〔論 文〕

日本域の春季の対流圏オゾン高濃度のシミュレーション

鵜 野 伊津志*·菅 田 誠 治**

要 旨

1987年5月に観測された日本域の高濃度 O_3 を物質輸送モデルシミュレーションにより解析した.観測データ,モデル計算,全球解析データはすべて整合的な結果を与え,春季の日本付近の高濃度 O_3 には,成層圏起源の O_3 の沈降が重要な寄与を示した.

モデルの感度解析から、地上付近の O_3 に対する対流圏内の光化学反応の寄与率10~25%が示され、成層圏起源の O_3 が支配的であった。 O_3 と比湿 q の時空間変化には明瞭な逆相関がみられ、成層圏から対流圏への侵入の 3 次元構造が示された。上空7000 m で輸送フラックス $w \times O_3$ は下向きで最大10¹² molecule/cm²/sec のオーダーを取った。また、トラジェクトリー解析から、成層圏からの沈降が 1~2日の極めて短い時間スケールで生じたことが示された。

1. はじめに

成層圏から対流圏下部へ輸送される O_3 の寄与は年 平均としては少ないが、春季に大きな寄与を占めるこ とが知られている(例えば, Danielsen, 1968). これは、 春季には日本域上空(成層圏下部)の O_3 レベル自身が 高く(Sunwoo *et al.*, 1992),移動性高低気圧の通過 に伴う成層圏から対流圏への輸送の生じやすい気象条 件が頻発するためである. そのため地上での O_3 の高濃 度には、成層圏から対流圏下部への O_3 の輸送が重要な 因子として考えられている(Austin and Midgley, 1994; Danielsen, 1980; Ebel *et al.*, 1991; Wakamatsu *et al.*, 1989).

本論文では、1987年5月に日本各地で観測された O₃ 濃度を精密な化学反応を含む3次元輸送モデルで解析 した.本論文は、まず第2章で、沖縄〜北海道にかけ て観測された地上のO₃濃度の特徴を全球客観解析 データとともに示す.第3章ではモデルの概要を示す. 第4章では、モデルと観測との比較、成層圈O₃の直接

*環境庁国立環境研究所大気圏環境部(現:九州大学応 用力学研究所)。

** 環境庁国立環境研究所大気圏環境部.

-1997年2月20日受領--1998年1月23日受理-

© 1998 日本気象学会

的寄与と対流圏内の反応寄与率の日変化, 成層圏 O₃の 沈降過程等について議論する.

2.0₃濃度の観測結果

1987年5月上旬に日本各地で観測された地上O₃濃度データと気象変化の関係について示す。

第1表には測定地点の標高と測定項目 (O_3, O_x) を, 第1図には、測定地点を示す. O_x はオキシダントを意味するが以下の解析では O_x を O_3 として扱う.測定値はいずれも1時間平均値である.

第2図には、5月3、5、7、8、9、10、12、14 日のヨーロッパ中期予報センターECMWF 2.5度メッ シュの全球客観解析データ(TOGA/COARE Basic Level III consolidated data set)の850 hPa と350hPa での風速ベクトルとジオポテンシャル高度を示した. 図中の H, L は地上の高低気圧位置を示し、350 hPa の 図には ECMWF の鉛直風速の負の領域(-0.06 m/s 以下と-0.06~-0.03 m/s の範囲)をトーンで表示し た. ここで、ECMWF の鉛直風速 ω を, $w \approx -\omega/\rho g$ で 変換した.

第3図には、1987年5月1日~15日までの地上のO₃ 濃度の時間変化を示す(図にはモデルの結果を同時に 示しているが、その議論は4で行う).ここで、(a)は 北海道札幌近郊の手稲山と札幌郊外の野幌国設一般環

1998年6月

観測地点	標高	経度,	緯度	測定項目
沖縄県石川市 ^{a)}	3 m	127.80,	26.38	O_x
福岡県小郡国設局 ^{a)}	20 m	130.57,	33.40	Ox
札幌市野幌国設局 ^{a)}	20 m	141.52,	43.06	O_x
長崎県雲仙野岳 ^{b)}	1142 m	130.29,	32.77	O3
福岡県三郡山 ^{c)}	920 m	130.57,	33.56	O_3
長野県八方尾根 ^{。)}	1840 m	138.40,	36.45	O_3
青森県八甲田山田茂萢岳 ^{ei}	1324 m	140.88,	40.65	O_3
北海道手稲山切	1000 m	141.18,	43.09	O_3

第1表 測定地点と測定項目.

^{a)}一般環境大気汚染測定局,^{b)}特別観測地点(若松,1991),^{c)}宇都宮 ほか(1989),^{d)}栗田ほか(1989),^{e)}早狩ほか(1989),^{f)}Murao *et al.* (1990)



第1図 観測地点とモデルの計算領域.図中のW とNは第4表の反応寄与率の評価領域.A, Bは第5表のO₃の鉛直フラックスの評価 領域を示す.

