

# 東アジア域の大気質変動の解明に向けた ソース・レセプター解析の高度化に関する研究

—2015年度山本賞受賞記念講演—

板橋 秀一\*

## 1. はじめに

この度は、日本気象学会より名誉ある山本賞を授与頂き心より光栄に存じます。大変うれしく思うと同時に、この賞の名に恥じないように今後とも懸命に精進したいと思う次第です。私は修士課程から、化学物質輸送モデルという大気中の微量成分の動態を計算する数値モデルをもとに研究を進めています。受賞対象となりました3編の論文は、Itahashi *et al.* (2012, 2013) は九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム学専攻博士後期課程の、また、Itahashi *et al.* (2015) は現職場である電力中央研究所環境科学研究所に入所してからの研究成果になります。この過程において、多くの方々に支えられて研究を進めることができたことに本当に感謝いたします。

さて私の研究ですが、日本気象学会のキーワード例に従いますと、主キーワードが物質循環システム、副キーワードが微量組成、物質輸送、大気化学、あるいは主キーワードが環境気象、副キーワードが大気汚染、といった分野に該当します。修士課程から現在まで、ほとんど無欠席で大会には参加してきましたが、春・秋の大会のセッションでこのような分野の会場に入られたことのない方ももちろんいらっしゃるかと思います。この解説では、まず研究に至った東アジア域の大気環境問題という背景について触れ、以降、受賞対象論文等をもとに研究成果についての解説を進めたいと思います。

## 2. 東アジア域の大気環境問題

種々の大気環境問題は産業革命以降の人類にとって解決すべき大きな問題であることは言うまでもありません。東アジア域においては、わが国はかつて公害問題を経験しましたし、近年では、経済成長の著しい中国の大気汚染問題はよく知られているところだと思えます。とりわけ、2013年1月の微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)による大気汚染は、メディアでも頻繁に取り上げられました。PM<sub>2.5</sub>という一昔前の専門用語は、今では広く国民に周知された単語となっています。これより少し前のことですが、2007年5月には光化学オキシダントの広域汚染の問題が生じました(大原 2009)。西日本では新聞の一面にも取り上げられるなど、これも広く関心が寄せられた大気汚染問題の一例と思えます。今回ご紹介する研究成果の対象は、この光化学オキシダント、中でもその主要成分であるオゾン(O<sub>3</sub>)になります。

まずO<sub>3</sub>ですが、対流圏のO<sub>3</sub>と成層圏のO<sub>3</sub>をきちんと区別しておきたいと思えます。成層圏のO<sub>3</sub>は、オゾン層として知られているように、生物にとって有害な紫外線を吸収することから「良いO<sub>3</sub>」と言えます。これとは対照的に、対流圏のO<sub>3</sub>は、その強い酸化力のために、植物の生育阻害や、人体、特に目や呼吸器系への刺激などといった悪影響が問題となります。温室効果気体の1つでもあります。このことから「悪いO<sub>3</sub>」と言えます(秋元ほか 2005)。健康影響があるということから、環境基本法のもと、光化学オキシダントに対しては、1時間値が0.06 ppmv (ppmv=10<sup>-6</sup>mol/mol) 以下であること、という環境基準が設けられています(この解説では、以後ppbv=10<sup>-9</sup>mol/molの単位を用います)。それではこの環境基準をどれくらい達成できているのでしょうか

\* 電力中央研究所。

isyuichi@criepi.denken.or.jp

—2016年3月1日受領—

—2016年4月18日受理—

か？ 環境省では、全国1000を超える地点で環境基準の定められた大気汚染物質等の地上観測を行っています。最新の平成25年度の測定結果を見てみると、光化学オキシダントの環境基準を達成した局は1,182局中4局で、達成率は0.3%でした。なお、PM<sub>2.5</sub>についても16.1%と低い水準で、一方、二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>) はほぼ100%、二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) は100%でした (環境省 2015)。光化学オキシダントの環境基準の達成率が著しく低い水準にあることは過去についても同様であり、むしろ、近年ではその濃度が増加傾向にあることが大きな問題の1つとなっています。

