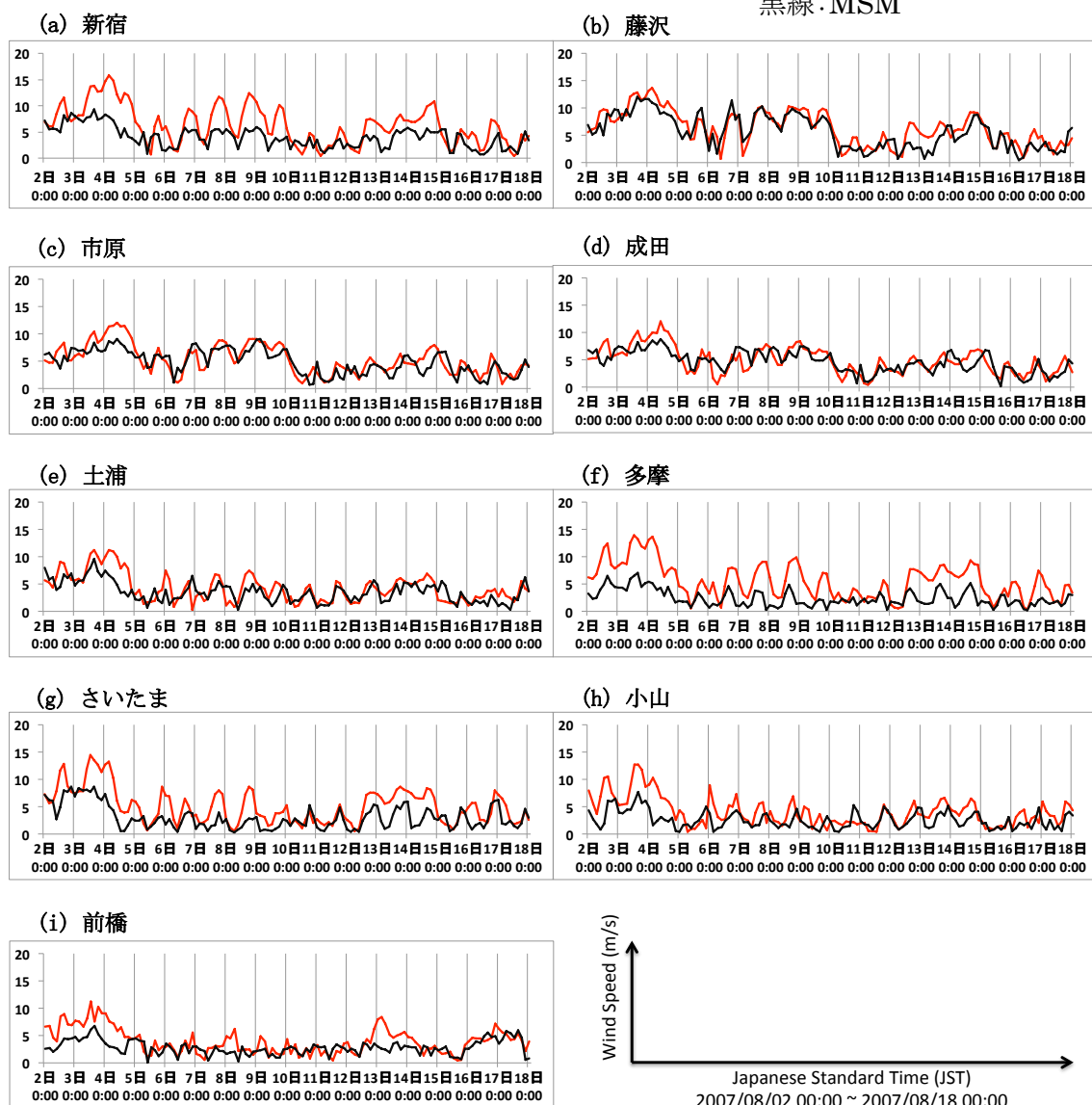


図 A.1 関東地方 9 地点での風速の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER による結果、黒線が観測値である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋である。

