

東アジアにおける人為起源エアロゾルによる 光学的厚さの近年のトレンドの解析

原 由 香 里*¹・鶴 野 伊 津 志*²・清 水 厚*³・杉 本 伸 夫*³
松 井 一 郎*³・大 原 利 真*³・Zifa Wang*⁴・Soonchang Yoon*⁵

要 旨

急激な経済発展に伴う東アジア域の最近の大気環境の変化を明らかにするため、地上および衛星搭載ライダー、衛星搭載イメージャー、空港視程データなどの光学的観測データを中心として2004~2011年における人為起源大気汚染による球形エアロゾルのトレンドを解析した。2004~2008年にかけて、東アジアの広範囲において観測された球形エアロゾルの光学的厚さ (AOD) は増加トレンドを示し、2008年以降は中国の北部を除き減少傾向に転じた。東アジアにおける球形エアロゾルの主成分は硫酸塩であることから、前駆物質である二酸化硫黄の発生量の減少が風下域における AOD 減少トレンドの要因の一つであると考えられる。

1. はじめに

2000年以降、急激な経済発展に伴い東アジア域における大気汚染物質の排出量は劇的に増加した (Ohara *et al.* 2007)。しかし、2006年以降、脱硫装置の普及により中国における SO₂ 排出量は減少に転じたと報告されている (Lu *et al.* 2010)。一方、衛星観測から推定された東アジア域における NO_x 発生量は増加の一途をたどっていることも明らかとなっており (Lamsal *et al.* 2011)、東アジア域における人為起源エアロゾルの時空間変動は各国の経済発展と環境政策のバランスによって複雑に時々刻々と変化していると考えられる。Itahashi *et al.* (2012) は2000~2010年の Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer

(MODIS) の東アジア域の海洋上のデータから、小粒子エアロゾル光学的厚さ (AOD) は2005~2006年をピークに減少トレンドに転じたことを示したが、東アジアの地上におけるエアロゾルの長期観測データは非常に限られており、特に中国の陸上域や風下である日本などの人為起源エアロゾルの長期トレンドの実態は十分に明らかにされていない。国立環境研究所 (NIES) では、2001年以降、東アジア域の大気環境の連続的な監視を目的として地上ライダーネットワークを展開してきた (Shimizu *et al.* 2008)。本研究では、中国における空港視程データや NIES 地上ライダー、衛星搭載ライダー-CALIOP, MODIS などの様々な光学的観測データと、領域化学輸送モデル CMAQ (Community Multi-scale Air Quality model) を用いて、2004年以降の東アジア域における人為起源エアロゾルの近年のトレンドについて報告する。

2. 領域化学物質輸送モデル・観測データの概要

本研究で使用した化学物質輸送モデルは、米国環境保護庁 (EPA) によって開発された CMAQ ver. 4.4 (Byun and Ching 1999) であり、地形、土地利

*¹ 国立環境研究所 (現 九州大学応用力学研究所)。

*² 九州大学応用力学研究所。

*³ 国立環境研究所。

*⁴ 中国科学院大気物理研究所。

*⁵ ソウル大学。

—2012年 4 月 2 日受領—

—2012年 6 月12日受理—

用, 発生源, 気象その他の入力条件を基に, 様々な大気汚染物質濃度の分布や沈着量を計算するオイラー型大気質シミュレーションモデルである. アジア域の窒素酸化物 (NO_x) や非メタン有機化合物 (NMVOC) 等の人為起源排出量は REAS ver.1.1 (Ohara *et al.* 2007) を使用した. 気象データとして地域気象モデルシステム RAMS ver.4.4 (Pielke *et al.* 1992) による計算結果を使用し, 境界条件は米国国立環境予報センターによる解像度2.5度の全球客観解析データ (NCEP-DOE Reanalysis 2) を与えた (Kanamitsu *et al.* 2002). CMAQ の計算領域は第1図に示す領域であり, 水平解像度80kmで78×68格子点, 鉛直方向は14層 (上層23kmまで) である. 使用するモジュール構成の設定は鶴野ほか (2005) に従った.