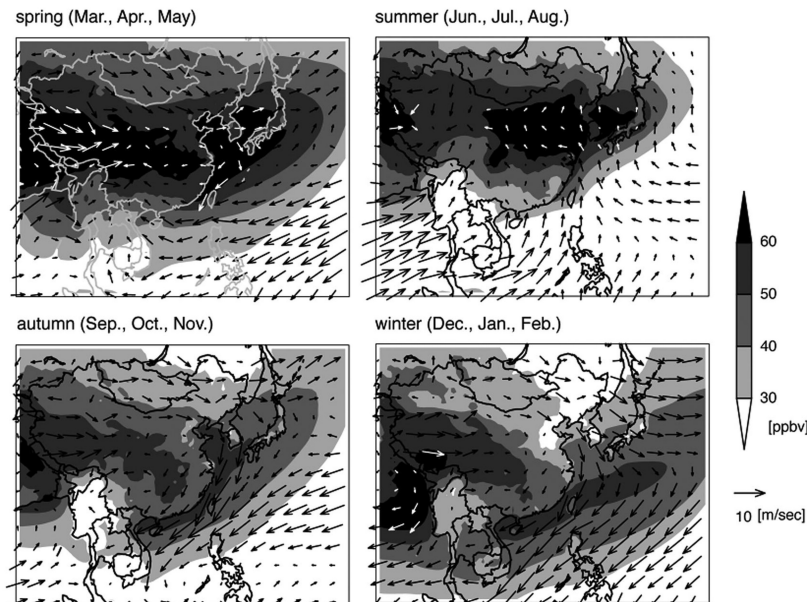
対流圏 O<sub>3</sub> は直接排出される大気汚染物質ではありません。大気中において窒素酸化物 (NO<sub>x</sub> = NO + NO<sub>2</sub>) と揮発性有機化合物 (Volatile Organic Carbon; VOC) から光化学反応を経て生成します。わが国の NO<sub>x</sub> および VOC 排出量は NO<sub>x</sub>・PM 法や VOC 排出規制などの排出対策によって減少傾向にあります。わが国における前駆体の排出量は減少している一方で、O<sub>3</sub>濃度は増加傾向にあるというのは一見矛盾しているように思えます。ところが、東アジアに目を向ければ、中国を筆頭として NO<sub>x</sub> と VOC の人為起源排出量は急速に増加してきており、2000年代にはすでにその総量は欧米を凌駕するレベルに至っています (Akimoto 2003)。このようなことから、国境を

越える大気汚染、いわゆる越境大気汚染という問題が想定できます。わが国の地上観測のみから東アジアスケールの O<sub>3</sub>の動態を把握することには限界があり、空間分布の把握や、ひいては国内外の排出量の影響評価といった仮想実験も可能な数値シミュレーションを用いた研究の必要性が考えられます。

大気汚染物質の発生・輸送・反応・沈着という各過程の動態を、物理・化学法則に基づいて任意の3次元空間でシミュレーションするのが、化学物質輸送モデルです (鶴野ほか 2005)。具体的な数式で記述をすれば、

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \cdot F + E + R + D \quad (1)$$

となります。ここで、 $-\nabla \cdot F$  は輸送 (移流および拡散)、 $E$  は排出、 $R$  は化学反応、 $D$  は沈着を表します。気象学で取り扱うナビエ・ストークスの方程式に化学過程に係る項がくっついた形になっています。以下、各項について簡単に説明します。輸送項  $-\nabla \cdot F$  は大気汚染物質の水平・鉛直方向への輸送を表し、一般には気象モデルの計算結果を利用します。排出項  $E$  は、どの領域からどの汚染物質がどれだけの量だけ排出されているかを推定したもので、例えば、アジア域においてはアジア大気汚染研究センターや国立