境大気測定局(点線),(b)は青森県の八甲田山,(c) 長野県の八方尾根,(d)福岡県福岡近郊の三郡山と同 県筑後小郡国設一般環境大気測定局(点線),(e)は長 崎県の雲仙野岳,(f)は沖縄県石川市での測定結果であ る(これらの地点は点線で示した測定点以外はすべて 清浄地点に位置している) 図には,同時に人工衛星 Nimbus-7の TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer)による O₃総量(Dobson Unit)を○印 でプロットしてある.

第4図には TOMS の O₃総量の水平分布の変化を 示す.

まず、この期間の気象変化の特徴を示す。5月1日 ~4日と13日~15日に低気圧が日本域を通過した。特 に、1日~4日の低気圧はオホーツク海で964 hPaま で発達し、それにともない上空のジェット気流が日本 上空を南下した(第2図)。この発達した低気圧は、切 離低気圧(cut-off-low)的になり,第2図(b)~(e) の350 hPa に示されるように北日本からオホーツク・ 北太平洋にかけてトラフ(低温の低圧部)が停滞した. 一方,地上では5日~11日にかけて,移動性高気圧が 中国大陸から日本域をゆっくりと東進した.特に,高 気圧は7日から10日にかけて,朝鮮半島から日本上空 に位置し,日本域に晴天をもたらし,乾燥した状態が 継続した.

このような高低気圧の移動に伴い,図に示されたように風系が変化した.特に,高気圧の時計まわりの吹き出しに伴い,日本海側は西寄り,太平洋側は東寄りの風系が顕著である(第2図(d)~(f)).

11日以降は、日本域は高気圧の後面に位置し、850 hPa では南西の気流(太平洋からの気流)が見られる。 13日から14日にかけては日本列島を低気圧が通過し (第2図(h))、それに伴い風系が南寄りから北西に急 激に変化し、日本全域に降水が観測された。

この期間で特徴的なことは、ジェット気流が、7日 頃から分岐し日本南岸と北緯50~60度付近を流れるよ うになった点である(第2図(c)~(f)). これは、先 に述べた切離低気圧の回りを迂回する流れのためであ り、8日の朝鮮半島上空には0.1 m/sec 程度の下降気 流をもつ北風ゾーンが見られている(この下降気流域 は図に示した $A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow D$ の順に移動した). この ような、日本付近のジェット気流の分岐は、11日以降 に解消した.

第3図に示した全国の地上の O_3 濃度レベルは沖縄 を除いて、いずれも100 ppb 程度のピークを取り、その 時間変化には1日~2日の差があるが、驚くほど類似 している. 雲仙と三郡山では8日~9日にかけて同時 に濃度増加を示し、特に、三郡山では9日に最高濃度 110 ppb を取っている. 八方尾根では、ピークが10~11

850 hPa



(d) 87/05/08 70 60 60 t nd . • 40 80 110 120 130 140 150 160 170 180 longitude 100 30 m/s

100 110 120 130 140 150 160 170 180

第2図 説明は次ページ.

350 hPa



850 hPa



第2図 1987年5月3日~14日の850 hPaと350 hPaでの風速ベクトルとジオポテン シャル高度.図中のH,Lは地上の高低気圧位置を示し,350 hPaの図には鉛直 風速の負の領域(濃いトーン:-0.06 m/s以下,薄いトーン:-0.06~-0.03 m/sの範囲)をトーンで表示した.

350 hPa



第3図 1987年5月1日~15日までの地上のO₃濃度(細い実線と点線),TOMSO₃総量(⊙ 印),モデルの結果(CHEM=太い実線, TRANS=太い点線)の時間変化(モデル結 果は,観測点の緯度・経度と高度に補間し た).(a)北海道札幌近郊の手稲山と札幌郊 外の野幌国設一般環境大気測定局(点線), (b)八甲田山,(c)八方尾根,(d)福岡近 郊の三郡山と筑後小郡国設一般環境大気測 定局(点線),(e)雲仙野岳,(f)沖縄県石 川市。

日,八甲田山は8日~12日にかけて高原状のピークをと る.一方,手稲山では,10日未明にピークをとる(手 稲での測定は10日で終了した).このようなピーク濃度 の出現日時の差は,シノプティックスケールの高低気 圧の動きと気圧配置に関連しているが,単純ではない.

一方,13日にはいずれの地点でも最低濃度を示し, これは日本列島を急速に通過した低気圧に向けて南西 海上のオゾンの少ない海洋性の気塊が流れ込んだため である。

第3図に同時に示した TOMS の O_3 総量のプロットは興味深い.まず,日本南部では,TOMSと地上の O_3 観測結果には正の相関が見られる.これは次のように説明できる.第4図に示したように O_3 総量は,北緯35度付近を境として,南北勾配が急でかつ低緯度ほど変動が少ない.更に,観測期間中のNimbus-7のSBUV (Solar Backscatter Ultraviolet Instrument) データから沖縄付近の成層圏 (top-0.0625 atm)のオ ゾン総量の変動は14 DU (平均値228 DU) で, TOMS の変動幅約30 DU に比較して小さいことが判る. 従っ て,低緯度では対流圏内の O_3 の量がオゾン総量に相対 的に大きく寄与し,地上の O_3 観測値と TOMS が正相 関を有すると考えられる.