REAS ver.1.1は正式には2003年までの排出量のインベントリであり, その後経済指標をもとに2004から2006年まで外挿されている. REASは現在, 次のバージョンの公開が予定されている (Kurokawa and Ohara 2012) ため, 直近の計算は行われていない. ここでは, 2006年まで外挿された REAS ver.1.1を利用して2004~2009年の計算を行っている. 2004~2006年までは各年のエミッションインベントリを用いて計算を行い, 2007年以降は2006年のエミッションインベントリを使用して計算を行った.

NIES 地上ライダーデータについては, Fernald の

インバージョン法 (Fernald 1984) により532nmにおける粒子消散係数を導出し (ライダー比は50sr), 粒子偏光解消度を用いて球形・非球形成分を分離し球形成分の解析を行った (Shimizu *et al.* 2004).

CALIOP データ (Winker *et al.* 2007, 2010) については Level 2 ver.3.01プロダクトに含まれる粒子消散係数と粒子偏光解消度を用いて球形エアロゾルの消散係数を得た.

一方, 視程データはワイオミング大学サーバから入手した (<http://weather.uwyo.edu/surface/meteorogram/>). Che *et al.* (2007) を参照し, 視程データから地上付近の消散係数を導出し, 解析に使用した.

$$b_{\text{ext}} = 1.9/V \quad (1)$$

b_{ext} : 消散係数, V : 視程 (km)

降水, ダスト, 霧, かすみ, 強風などの自然現象による視程低下を除去するため, SYNOP 報 (地上実況気象通報式) の現在天気を使用した. 現在天気とは, 目視で観測された観測所付近の気象状態である. また, 相対湿度が90%を超える場合の視程データを除去した.

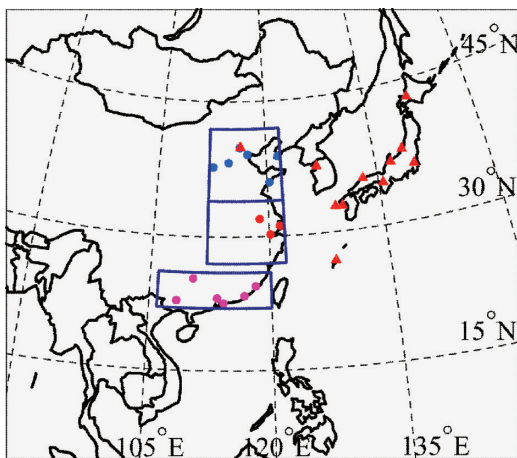
衛星 Terra に搭載された MODIS による Level 3 Collection 5.1の550nmにおけるエアロゾル光学的厚さ (AOD) と fine mode fraction を用いて fine mode AOD を導出した (Remer *et al.* 2005). 第1図に解析で使用した観測地点と解析領域を示す.

3. 結果

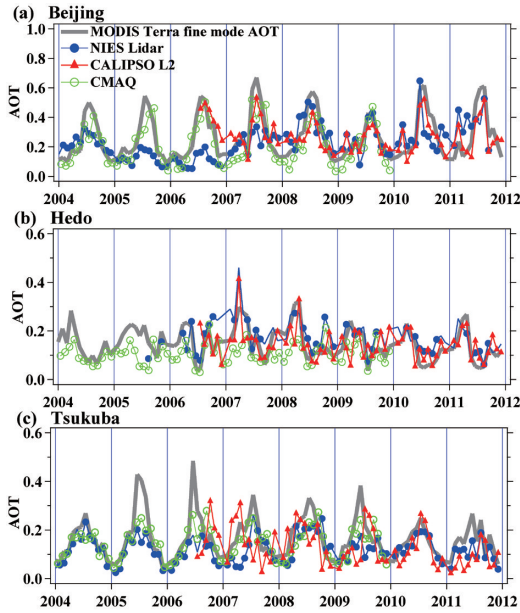
本論文では, 観測をベースとして人為起源エアロゾルの2004~2011年の近年のトレンドを明らかにすることを目的とする. はじめに, NIES ライダーネットワークから人為起源エアロゾルの発生源域付近に位置する北京, 風下域地点として沖縄県辺戸とつくばの球形エアロゾルの長期変動を明らかにしたのち, 衛星データ, 視程データを用いて領域的なトレンド解析を行う.