第1図 地表オゾン濃度の季節変動。

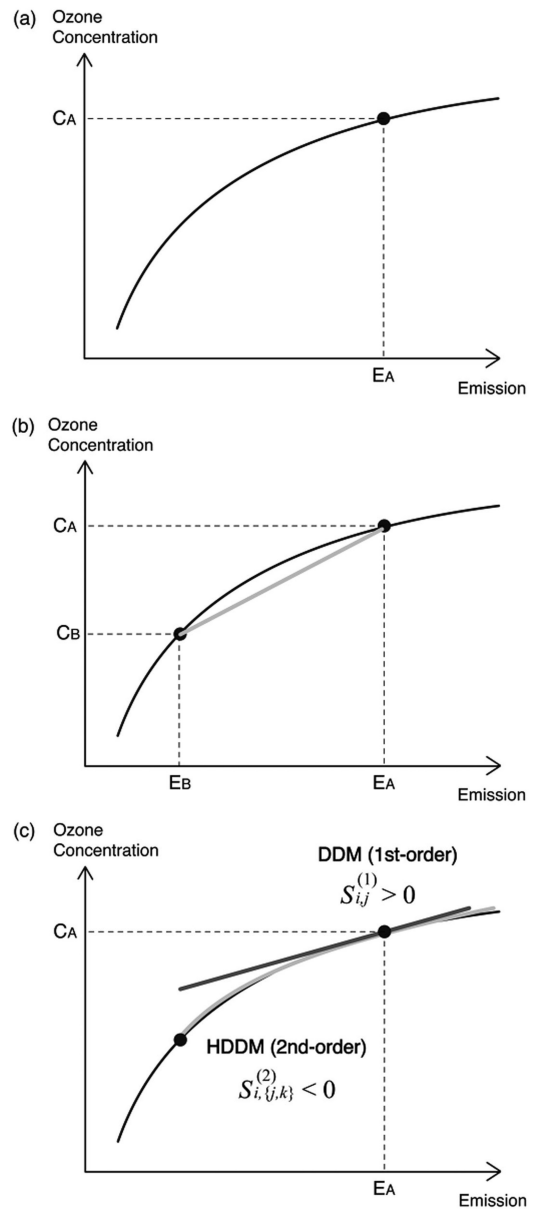
環境研究所、海洋研究開発機構等が中心に作成された Regional Emission inventory in ASia (REAS) が利用可能です。排出量データは、経済統計資料等をもとに作成されるため、データの作成までに数年を要し、REAS version 1.1 (Ohara *et al.* 2007) では1980年から2003年まで、REAS version 2.1 (Kurokawa *et al.* 2013) では2000年から2008年までのデータが利用できます。化学反応項  $R$  は大気汚染物質の生成項にも消失項にも成り得ます。化学反応に係る温度や湿度などの気象条件は、これも気象モデル

の計算結果を利用します。化学反応に係る速度定数などの各種データは室内実験等に基づいており、例えば、多く利用されている Statewide Air Pollution Research Center (SAPRC) -99 というデータベースでは、88の化学種、224本のガス態の化学反応式を取り扱います。このガス態の反応のほか、ガス-粒子間の分配には熱力学平衡モデル ISORROPIA などが用いられます。沈着項  $D$  は消失項であり、乱流運動や重力沈降による乾性沈着、雲粒として取り込まれたり、あるいは雨で除去される湿性沈着を含みます。

化学物質輸送モデルを用いた、具体的な計算結果を見てみることにします。第1図には REAS version 2.1などの排出量データを用いて計算した2000年から2008年までの9年平均の地表  $O_3$  濃度の空間分布を季節別に示します。春は環境基準の60 ppbv を超える高濃度域が大陸から日本へ広がっている様子がわかります。夏は光化学反応が盛んなために大陸上に高濃度域が見られますが、一方で太平洋高気圧に支配されて清浄な空気 (30 ppbv 程度) が海洋から流入します。秋も高濃度域が大陸から張り出しますが春よりは濃度は小さくなります。冬は光化学反応が進まないため、また、北西の季節風が卓越するために東アジアでは最も低濃度となっています。なお、これらのモデル再現性については、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia ; EANET, <http://www.eanet.asia/> 2016年3月1日閲覧) 等と比較し、ほぼ妥当であることを検証しています。