各地点における風向

赤線: NICAM-CHASER
黒線: MSM

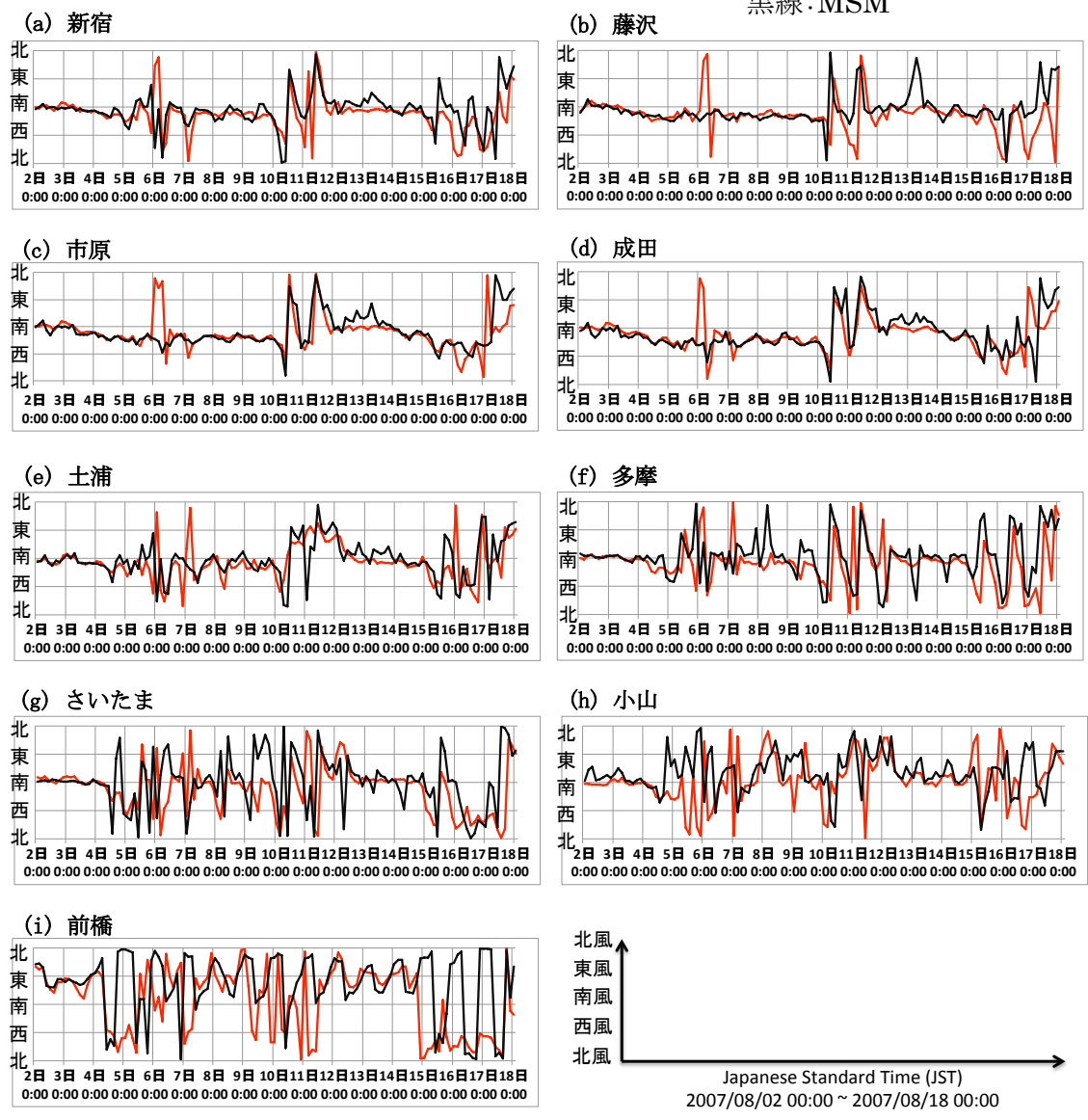


図 A.2 関東地方 9 地点での風向の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER による結果、黒線が観測値である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋である。