これに対して、八方尾根以北の高緯度では TOMS と地上の O_3 濃度のピーク出現日時には時間遅れが見 られる. これらの高緯度での成層圏と対流圏内の O_3 の 関係については、4.3と4.4節で O_3 の時空間変化ととも に示す.

第3図(a),(d)に同時に示した都市域に近接する 野幌と小郡のO₃濃度(点線)は日中に極大,夜間に極 小をとる.夜間のO₃濃度の減少は,接地逆転層形成に 伴う上空からのO₃輸送量の減少と地上での乾性沈着 による除去,及び,逆転層中に排出される人為起源の NOとの反応(O₃+NO \rightarrow NO₂+O₂)によると考えら れる.一方,日中のO₃濃度は,それぞれ,手稲山と三 郡山の測定結果に非常に近い結果となっており,日中 の地上のO₃濃度には,混合層上部のO₃濃度が重要な 因子となっていること示している.

これらの全国的な高濃度 O₃現象は,都市域に特有の 光化学大気汚染では説明できない.これは,東アジア スケールの長距離輸送と成層圏 O₃の沈降との関係で, シミュレーション結果とともに4章で議論する.

3. モデルの概要

鵜野ほか (1997) が東アジアスケールの長距離輸送・ 変質シミュレーションに用いたモデルを用いて,対流 圏 O_3 のシミュレーションを行った.物質輸送・変質モ デルは STEM (Sulfur Transport Eulerian Model; Carmichael *et al.*, 1991) を修正したものである.こ のモデルは,気相・固相・液相反応過程や乾性・湿性 沈着過程を含むリージョナルないしはメソスケールの 物質輸送・変質過程をシミュレートすることが可能な 3次元のオイラー型モデルである.基本方程式は,次 式で示される.

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (v_j C_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(K_{jj} \frac{\partial C_i}{\partial x_j} \right) + R_i + E_i \qquad (1)$$

ここで、 C_i は *i* 番目のガス成分濃度、 v_j は *j* 方向の風 速、 K_{jj} は乱流拡散係数、 R_i は化学反応による変換率、 E_i は発生源強度を示す。また、鉛直方向には地形に 沿った地表からの距離をとった座標系を取っている。



第4図 TOMSのO₃総量の水平分布の変化。

気相反応スキームは Lurmann *et al*. (1986) を用い ている. この反応スキームは53個の化学成分と112本の 化学反応式で構成され, ガス状成分は, NO, NO₂, O₃, SO₂, HNO₃, 炭化水素類やラジカル類などを含む. Carmichael *et al*. (1991) では生物起源の炭化水素反 応が拡張されている.

沈着過程で重要な乾性沈着速度は、海・平野・山岳 別に、Wesely (1988)の乾性沈着モデルによって与え た.本研究と鵜野ほか (1997)のモデル研究との大き な違いは、モデル上端での O_3 濃度を渦位 (Potential Vorticity, PV)に比例させて与えたこと、海水面温度 (SST)と850hPaの気温に基づいて海上の混合層を診 断的に与えたことの2点である。 第1図に示す中国・朝鮮半島・日本列島を含む東経 110度~150度,北緯20度~50度を計算領域とし,経緯 度1度メッシュ(グリッド数:東西方向41,南北方向31) に分割した.モデルは鉛直方向に10レベルをとり,各 格子点の高度は,200,400,700,1000,2000,3000, 4000,5000,7000,10000 mとした.

東アジア地域における SO₂と NO_xの 排出量は Akimoto and Narita (1994) による経緯度 1 度メッ シュデータを用いた. 非メタン炭化水素 (NMHC) 排 出量は, 経緯度1/3度メッシュの人口データをもとに Piccot *et al.* (1992) の国別成分別排出量を配分し, 再度, 経緯度 1 度メッシュデータに統合した.

気象データは、気象庁の全球客観解析データ

第2表 モデル高度レベルと南端 と北端でのO₃の側方境 界濃度.

モデルレベル	南端 O3	北端 O₃
(m)	(ppb)	(ppb)
10000	35PV ^{a)}	35PV ^{a)}
7000	75	95
5000	65	90
4000	45	75
3000	30	65
2000	25	55
1000	20	55
700	15	55
400	15	50
200	15	40
a)DIT (10 617	2 1 _1 _	1)

^{a)}PV $(10^{-6}$ Km² kg⁻¹ s⁻¹)

GANAL (12時間毎, 1.875度格子)の風速, 温度, 露 点温度,等圧面高度を空間・時間補間して,計算領域 内のメッシュ点データとした.また,陸上には大気境 界層の日変化を与え,海上はSST 解析値 (NCAR)と 850 hPa の気温をもとに安定・不安定の判定を行い, 海上の混合層を設定した.また,鉛直風速 w は連続の 式により求めた.