### 3. ソース・レセプター解析手法

$O_3$  は前駆体である  $NO_x$  と VOC から生成しますが、上述したように光化学反応を経て生成するため、その応答は複雑で一般的には非線形となります。第2図 a には、前駆体の排出量 (横軸) に対する  $O_3$  濃度 (縦軸) の応答の概念図を示します。ここで、前駆体の排出量  $E_A$  に対し、 $O_3$  濃度を  $C_A$  としておきます。このような基準になる計算を標準実験とここでは呼ぶことにします。モデルが有用な点の1つとして、 $O_3$  濃度の低減に向けて前駆体の排出量をどれだけ減らすべきか? といった仮想的な感度実験ができることが挙げられると思います。例えば、第2図 b に示すように、排出量を  $E_B$  まで削減した際には、 $C_B$  という  $O_3$  濃度が感度実験を通じて計算されます。しかしながら、 $O_3$  濃度の非線形の応答のため、この結果のみから排出量



第2図 オゾンの非線形反応過程の概念図。

$E_A$  と  $E_B$  の算術平均をとったときの  $O_3$  濃度の応答の解釈をすることはできません。

このような問題点を解決すべく、私が修士課程から取り組んできたのが、この非線形の過程を考慮できる感度解析手法になります。それは Decoupled Direct Method (DDM) と呼ばれる手法です。標準実験と感度実験の差し引きから間接的に応答を求めるのでは

なく、モデル内で数学的に感度を直接計算することから Direct, この感度の計算過程における数値演算の発散の問題を化学物質輸送モデルの濃度計算とは切り離したことから Decoupled とつけられました。米国の大気環境研究に用いられた実績は古く、Dunker (1984) から始まります。第2図cに示す直線がそれで、これによって  $O_3$  濃度の応答の傾きが得られます。一般化し、化学成分  $i$  の濃度  $C_i$  の感度パラメータ  $p_j$  に対する1階微分を1次感度係数と呼び、これを定義します。

$$s_{i,j}^{(1)} = \frac{\partial C_i}{\partial p_j} \quad (2)$$

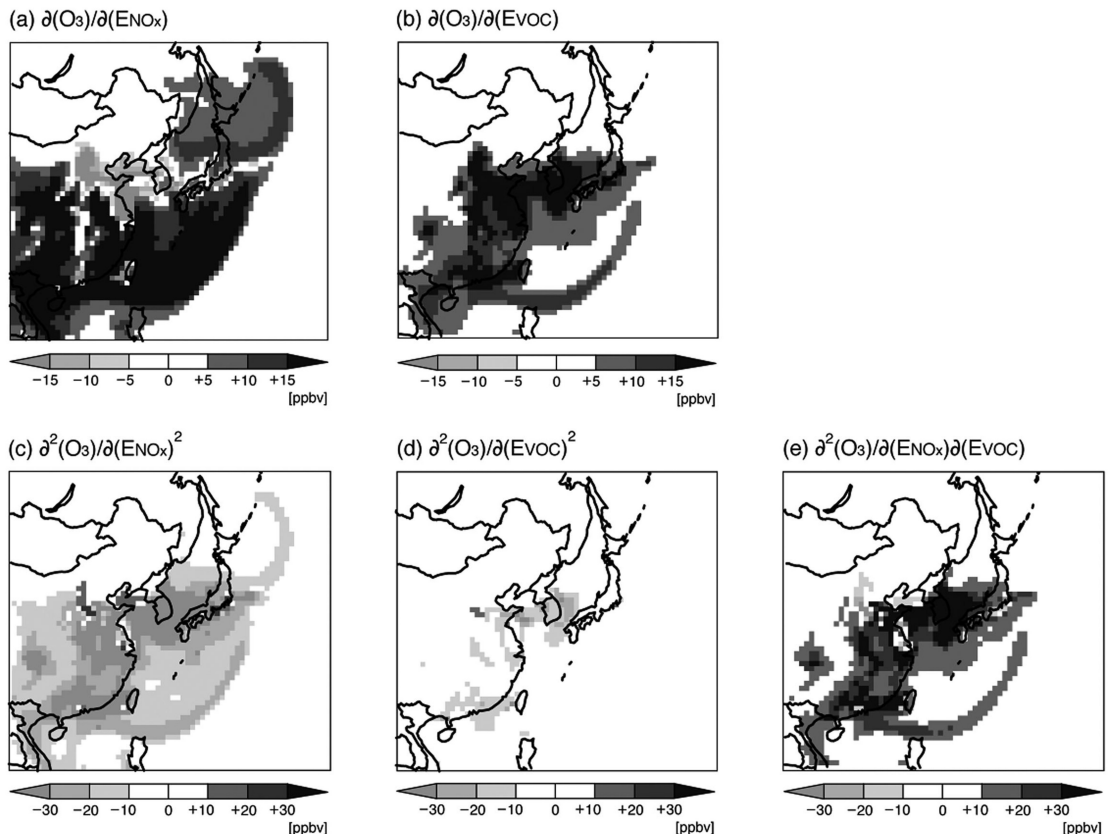
このDDMという手法がアジア域の大気環境研究に適用可能であるかどうか、まずは前駆体の二酸化硫黄 ( $SO_2$ ) に対してほぼ線形に応答すると想定された硫酸塩 ( $SO_4^{2-}$ ) についての研究から着手しました