3.1 ライダー地点における球形エアロゾルの変動

第2図に (a)北京, (b)辺戸, (c)つくばにおける地上ライダーと衛星搭載ライダー-CALIOP, MODIS, CMAQ による球形エアロゾルの AOD の月平均値の長期変動を示す. CMAQ による球形エアロゾルの AOD は, Malm *et al.* (1994) の方法により, モデル計算された硫酸塩, 硝酸塩, 黒色炭素, 有機炭素から求めた. 特に近年の球形エアロゾルの長期トレンドを



第1図 CMAQ の計算領域. ●は視程データを利用した空港地点, ▲は NIES 地上ライダー地点, 矩形は MODIS 平均化領域.



第2図 (a)北京, (b)沖縄県辺戸, (c)つくばにおける球形エアロゾル光学的厚さの月平均値の長期変動。

評価するため、2008年前後の期間を対象として季節変動と長期変動の項を持つ非線形回帰モデルで表した。

$$C(t) = \alpha + \beta t/12 + \gamma \sin(2\pi t/12 + \phi) \quad (2)$$

t : 延月数 (1, 2, ..., N)

右辺第2項が長期変動を、第3項が季節変動を表している。第1表に2004~2008年と2008~2011年の期間についての回帰モデルの各係数を示す。AODの長期

変動の有意性について、式(2)の第2項がないという帰無仮説 $H_0: \beta = 0$ に基づき5%の有意水準で F 検定を行い、統計的に有意である数値は*を添えている。各観測から、それぞれのAODの絶対値は異なるものの、その長期トレンドは良い一致を示す。例えば、北京においては2004~2008年までAODの増加トレンドが見られ、2009年に一旦減少に転じる。しかし、2010年以降、再び高レベルのAODが観測されており、2008~2011年のトレンドは各観測共に正のトレンドである結果が得られた。一方、風下域である辺戸とつくばにおいては、2004~2008年まで増加トレンドであることは北京と共通しているが、2008年以降AODは減少トレンドにあり発生源域と傾向が異なる。