STEM による計算は、5月2日9時(日本時間)から15日9時までを対象とした.初期濃度は O_3 以外をゼロとした. O_3 の初期濃度分布は、第2表に示すような濃度を南端と北端に与え、その間を線形内挿した.また、東側境界を除いた側方境界濃度は初期濃度に固定した.

モデル上端のオゾン濃度の設定は成層圏から対流圏 へのオゾンの沈降の効果を議論する上で重要である. オゾンゾンデを用いた高層観測は館野で2回(5月7 日,20日),札幌と鹿児島で1回(5月20日)のみで, 第1図に示したモデル領域の上部境界条件の設定には 不十分である.

対流圏上部から成層圏では O_3 濃度と PV には高い 相関が知られている(例えば, Ebel *et al.*, 1991). 館 野の O_3 観測結果と ECMWF 全球客観解析データか ら算出した PV の高度10~16 km の範囲では,

$$O_3 (ppb) = 35 PV (10^{-6} Km^2 kg^{-1} s^{-1})$$
 (2)

なる関係が得られる.本研究では、この結果をもとに、 モデル上端での PV を ECMWF データから時間・空 間補間し、式(2) で O_3 濃度に変換して、上部の境界濃 度として毎時間与えた.この方法は基本的に Ebel *et*

名称	内容	上部境界条件 ^{a)}
CHEM	輸送+反応	$O_3 = 35 PV$
TRANS	輸送計算のみ	$O_3 = 35 PV$
^{a)} O ₃ (ppb),	PV (10 ⁻⁶ Km ² kg ⁻	¹ s ⁻¹)の単位

al. (1991) や Liu et al. (1996) と同一である.

モデル計算は、第3表に示すように、モデル上端の O_{a} 境界濃度を与え、成層圏から対流圏への O_{a} の輸送 の効果を検討する輸送計算のみの TRANS、対流圏内 での化学反応も加味した CHEM の2通りについて 行った.

4. 結果と議論

4.1 観測とモデルの比較

第3図には,モデル(CHEM, TRANS)と観測値と の比較を示してある.ここで,モデル結果は,観測点 の緯度・経度と標高に補間したものである.

第3図に示した CHEM (実線)の結果は, 観測(細い実線及び点線)された濃度レベルや日々変化などの 主要な特徴を再現している.

時間変化を詳細に見ると、雲仙と三郡山の O_3 の変動 は再現されているが、三郡山での6日~10日にかけて の O_3 の細かいピークは表現されない。これは、モデル の空間分解能の制約のためと考えられる。

八方尾根についても、モデル(CHEM)と観測値の 変動は一致している。八甲田山も濃度レベルはよくシ ミュレートされているが、8日~9日の高原状のピー クが再現されていない。ピーク出現時刻(観測は10日 3時頃)が半日程度早いなどの不一致が見られるが、 手稲山も八甲田山と同様に濃度レベルは再現されてお り、モデル計算結果は観測の特徴を概ね再現している。

13日の雲仙と三郡山の CHEM は観測値を上回り, 観測されたような濃度の"くぼみ"(図中に↓で示した) を再現できていない.この濃度の"くぼみ"は第2, 3 図に示されたように,12~13日にかけて九州地域に は海洋性の O_3 の少ない気塊が侵入し,その後中国大陸 の汚染質のため生成された O_3 の豊富な気塊が低気圧 (前線)の通過後に輸送され O_3 濃度の上昇をもたらし たためである.特に,濃度の上昇は第3図(d),(e) に示されるように前線の通過後に急激である.これは 第5図(e)~(f)に見られるように,中国大陸と台湾 方面からの輸送された光化学 O_3 の寄与が大きいため である. 化学反応を入れた CHEM の結果が,三郡山や雲仙 で観測された急激な O₃の上昇を再現しないのは,12時 間間隔の GANAL データでは時間解像度が少ないこ とやモデルの空間分解能(水平100km)が不十分であ るためと考えられる.

4.2 対流圏内の反応の寄与

432

第5図には、5月8日~13日の、CHEMのz=1000mのO₃濃度と反応の寄与率の分布を示す.ここで、反応の寄与率は、(CHEM-TRANS)/CHEMで計算している.

日本付近の高度1000 m での O_3 濃度は11日まで60 ppbを越えている.また、90 ppbを越える高濃度域が 中部日本域(8日~10日)と北海道西部海上(9日) に見られ、中部日本域の高濃度域は第2図に示された 日本域の高気圧の位置と対応している.

対流圏内の化学反応の寄与は,8日~10日の日本域 では10~30%程度である。中部日本域では30%を越え ているが,9日の北海道西部海上の反応寄与は10%以 下である。一方,台湾と中国大陸南部では反応寄与は 40~60%に達しているが,O₃濃度は,40~60 ppb で, 日本域に比較して低濃度である。

12日以降は,太平洋〜東シナ海からの南西気流によ り海洋性の気流が侵入しO₃濃度が低下する.11日〜13 日にかけては日本域での反応の寄与は10%程度となる が,13日後半からは東シナ海〜西日本域で,反応の寄 与が上昇し,30〜40%に達する.これは中国大陸から 長距離輸送された汚染質によると考えられる.