(Itahashi *et al.* 2012)。その結果、従来から春季においては  $SO_4^{2-}$  の越境輸送も指摘されてきましたが、夏季においても西日本では越境輸送された  $SO_4^{2-}$  の寄与が大きいことを示しました。

さて、話を  $O_3$  に戻すと、前駆体に対して非線形性の応答をする  $O_3$  について、傾きの情報だけではその動態を把握するには不十分です。そこで、第2図cに示す曲線に該当する非線形性を表す曲率も計算できるようにDDMが拡張されたものが Higher-order DDM (HDDM) という手法になります。前の定義に従い、化学成分  $i$  の濃度  $C_i$  の感度パラメータ  $p_j$  および  $p_k$  に対する2階微分を2次感度係数と呼び、これを定義します。

$$s_{i,(j,k)}^{(2)} = \frac{\partial}{\partial p_j} \left( \frac{\partial C_i}{\partial p_k} \right) \quad (3)$$

この手法についても米国の大気環境研究から始まりま



第3図 2007年5月の高濃度エピソード時における  $NO_x$  と  $VOC$  に対する1次感度および2次感度の空間分布 (板橋ほか (2012) の図3をもとに作成)。



す (Hakami *et al.* 2003). その研究対象は光化学オキシダント問題の深刻なロサンゼルスでした。米国における HDDM を用いた研究からは、非常に有益な知見が得られており、この手法を東アジア域に適用する必要性を強く感じました。

以上に紹介した感度係数について、今後の話のために少し式変形をしておきます。上述の1次および2次感度係数の定義では、感度係数は化学成分の濃度を任意のパラメータで除した複雑な単位をもつこととなります。そこで、感度パラメータ  $p_j$  は、基準となる感度パラメータ  $P_j$  (例えば第3図aの  $E_A$ ) に対し摂動を与えたものとし、無次元のスケーリング変数  $\epsilon_j$  を用いて以下のように書けるものとします。

$$p_j = \epsilon_j P_j = (1 + \Delta\epsilon_j) P_j \quad (4)$$

式(2)および式(3)を  $P_j$  を用いて規格化すれば、

$$S_{i,j}^{(1)} = P_j \frac{\partial C_i}{\partial p_j} = P_j \frac{\partial C_i}{\partial (\epsilon_j P_j)} = \frac{\partial C_i}{\partial \epsilon_j} \quad (5)$$

$$S_{i,(j,k)}^{(2)} = P_j \frac{\partial}{\partial p_j} \left( P_k \frac{\partial C_i}{\partial p_k} \right) = \frac{\partial^2 C_i}{\partial \epsilon_j \partial \epsilon_k} \quad (6)$$

と表すことができ、 $\epsilon_j$  は任意の摂動の大きさを与える無次元数であるので、 $S_{i,j}^{(1)}$  および  $S_{i,(j,k)}^{(2)}$  は化学成分の濃度と同じ単位をもつこととなります。以下では、感度係数とはこの規格化感度係数を指すものとします。

東アジアの直面している対流圏  $O_3$  の問題の解決に向けて、感度パラメータとしては人為起源排出量に着眼することとしました。これにより、HDDM 感度解析法を用いて  $O_3$  の前駆体の  $NO_x$  および  $VOC$  の発生源 (ソース) とその影響を受けうる受容域 (レセプター) の関係を評価することが目的です。なお、都市大気における対流圏  $O_3$  生成への寄与を解析する目的から、 $VOC$  からメタンを除いた非メタン揮発性有機化合物 (Non-methane Volatile Organic Carbon; NMVOC) を以下では解析対象としていますが、記述を簡単化するために  $VOC$  と略記することにします。