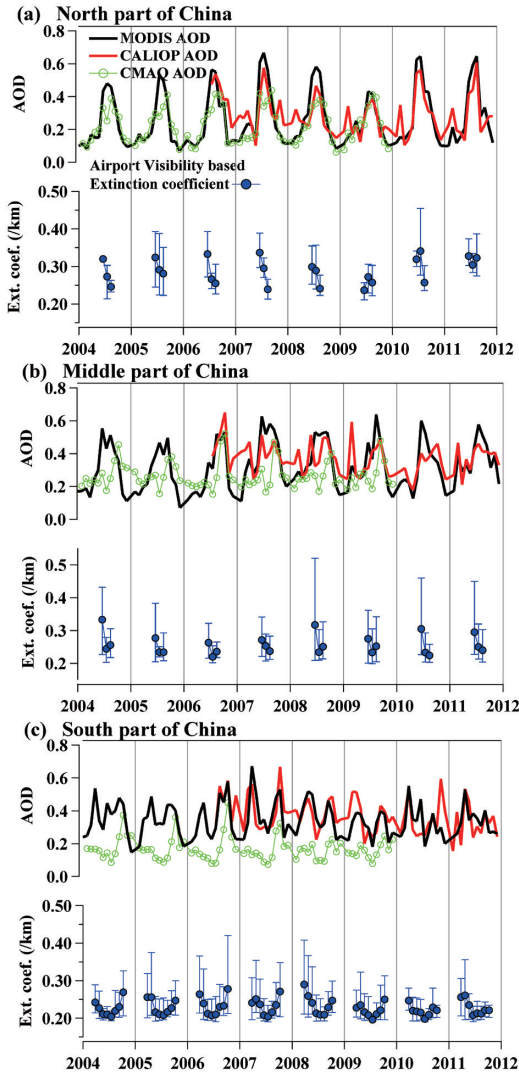
3.2 中国各領域における球形エアロゾルの変動

続いて、第3図の下段に中国の(a)北部、(b)中部、(c)南部における空港視程データから導出した消散係数の月平均値の変動を示す。エラーバーは領域における最大値と最小値との差を示す。上段には、MODIS fine mode AOD、CMAQによる球形エアロゾルのAOD、CALIOPによる球形エアロゾルのAODの月平均値を示す。視程データについては、AODがピークを持つ季節の視程データに着目しトレンドの解析を行った。中国北部と中部は夏季(6~8月)、南部については春季~秋季(3~10月)について解析を行った。第2表に視程データとMODISの回帰モデルの各係数を示す。中国北部・中部・南部においては2004~2008年まで、視程ベースの消散係数のトレンドは一様に増加傾向を示す。一方、2008年以降、第2表に示すよう中国南部においては消散係数・AOD共に減少傾向を示すが、中国北部では2010年以

第1表 NIES Lidar/CALIOP/MODIS 月平均AODについての式(2)の各係数。

地域	観測	係数		β		γ	
		2004-2008	2008-2011	2004-2008	2008-2011	2004-2008	2008-2011
北京	NIES	0.133	0.286	0.028*	0.003	0.056	0.069
	CALIOP	—	0.243	—	0.008	—	0.085
	MODIS	0.233	0.273	0.016*	0.002	0.183	0.185
辺戸	NIES	0.117	0.205	0.031*	-0.018*	0.063	0.038
	CALIOP	—	0.147	—	-0.004	—	0.038
	MODIS	0.148	0.162	0.005*	-0.012*	0.062	0.066
つくば	NIES	0.113	0.157	0.006*	-0.014*	0.068	0.048
	CALIOP	—	0.166	—	-0.023*	—	0.060
	MODIS	0.163	0.192	0.005*	-0.013*	0.112	0.087

*は統計的に有意(5%有意水準)。



第3図 中国(a)北部, (b)中部, (c)南部における球形エアロゾル光学的厚さと空港視程データから換算した消滅係数の月平均値の長期変動。

降再び高レベルの消滅係数が観測されており、トレンドは増加傾向となっている。中国中部における2008～2011年のトレンドは明瞭でない。

3.3 東アジア領域の球形エアロゾルのトレンドの水平分布

第4図に2004～2008年と2008～2011年の期間についての地上および衛星観測とモデル結果から得られた長期トレンドの傾き(式(2)の β)の水平分布を示す。