第4表には,第1図に示した西日本域Wと北日本 域Nの高度レベル毎の反応の寄与率(%)の日平均の 変化を示す。

西日本域では5日~9日にかけて反応の寄与率が地 上から高度700 m の範囲で日毎に上昇し9日には23% に達する.反応の寄与は2000 m 以下の高度で大きく, 2000 m 以上ではほぼ無視できる.これは,第2図(d) ~(f) に示したように高気圧性の時計回りの気流によ り大陸より輸送された汚染質と日本国内で排出された 汚染質が日本上空にトラップされ,大気下層で光化学 反応が進行し O_3 が生成したためと考えられる(第5図 (a) - (c)).

これに対して北日本域では、反応の寄与が高度700 m以下では10%台で推移するが、10日には22%に達す る.これは第5図(d)に示すように中部日本〜西日本 域の光化学 O₃が高気圧の西側を北方に輸送されたた めである. **4.3** O₃と比湿の時空間変化とO₃鉛直輸送フラックス

第6図には, CHEM による札幌, 八方尾根, 雲仙と 第1図の太平洋上の B 点での, O₃濃度と比湿 q の5月 3日~14日にかけての時空間変化を示す.

図から、 O_3 濃度と比湿 q には明瞭な逆相関が見ら れ、(d) に示した B 点を除いて上空から O_3 が沈降して いくパターンが見られる(手稲、八方尾根、雲仙では 10 km のレベルと繋がった O_3 の変化が見える). これ は, 成層圏下部/対流圏上部からの乾燥した空気の沈降 時にオゾン濃度が上昇することを示しており、上空と 地上の O_3 には、1日~2日の時間差がみられている.

札幌と八方尾根の比湿の変化は類似し,上空5 km で は5月4日から乾燥した状態が継続している.これは, 第2図に示した切離低気圧の存在と関係し,北日本域 には低温・低湿の空気が停滞したためと考えられる. しかし,雲仙はそのような変化が見られず,5日~6 日にかけて比湿の上昇が生じている.12日以降は,雲 仙,八方尾根,札幌とも比湿の上昇とO₃濃度の減少が 共通に見られている.

これに対して,太平洋上の B 点は,他の3 点と様子 が異なっており,上部の O₃域と切り離されて対流圏中 を高濃度の O₃が輸送されている.

第5表には、第1図の日本海Aと太平洋B地点を 中心とした東西、南北5×5度の領域のz=7000 m で のオゾンの日平均鉛直フラックス ($w \times O_3$: 10¹¹molecule/cm²/sec)を示す.

まず,日本海側では,10日まで下向きの輸送が生じ て,その後11日から上向きの輸送となる.日本海域で 大きな下向きの輸送は第2図に示されたジェット気流 の蛇行・分岐が日本海〜日本南岸で生じ,w<0の領域 が位置したためである.

ここで示された O_3 輸送のフラックスの大きさは、 Viezee *et al.* (1983) が春季の移動性低気圧通過後に 生じた成層圏からの沈降時の飛行機観測で得た $-5 \sim 6 \times 10^{12}$ molecule/cm²/sec や、Ebel *et al.* (1991) が ヨーロッパでの春季の対流圏界面 folding と切離低気 圧の数値シミュレーションで z=9.5 km で推定した 値 -1.2×10^{12} molecule/cm²/sec と非常によいオー ダーの一致を見ている.

これに対して、太平洋側では、日本海側よりも遅れ て9日~12日にかけて下向きとなるが、その大きさは 日本海側にくらべ1桁小さい。下向きフラックスは高 気圧の前面で生じ、この時間遅れは、移動性高気圧の



第5図 5月8日~13日の CHEM で計算された z=1000 mの O₃濃度(等値線;10 ppb 間隔)と反応の寄与率(%;トーン)の分布。

Date	0-700 m	700-2000 m	2000-4000 m	4000-7000 m
3	4 / 0	0/-1	-3/-4	-1/-1
4	12/8	5/4	-2/-1	-1/0
5	18/13	10/7	-2/0	-2/0
6	17/13	8/7	-2/-1	-2/0
7	19/12	10/6	-2/-2	-2/-1
8	22/12	11/ 6	-3/-3	-1/-1
9	23/15	12/9	-3/-3	-2/-2
10	15/22	4 / 14	-8/-3	-5/-3
11	0/15	-6/6	-11/-9	-4/-5
12	4 / 8	-2/1	-6/-6	-4/-2
13	12/6	6/ 0	-2/-5	-4/-3
14	19/3	13/ 0	1/-3	-2/-2

第4表 高度レベル毎の日平均の化学反応寄与率(第1図の 西日本域 W/北日本域 N についての%).

東進と関係している.