各地点における気温

赤線: NICAM-CHASER
黒線: MSM

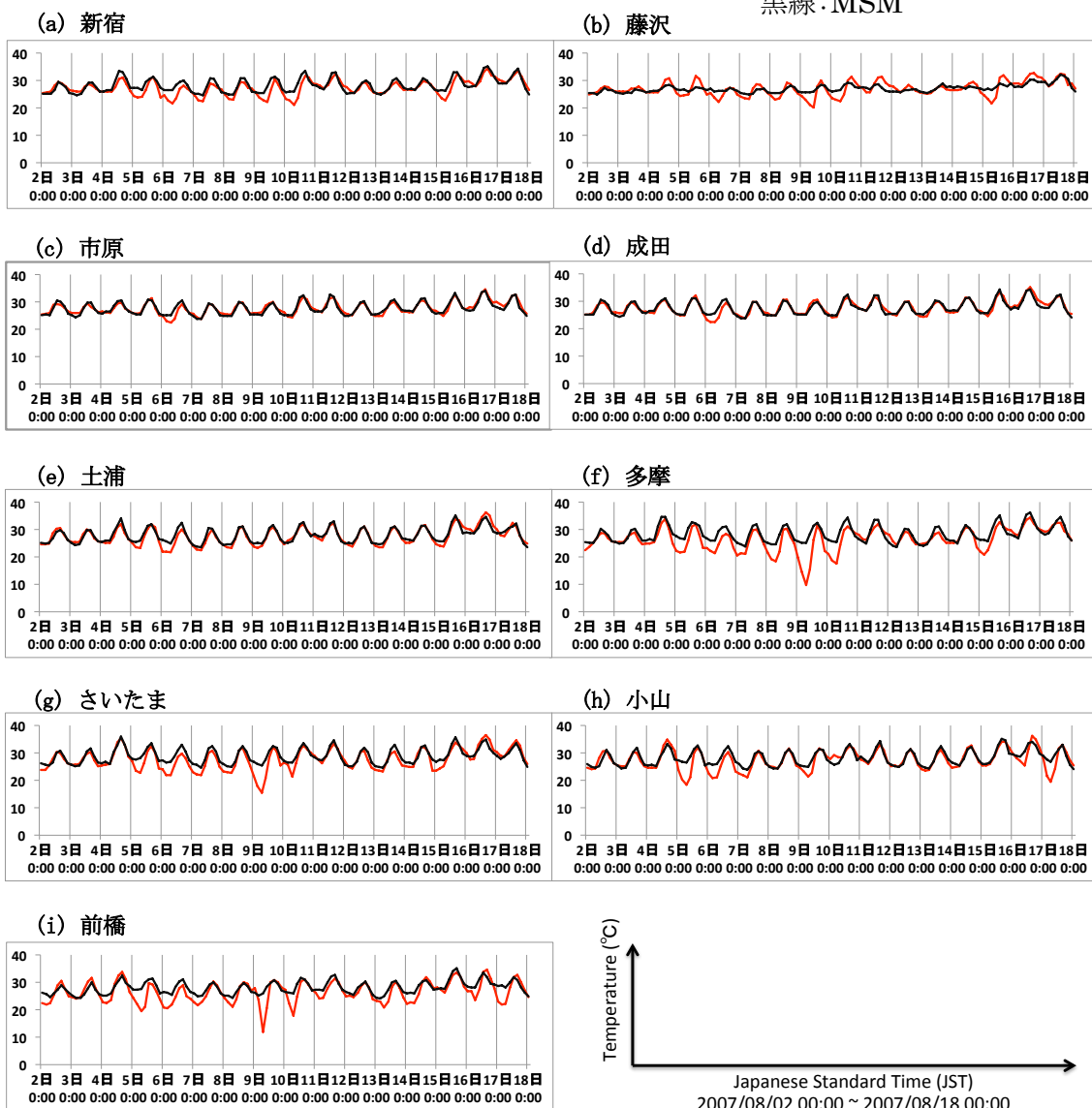


図 A.3 関東地方 9 地点での気温の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER による結果、黒線が観測値である。(a)新宿、(b)藤沢、(c)市原、(d)成田、(e)土浦、(f)多摩、(g)さいたま、(h)小山、(i)前橋である。