#### 4. 春季の高濃度事例

第1図に示したような季節変動をもつ  $O_3$  ですが、まずは日本域で高濃度となる春、それも広域の光化学オキシダント汚染の事例として注目を集めた2007年5月に適用した研究内容に関して板橋ほか (2012) の成

果を軸に話を進めていきたいと思えます。

第3図には、HDDM で得られる感度係数について、 $NO_x$  に対する1次感度と2次感度を第3図aとcに、 $VOC$  に対する1次感度と2次感度を第3図bとdに、 $NO_x$  および  $VOC$  に対する2次感度を第3図eに示します。ここではまず領域全体の発生量に対する感度を見ています。まず、1次感度から見てみると、 $NO_x$  と  $VOC$  のいずれも正の感度が大陸から西日本にかけて見られます。これは第2図cの概念図でも示した通り、前駆体の排出量が増加すれば  $O_3$  濃度も増加するという応答の傾きが基本となるからです。また、式(5)で感度係数を無次元化したことから、例えば1次感度係数が+15 ppbvであれば、前駆体の排出量が10%増加したときの  $O_3$  濃度の応答は式(5)より、 $15 \times 0.1 = 1.5$  ppbv であると定量的な評価も可能です。第3図aとbを比較すれば、 $VOC$  については正の感度しか見られませんが、 $NO_x$  については北京から上海北部、韓国にかけて負の感度が見られます。 $NO_x$  は  $O_3$  の前駆体なのですが、排出される段階ではほとんどが  $NO$  であり、この  $NO$  は  $O_3$  を破壊します。これを  $NO$  タイトレーションと呼び、以下の化学反応式で書けます。



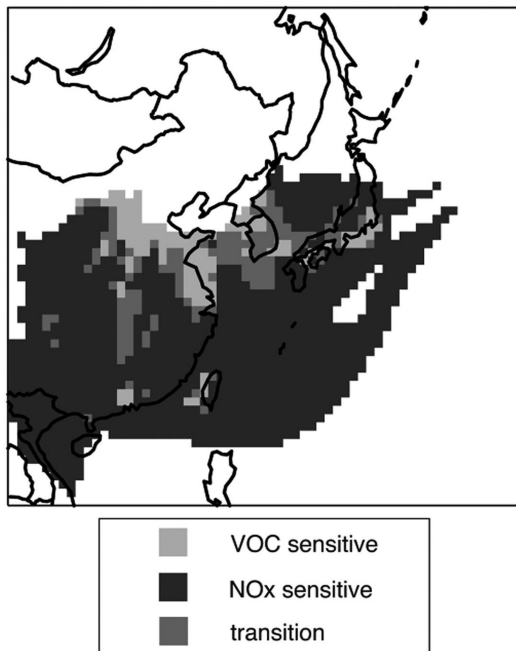
従って、このような  $NO$  タイトレーション等が影響をもつ領域においては  $NO_x$  排出量が増加 (減少) すれば  $O_3$  濃度が減少 (増加) する応答となり、 $O_3$  濃度の低減に向けては単純な前駆体排出量の削減だけでは困難であることを示唆しています。続いて2次感度ですが、いずれも負の感度を持ち、これは第2図cに示した  $O_3$  濃度の応答の概念図で負の曲率を示すことと合致しています。ただ、2次感度の大きさを比較すれば、 $VOC$  のそれに比較して、 $NO_x$  のほうが非常に大きいことがわかります。よって、 $O_3$  濃度応答の非線形性は  $VOC$  については小さく、 $NO_x$  について大きいことが示唆されます。最後に、 $NO_x$  と  $VOC$  に対する2次感度ですが、第3図aとbに示した通り  $NO_x$  と  $VOC$  に対する1次感度は全体的には正の感度をもつので、正の感度となります。つまり、 $NO_x$  と  $VOC$  排出量とともに増加 (減少) すれば、 $O_3$  濃度はさらに生成されやすく (されにくく) なることが示唆されます。このように、感度係数そのものの解釈も  $O_3$  の動態を知る上で非常に重要な知見となります。以下では、この感度係数を用いた応用的な解析結果に