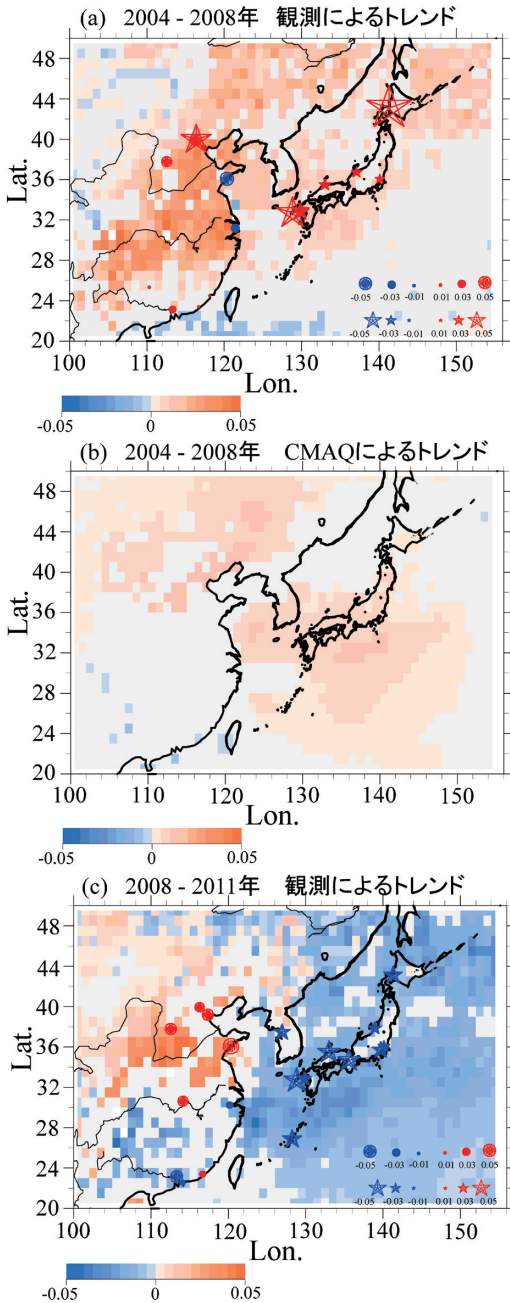
(a), (b)が2004～2008年についての, (c)が2008～2011年についてのトレンドであり, (a), (c)がMODIS AOD, NIES ライダー-AOD, 空港視程データから算出した消滅係数によるトレンド, (b)がCMAQ AODから算出したトレンドである。AODの長期変動の有意性について, 5%の有意水準でF検定を行い, 統計的に有意である数値のみ表示している。CMAQによる2008年以降のトレンドについては, 2008年と2009年の2年だけのデータを用いてトレンドを議論するのは適切でないため, 示さない。

観測によるトレンド解析から, 2004～2008年については東アジアの広範囲においてMODIS AOD, NIES ライダー-AOD, 空港視程データ共に正のトレンドを示すことが判る(第4図a)。一方, 2008年以降, 中国の北部などを除き, 概ね負のトレンドに転ずることが衛星と地上データで一致している(第4図c)。

CMAQでは, 2004～2006年までREAS排出量の増加が考慮されているが, 2007年以降は2006年の排出量を使用している。モデル計算では, 2004～2008年のAODの増加トレンドの水平パターンは概ね一致する(第4図b)。排出量を2006年に固定した2008～2009年のモデル結果によるトレンドは, 観測による風下域の有意な減少トレンドを再現しなかったが, トレンドを算出する対象期間が短すぎるため, 更に計算期間を延長しAODの減少トレンドに対する気象場の影響を評

第2表 中国における空港視程データ/MODISから得られた領域・月平均消滅係数についての式(2)の各係数。

地域	係数 期間	α		β		γ	
		2004-2008	2008-2011	2004-2008	2008-2011	2004-2008	2008-2011
北部	視程	0.279	0.254	0.005*	0.015*	-0.036	-0.029
	MODIS	0.227	0.264	0.013*	0.004	0.199	-0.199
中部	視程	0.302	0.305	0.001	0.001	-0.058	-0.068
	MODIS	0.267	0.350	0.020*	-0.005	0.174	-0.151
南部	視程	0.235	0.240	0.003*	-0.001	-0.031	-0.030
	MODIS	0.343	0.356	0.003*	-0.006*	-0.113	-0.072



第4図 東アジア域における(a), (c)地上および衛星観測と, (b)CMAQによる球形エアロゾルの長期変動トレンドの水平分布。(a) (c)のカラーがMODIS AOD, ●は空港視程データ, ★はNIESライダーAODのトレンドを示す。(b)のカラーがCMAQ AODのトレンドを示す。5%の有意水準でF検定を行い, 統計的に有意である数値のみ表示している。

価する必要がある。

Osada *et al.* (2007) で示されているように東アジア域における球形エアロゾルの主成分は硫酸塩である。Lu *et al.* (2011) は, 中国における SO_2 発生量は大規模な発電所への脱硫装置の普及により2006年をピークに9.2%減少していることを報告している。これらのことから, 前駆気体である SO_2 の発生量の減少が風下域でみられる最近のAODの減少トレンドの要因の一つであると考えられる。一方, 中国北部の視程データやAODデータは今なお増加トレンドを示しており, Lin *et al.* (2010) が示すように NO_x や非メタン有機化合物 (NMVOC) やアンモニア (NH_3) を含む前駆物質から生成される二次生成エアロゾルの増加が中国北部におけるAODや視程に寄与している可能性が高いが, この要因の解明は今後の課題である。