4.4 成層圏から対流圏へのO3輸送

4.3節までの議論は、観測された地上の高濃度の O_s に成層圏起源の O_s の割合が大きいことを示している. 7日~10日にかけて朝鮮半島~日本海には第2図に示 したように切離低気圧が位置し、この切離低気圧の西 側の上空の強い下降流が対流圏への輸送の重要な因子 と考えられる.ここでは、北日本で観測された沈降プ ロセスを O_s 分布、速度・温位場、トラジェクトリー解 析の結果に基づき議論する.

第7図には、5月7日21時から10日9時までの北緯 43度の東西鉛直断面内での O_3 濃度と流線、地上とz=10 km の O_3 濃度の水平分布、高度z=700 m 面での流 線を12時間間隔で示す。

図示された,東西鉛直断面内の流線と O_3 濃度の時間 変化は第3図に示した札幌(野幌,手稲山)での高濃 度 O_3 の出現を極めて鮮明に説明している.即ち,朝鮮 半島付近でジェットの分岐に伴う北風ゾーンに見られ る強い下降気流(第2図(d)参照)があらわれ,上空 の O_3 を対流圏内部に引き込む.その後,下降気流域は 時間とともに東に移動し,その下部に O_3 が輸送され る.しかし,上空z=10 kmの高濃度 O_3 域は下降気流 域よりも早く東進するため,10日9時には北海道上空 10 km で低濃度域がみられる(第3図からこの時点で は地上の O_3 濃度は100 ppb 程度である).

このような下部成層圏の O_3 の増加は,成層圏の空気 塊の対流圏の侵入によって地表 O_3 濃度にも影響を与 える.しかしながら,地表の O_3 濃度が上昇する頃には, 下部成層圏の O_3 の高濃度域は通り過ぎるので, TOMS でみるオゾン全量のピーク時期より1,2日遅 れて地上 O_3 の高まることになる. このような東進の位相差や,対流圏内の輸送の特徴 を把握するために,トラジェクトリーと等温位面の解 析を行った.

7日9時に310Kの温位面上で緯度経度それぞれ 2.5度間隔に配置した粒子のトラジェクトリーを等温 位解析で10日9時まで3日間追跡した.トラジェクト リーの計算はHayashida *et al.*(1991)を用いた.第 8図にはその中から,大きな下降運動を示した代表的 軌跡を抽出して示す.粒子の降下はいずれも後半の1 ~2日の間に起きており,圏界面付近(約7500 km)か ら約3500~4000 mまで下降している.図から軌跡が2 系統に大別できる.即ち,1つは北緯35度から25度付 近にかけて大きく下降するタイプで,下降の東西位置 は東経140~150度にあたる.もう1つは図中の破線で 示されるように北緯45度付近からなだらかに下降する タイプで,下降の東西位置は130~135度である.北日 本にオゾンの高濃度をもたらしたのは,後者のタイプ (破線)であると考えられる.

東経135度に沿った5月8日9時の温位の南北鉛直 断面分布と310Kの温位線の位置変化(第9図)からこ の下降運動を検討してみる.8日9時の310Kの等温 位線を見ると,北緯35度以北では,等温位線はほぼ平 坦,または,北に向かってわずかに下降しているのに 対して,北緯35度以南では大きな南北勾配を示してい る.前者の軌跡は,この大きな南北勾配を持つ等温位 面上を滑り降りたと解釈できる.次に310K線の高度 変化を見ると,35度以北では8日9時から9日9時に かけて約2500mという大きな下降を示している.後者 の下降はこの温位面の下降に伴って引き起こされたと 考えられる.この温位面下降は単なる高低気圧の東進 に伴う現象ではないと判断されるが,どのようにこの

"天気" 45. 6.



 第6図 CHEM で計算された札幌,八方尾根,雲仙 と第1図の太平洋上のB点での,O₃濃度 (ppb;トーン表示)と比湿 q (g/kg;等値 線表示)の5月3日~14日にかけての時空 間変化. 横軸は Julian day で121が5月1 日に相当する. 第5表
第1図の日本海Aと太平洋B地点を
中心とした東西,南北5度の領域の
z=7000 m でのオゾンの日平均フラックス(w×O₃;×10¹¹molecule/cm²/ sec).

日	日本海A	太平洋B
3	-31.86	7.01
4	-53.00	5.42
5	-5.53	3.36
6	-42.48	8.22
7	-15.40	6.72
8	-20.14	-0.20
9	-17.16	-6.14
10	-6.96	-6.32
11	13.21	2.06
12	16.98	-2.15
13	15.61	0.95
14	21.85	5.24

温位面下降が引き起こされたかを把握するにはさらな る解析が必要である.

5. まとめ

1987年5月の日本域の高濃度 O_s の観測結果を物質 輸送モデルシミュレーションにより解析した。物質輸 送・変質モデルはSTEM (Sulfur Transport Eulerian Model; Carmichael *et al.*, 1991)を修正したものを 利用し,気象庁全球客観解析データを用いて5月2日 ~15日までの日本域を中心とした東アジア域対流圏 O_s のシミュレーションを行った。

解析の結果,以下の点が明らかにされた.