各地点における日射量

赤線: NICAM-CHASER
黒線: OBSERVATION

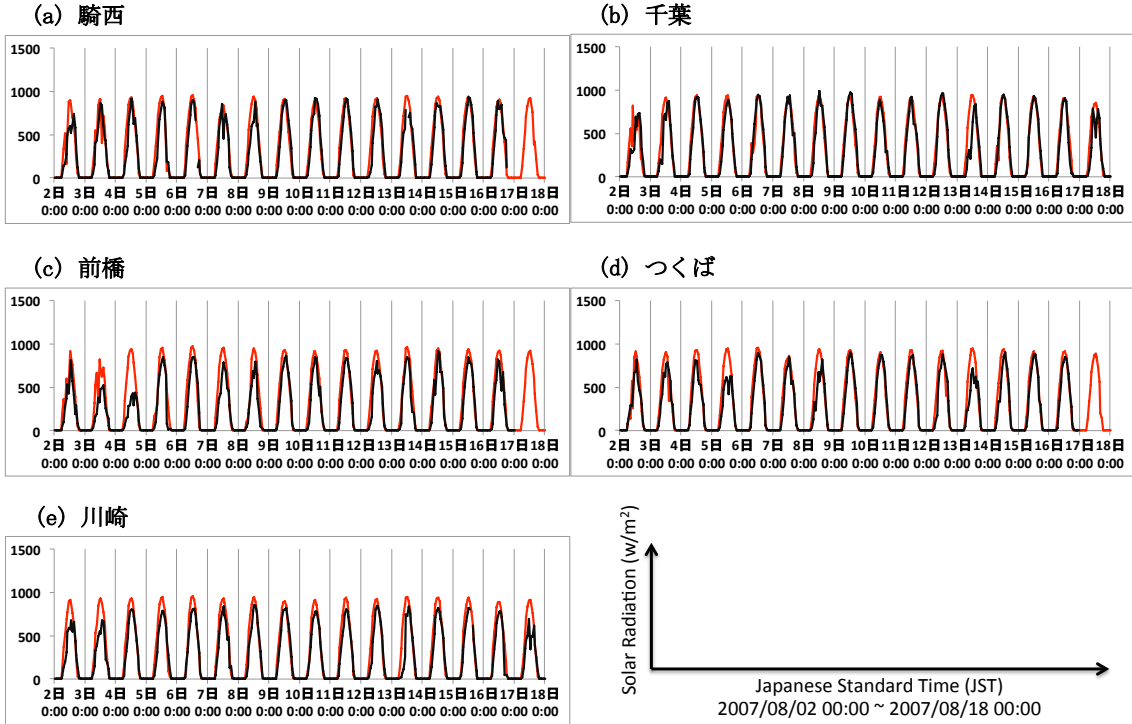


図 A.4 関東地方 5 地点での日射量の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER による結果、黒線が観測値を示す。

(a) 騎西、(b) 千葉、(c) 前橋、(d) つくば、(e) 川崎である。

各地点における降水量

赤線: NICAM-CHASER
黒線: OBSERVATION

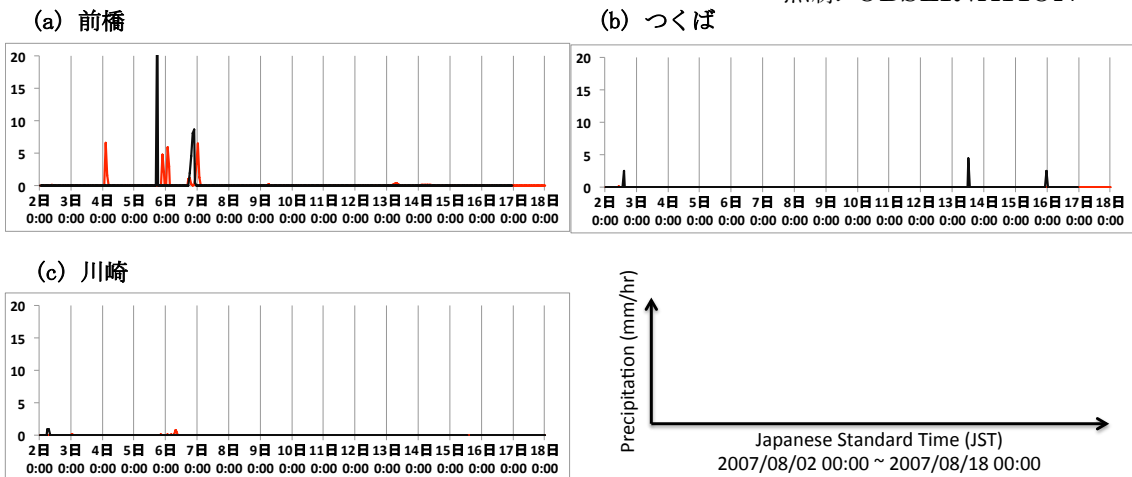


図 A.5 関東地方 3 地点での降水量の時系列変化。

赤線が NICAM-CHASER による結果、黒線が観測値を示す。

(a) 前橋、(b) つくば、(c) 川崎である