ついて述べていきます。

O<sub>3</sub>の前駆体であるNO<sub>x</sub>とVOCのいずれに感度が大きいかということは、感度係数からおおまかに情報を得ることができますが、それを判別する指標として感度レジームという概念があります(秋元ほか2002)。NO<sub>x</sub>に依存するレジームをNO<sub>x</sub> sensitive、VOCに依存するレジームをVOC sensitiveと呼びます。O<sub>3</sub>がどちらの感度レジームにあるかは、実際の排出量削減対策が有効であるかを把握するためにも重要な情報となりえます。DDMで得られる1次感度係数をもとに、以下の定義に基づいて感度レジームを算出する手法が提案されています(Jin *et al.* 2008)。

$$\begin{aligned} \frac{\partial O_3}{\partial E_{NOx}} < 0, \text{ VOC sensitive} \\ \frac{\partial O_3}{\partial E_{NOx}} > \frac{\partial O_3}{\partial E_{VOC}} > 0, \text{ NOx sensitive} \\ 0 < \frac{\partial O_3}{\partial E_{NOx}} < \frac{\partial O_3}{\partial E_{VOC}}, \text{ transition} \end{aligned} \quad (8)$$

この定義に従って、感度レジームを算出したのが第4図です。ここでも、NO<sub>x</sub>およびVOC発生量は領域全体を対象としています。第4図に示すように人為



第4図 2007年5月の高濃度エピソードにおける感度レジームの空間分布(板橋ほか(2012)の図5をもとに作成)。

起源排出量の大きな中国北京周辺から山東半島、上海北部、韓国のソウルとプサン、日本の関東地方がVOC sensitiveのレジーム、風下域の大部分でNO<sub>x</sub> sensitiveのレジームに相当していました。2007年5月の高濃度エピソード時には、関東を除く西日本一帯がNO<sub>x</sub> sensitiveレジームにあり、2000年以降、特に中国で急速に排出量が増大したNO<sub>x</sub>が、この高濃度事例に大きく影響していたことが示唆されました。なお、感度レジームを推定する定義は、他にもいくつか提唱されていますが、いずれにしても1次感度のみで算出しており、感度レジーム推定に2次感度の情報を導入することは今後の課題の1つと考えています。

もう少し感度レジームに関する議論を進めます。NO<sub>x</sub> sensitiveあるいはVOC sensitiveの感度レジームにおいて、前駆体のNO<sub>x</sub>あるいはVOC排出量の増減がO<sub>3</sub>濃度にどれくらい影響があるかを、感度係数をもとに定量的に推定することを試みます。化学成分の濃度C<sub>i</sub>は感度パラメータp<sub>j</sub>の関数とも言えるので、以下のようにテイラー級数に展開できます。

$$\begin{aligned} C_i(p_j) &= C_i((1+\Delta\epsilon_j)P_j) \\ &= C_i(P_j) + \frac{\partial C_i}{\partial (\epsilon_j P_j)} \Delta\epsilon_j P_j + \frac{1}{2!} \frac{\partial^2 C_i}{\partial (\epsilon_j P_j)^2} \Delta\epsilon_j^2 P_j^2 + \dots \\ &= C_i(P_j) + S_{i,j}^{(1)} \Delta\epsilon_j + \frac{1}{2!} S_{i,j}^{(2)} \Delta\epsilon_j^2 + \dots \end{aligned} \quad (9)$$

ここで、C<sub>i</sub>(P<sub>j</sub>)とは感度パラメータに摂動を与えない際の、つまり標準実験の化学成分濃度になります。すなわち、標準実験で得られた化学成分濃度に対して感度係数と摂動を乗じた値を加えていくことで、任意の摂動に対する濃度の応答を評価することができます。O<sub>3</sub>については、前駆体であるNO<sub>x</sub>とVOCが問題になりますので、式(9)の概念を2変数のテイラー級数に展開して、以下の式を得ることができます。

$$\begin{aligned} C_i(p_j, p_k) &= C_i(P_j, P_k) + S_{i,j}^{(1)} \Delta\epsilon_j + S_{i,k}^{(1)} \Delta\epsilon_k \\ &\quad + \frac{1}{2!} S_{i,j}^{(2)} \Delta\epsilon_j^2 + \frac{1}{2!} S_{i,k}^{(2)} \Delta\epsilon_k^2 \\ &\quad + S_{i,(j,k)}^{(2)} \Delta\epsilon_j \Delta\epsilon_k + \dots \end{aligned} \quad (10)$$