- 観測データ,モデル結果,全球解析データはすべて整合的な結果を与え,モデル結果は観測された O₃濃度の空間・時間変化を再現した.その結果, 春季の日本付近の高濃度 O₃には,成層圏起源の O₃の沈降が重要な寄与を示すことが明らかにされた.
- モデルの感度解析から、地上付近の O₃に対する対 流圏内の光化学反応の寄与率は10~25%に過ぎ ず、成層圏起源の O₃が支配的であることがわかっ た.
- 3) O₃-比湿 q の時空間変化には逆相関がみられ,成 層圏から対流圏への侵入の3次元構造が示された。上空7000 m で下向きの輸送フラックス w× O₃は日本海中部で最大10¹² molecule/cm²/sec の オーダーを取った。四国南部の太平洋上ではそれよりも1桁小さなオーダーを取った。この大きさ の差は,温位面の南北勾配と上空の下降気流の強



第7図 5月7日21時から10日9時までのモデル(CHEM)の北緯43度の鉛直東西断面(O₃濃度と流線;カラー表示),地上O₃濃度(カラー表示),z=10kmのO₃濃度(等値線;100ppb間隔)の水平分布,z=700mの水平面の流線を12時間間隔で示す.東経110~150度,北緯20~50度を表示.





第8図 CHEM の1987年5月7日9時の310Kの温位面から計算した等温位面にそったトラジェクトリー.●が計算開始点,○は24時間毎の位置を示す.



さの違いによるものである.

4)トラジェクトリー解析から、対流圏上部から対流 圏下部への輸送は1~2日の極めて短い時間ス ケールで生じたことが示された。

本論文では、モデルの上端を10 km としたが、渦位 と O_{3} は20 km 前後から相関が大きくなる.そのため、 今後はモデルの上端を20 km 程度まで引き上げること が必要である.また、モデル計算における人為・生物 起源の炭化水素発生量の O_{3} 濃度に対する感度解析を

1998年6月

行うこと,他の春先の O₃高濃度の事例について同様な モデル解析を行うことが成層圏起源の O₃の寄与を定 量化する上で必要である。

謝辞

論文に利用した O₃観測データの提供に便宜を頂い た,沖縄県衛生公害研究所金城義勝氏,福岡県保健環 境研究所宇都宮彬博士,長野県衛生公害研究所薩摩林 光博士,青森県環境保健センター早狩進氏,北海道大 学村尾直人助教授,北海道環境科学研究センター秋山 雅行氏に感謝します.また,雲仙の O₃観測データは国 立公害研究所(現国立環境研究所)の特別研究の一部 として行ったものであり,観測の中心的役割を果たさ れた国立環境研究所若松伸司総合研究官,京都大学防 災研究所植田洋匡教授,長崎県衛生公害研究所の関係 各位に感謝します.

本研究の気象データ解析とトラジェクトリー計算に は、国立環境研究所地球環境研究センターの「対流圏 モニタリングデータ評価のための気象データ解析シス テム(通称 CGER-GMET)」を利用したこと、渦位 PV の計算には国立環境研究所中根英昭総合研究官に便宜 を図って頂いたこと、本研究の一部はアイオア大学の Prof. Gregory R. Carmichael と Mr. Mahesh J. Phadnis との議論を契機としてまとめられたものであることを記して謝意を表します.

参考文献

- Akimoto, H. and Narita, H., 1994 : Distribution of SO_2 , NO_x and CO_2 emissions from fuel conbution and industrial activities in Asia with 1°x1°resolution, Atmos. Environ., **28**, 213–225.
- Austin, J. F. and R. P. Midgley, 1994 : The climatology of the jet stream and stratospheric intrusions of ozone over Japan, Atmos. Environ., **28**, 39–52.
- Browell, E., E. F. Danielsen, S. Ismail, G. L. Gregory and S. M. N. Beck, 1987 : Tropopause fold structure determined from airborne lidar and in situ measurements, J. Geophys. Res., 92, 2112–2120.
- Carmichael, G. R., L. K. Peters and R. D. Saylor, 1991: The STEM-II regional acid deposition and photo-chemical oxidant model: I An overview of model development and applications, Atmos. Environ., 25A, 2077-2090.
- Danielsen, E. F., 1968 : Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vortticity, J. Atmos. Sci., **25**, 502-518.
- Danielsen, E. F., 1980 : Stratospheric source for unexpectedly large values of ozone measured over the pacific ocean during Gametag August 1977, J. Geophys. Res., 85, 401-412.
- Ebel, A., H. Hass, H. J. Jakobs, M. Laube, M. Memmesheimer, A. Oberreuter, H. Geiss and Y-H. Kuo, 1991: Simulation of ozone intrusion caused by a tropopause fold and cut-off-low, Atmos. Environ., 25A, 2131-2144.
- Hayashida, A. S., Sasano S. and Iikura, Y., 1991: Volcanic distribution in the stratospheric aerosol layer over Tsukuba, Japan observed by the National Institute for Environmental Studies lidar from 1982 through 1986, J. Geophys. Res., **96**, 15469-15478.
- 早狩 進, 梅原 茂, 吉田 毅, 溝口次夫, 1989:八甲 田山におけるバックグランドオゾンの挙動, 国立公害 研究所特別研究報告 No. 123, 121-143.
- 栗田秀寶,内田英夫,光本茂記,植田洋匡,溝口次夫, 1989:中部山岳地域におけるバックグランドオゾン濃度,国立公害研究所特別研究報告,No.123,145-163.