4. まとめ

本論文では, 2004~2011年のNIES地上ライダー・衛星観測によるAOD, 空港視程データの光学的観測データを用いて, 東アジアにおける球形エアロゾルの近年のトレンドを明らかにした。数値実験として2004~2009年まで化学輸送モデルCMAQによる計算を行い, 2004~2006年までは年々のエネルギー消費量の増加が考慮されたREAS ver.1.1による人為起源大気汚染物質の発生量を使用し, 2007年以降は2006年の排出量を使用し実験を行った。以下に解析された観測のトレンドの特徴をまとめる。

- 1) 東アジアの各領域において, 地上ライダーおよび衛星観測によるAODと空港視程データから換算した消散係数の月平均値の2008年前後の長期トレンドは概ね一致した。
- 2) 2004~2008年については東アジア域の広範囲において球形エアロゾルの増加トレンドが見られた。
- 3) 2008年以降の長期トレンドには地域的な差異が見られ, 中国の北部では増加トレンド, 中国の南部や風下域である日本などでは減少トレンドが見られた。
- 4) 東アジアにおける球形エアロゾルの主成分は硫酸塩エアロゾルであることから, 前駆物質である二酸化硫黄の排出量の減少が2008年以降の風下域におけるAOD減少トレンドの要因の一つであると考えられる。

謝 辞

本研究は、環境省環境研究総合推進費による「数値モデルと観測を総合した東アジア・半球規模のオゾン・エアロゾル汚染に関する研究」(S-7-1)の一部として行いました。関係各位に深く感謝いたします。また、MODIS及びCALIOPデータの提供を行っているMODIS Atmosphere Discipline GroupとNASA Langley Research Center Atmospheric Sciences Data Centerに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- Byun, D. W. and J. K. S. Ching, 1999: Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) Modeling System. NERL, Research Triangle Park, NCEPA/600/R-99/030.
- Che, H., X. Zhang, Y. Li, Z. Zhou and J. J. Qu, 2007: Horizontal visibility trends in China 1981-2005. *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L24706, doi:10.1029/2007GL031450.
- Fernald, F. G., 1984: Analysis of atmospheric LIDAR observations: Some comments. *Appl. Optics*, **23**, 652-653.
- Itahashi, S., I. Uno, K. Yumimoto, H. Irie, K. Osada, K. Ogata, H. Fukushima, Z. Wang and T. Ohara, 2012: Interannual variation in the fine-mode MODIS aerosol optical depth and its relationship to the changes in sulfur dioxide emissions in China between 2000 and 2010. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 2631-2640.
- Kanamitsu, M., W. Ebisuzaki, J. Woollen, S.-K. Yang, J. J. Hnilo, M. Fiorino and G. L. Potter, 2002: NCEP-DOE AMIP-II Reanalysis (R-2). *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **83**, 1631-1643.
- Kurokawa, J. and T. Ohara, 2012: Recent trends for emission of air pollutants and greenhouse gases in Asia: Regional emission inventory in Asia (REAS) version 2. Third international workshop on emission inventory in Asia.
- Lamsal, L. N., R. V. Martin, A. Padmanabhan, A. van Donkelaar, Q. Zhang, C. E. Sioris, K. Chance, T. P. Kurosu and M. J. Newchurch, 2011: Application of satellite observations for timely updates to global anthropogenic NO_x emission inventories. *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L05810, doi:10.1029/2010GL046476.
- Lin, J., C. P. Nielsen, Y. Zhao, Y. Lei, Y. Liu and M. B. McElroy, 2010: Recent changes in particulate air pollution over China observed from space and the ground: Effectiveness of emission control. *Environ. Sci. Technol.*, **44**, 7771-7776.
- Lu, Z., D. G. Streets, Q. Zhang, S. Wang, G. R. Carmichael, Y. F. Cheng, C. Wei, M. Chin, T. Diehl and Q. Tan, 2010: Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 6311-6331.
- Lu, Z., Q. Zhang and D. G. Streets, 2011: Sulfur dioxide and primary carbonaceous aerosol emissions in China and India, 1996-2010. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 9839-9864.
- Malm, W. C., J. F. Sisler, D. Huffman, R. A. Eldred and T. A. Cahill, 1994: Spatial and seasonal trends in particle concentration and optical extinction in the United States. *J. Geophys. Res.*, **99**, 1347-1370.
- Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan and T. Hayasaka, 2007: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4419-4444.
- Osada, K., M. Kido, C. Nishita, K. Matsunaga, Y. Iwasaka, M. Nagatani and H. Nakada, 2007: Temporal variation of water-soluble ions of free tropospheric aerosol particles over central Japan. *Tellus*, **59**, 742-754.
- Pielke, R. A., W. R. Cotton, R. L. Walko, C. J. Tremback, W. A. Lyons, L. D. Grasso, M. E. Micholls, M. D. Moran, D. A. Wesley, T. J. Lee and J. H. Copeland, 1992: A comprehensive meteorological modeling system -RAMS. *Meteor. Atmos. Phys.*, **49**, 69-91.
- Remer, L. A., Y. J. Kaufman, D. Tanré, S. Mattoo, D. A. Chu, J. V. Martins, R.-R. Li, C. Ichoku, R. C. Levy, R. G. Kleidman, T. F. Eck, E. Vermote and B. N. Holben, 2005: The MODIS aerosol algorithm, products, and validation. *J. Atmos. Sci.*, **62**, 947-973.
- Shimizu, A., N. Sugimoto, I. Matsui, K. Arao, I. Uno, T. Murayama, N. Kagawa, K. Aoki, A. Uchiyama and A. Yamazaki, 2004: Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia. *J. Geophys. Res.*, **109**, D19S17, doi:10.1029/2002JD003253.
- Shimizu, A., N. Sugimoto, I. Matsui, B. Tatarov, C. Xie, T. Nishizawa and Y. Hara, 2008: NIES lidar network; strategies and applications. 24th International Laser Radar Conference, 23-28 June 2008, Boulder, Colorado, USA, ISBN: 978-0-615-21489-4, 707-710.
- 鶴野伊津志, 大原利真, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光夫, 2005: RAMS/CMAQの連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築. *大気環境学会誌*, **40**, 148-164.

- Winker, D. M., W. H. Hunt and M. J. McGill, 2007: Initial performance assessment of CALIOP. *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L19803, doi:10.1029/2007GL030135.
- Winker, D. M., J. Pelon, J. A. Coakley Jr., S. A. Ackerman, R. J. Charlson, P. R. Colarco, P. Flamant, Q. Fu, R. M. Hoff, C. Kittaka, T. L. Kubar, H. Le Treut, M. P. McCormick, G. Mégie, L. Poole, K. Powell, C. Trepte, M. A. Vaughan and B. A. Wielicki, 2010: The CALIPSO mission: A global 3D view of aerosols and clouds. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **91**, 1211-1229.

Recent Inter-Annual Trend of Spherical Aerosol in East Asia

Yukari HARA^{*1}, Itsushi UNO^{*2}, Atsushi SHIMIZU^{*3},
Nobuo SUGIMOTO^{*3}, Ichiro MATSUI^{*3}, Toshimasa OHARA^{*3},
Zifa WANG^{*4} and Soonchang YOON^{*5}

^{*1} (*Corresponding author*) *National Institute for Environmental Studies (Present affiliation: Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Kasuga Park 6-1, Kasuga, Fukuoka 816-8580, Japan).*

^{*2} *Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University.*

^{*3} *National Institute for Environmental Studies.*

^{*4} *The Nansen - Zhu International Research Centre, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Science.*

^{*5} *Seoul National University.*

(Received 2 April 2012; Accepted 12 June 2012)