- Liu, S. C., S. A. McKeen, E-Y. Hsei, X. Lin, K. K. Kelly, J. D. Bradshaw, S. T. Sandholm, E. V. Browell, G. L. Gregory, G. W. Sachse, A. R. Bandy, D. C. Thornton, D. R. Blake, F. S. Rowland, R. Newell, G. G. Heikes, H. Singh and R. W. Talbot, 1996: Model study of tropospheric trace species distributions during PEM-WEST A, J. Geophys. Res., 101, 2073-2085
- Lurmann, F. W., Lloyd, A. C. and Atkinson, R., 1986 : A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling, J. Geophy. Res., **91**, 10905–10936.
- Murao, N. S. Ohta, N. Furuhashi and I. Mizoguchi, 1990: The causes of elevated cencentrations of ozone in Sapporo, Atmos. Environ., 24A, 1501-1507.
- Piccot, S.; Watson, S. D.; Jones, J. W., 1992 : A global inventory of volatile organic compound emissions from anthropogenic sources, J. Geophy. Res., 97, D9, 9897–9912.
- Sunwoo, Y., V. R. Kotamarthi and G. R. Carmichael, 1992: The regional distribution of tropospheric ozone in east Asia from satellite-based measurements, J. Atmos. Chem., 14, 285-295.
- 鵜野伊津志,大原利眞,森 淳子,宇都宮彬,若松伸司, 村野健太郎,1997:東アジアスケールの長距離物質輸送・変質過程のシミュレーション,大気環境学会誌, 32,267-285.
- 宇都宮彬,岩本真二,溝口次夫,1989:三郡山における バックグランドオゾンの挙動,国立公害研究所特別研 究報告 No. 123, 191-205.
- Viezee, W., W. Johnson and H. Singh, 1983 : Stratospheric ozone in the lower troposphere-II. Assessment of the downward flux and ground-level impact, Atmos. Environ., 17, 1979-1993.
- 若松伸司編,1991:雲物理過程を伴う列島規模大気汚染 に関する研究,国立環境研究所特別研究報告 SR-7-'91.
- Wakamatsu, S., I. Uno, H. Ueda, K. Uehara and H. Tateishi, 1989: Observational study of stratospheric ozone intrusions into the lower troposhere, Atmos. Environ., 23, 1815–1826.
- Wesely, M. L., 1988 : Imporved parametrizations for surfaces resistence to gaseous dry deposition in regional scalle model, EPA / 6003-86 / 037 (PB86-218104).

A Simulation of Springtime Tropospheric Ozone Episode over Japan Area

Itsushi Uno* and Seiji Sugata**

* (Corresponding author) National Institute for Environmental Studies (Present affiliation: Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Kasuga 816-8580, Japan).

(Received 20 February 1997; Accepted 23 January 1998)

国際学術研究集会への出席補助金受領候補者募集のお知らせ

一国際学術交流委員会-

国際交流事業(天気32巻5号 p232)の一環として国 際学術交流運用規定(天気41巻7号 p444)に基づき, 国際学術研究集会への旅費もしくは滞在費の補助を下 記により行いますので,希望者は期日までに応募願い ます.

記

1. 対象の集会

1998年12月1日~1999年5月31日の期間外国で開 かれる国際学術研究集会

2. 応募資格

日本気象学会会員で国際学術研究集会に出席し論 文の発表もしくは議事の進行に携わる予定のも の、ただし、ほかから援助のあるものは除く。

3.募集人員

若干名

4. 補助金額

開催地域を考慮し最高15万円程度

5. 応募手続

所定の申請書類を期日までに国際学術交流委員会 (〒100-0004 東京都千代田区大手町1-3-4 気象 庁内日本気象学会気付)に提出する.大学院生は 指導教官の推薦状を併せて提出する.

- 期日:1998年9月15日
- 注:申請書は最新の様式のものを日本気象学会事務局から取り寄せるか、気象学会ホームページにあるものを使用すること。申請書の様式は断りなく変更することがある。古い様式の申請書で応募しても受理しない。e-mailでの申請は受け付けない。

6. 補助金受領者の義務

当該集会終了後30日以内に集会出席の概要を「天 気」に掲載可能な形式で1ページ(2000字)程度 にまとめ,報告書として委員会に提出する.

^{**} National Institute for Environmental Studies.