式(10)をもとに、前駆体のNO<sub>x</sub>とVOCの排出量変化に対するO<sub>3</sub>濃度の応答を評価したものが第5図であり、第5図aは第4図のNO<sub>x</sub> sensitiveレジーム、第5図bは第4図のVOC sensitiveレジームに対して算出したものになります。NO<sub>x</sub> sensitiveレジームでは、例えば現況から10 ppbvだけO<sub>3</sub>濃度を

低減しようとするれば、VOC 排出量は約70%削減されなければならないのに対して、NOx 排出量は約20%削減されれば達成されることがわかります。また、現況では VOC 排出量が増加したとしても O<sub>3</sub>濃度はほとんど変化しないことも示唆されます。この一方で、VOC sensitive レジームでは VOC 排出量削減が O<sub>3</sub>濃度の低減に有効であり、逆に NOx 排出量の削減は O<sub>3</sub>濃度を増加させてしまう結果を意味します。これは第4図に示したように、VOC sensitive レジームは大きな排出量の近傍でのレジームであり、NO タイトレーションが働かなくなる方向に向かうためです。HDDM で得られる感度係数を用いた前駆体の排出量に対してのこのような定量的な評価は、実際の大气環境改善に向けて有益な情報を提示できるかもしれません。

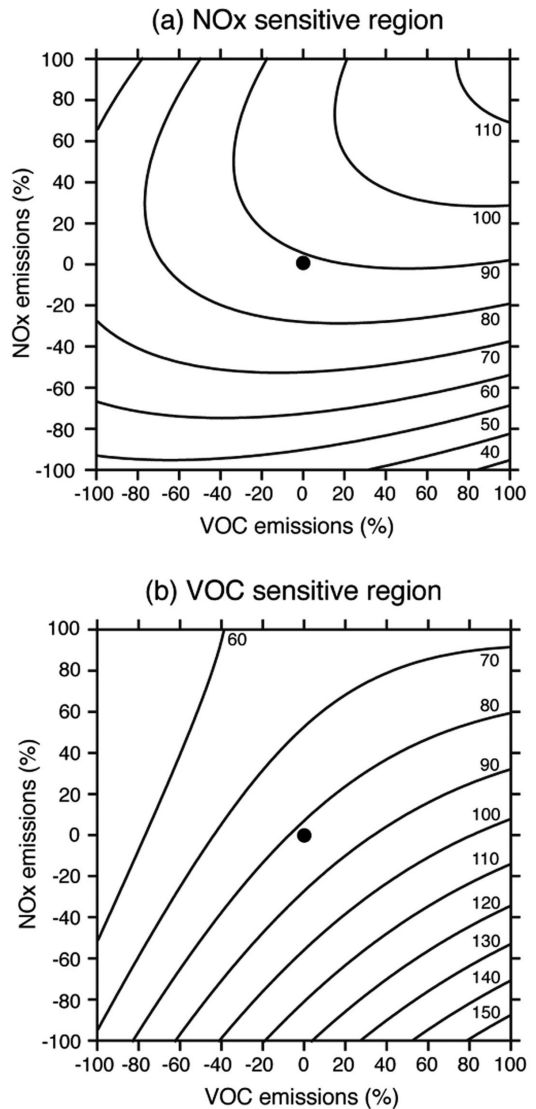
さて、今までの話は、領域全体の排出量に対して考えてきましたが、より具体的に、前駆体の NOx と VOC 排出量を中国、韓国、日本に分けて評価していくことに移ります。前駆体の種別に加えて、前駆体の領域の感度を解析する、ということです。感度として、最も端的に寄与として示すために、排出量がないときを想定します。式(9)において  $p_j=0$ 、すなわち、式(4)より  $\Delta\epsilon_j=-1$  とし、標準実験からの差を求めることとします。式(9)より、

$$C_i(P_j) - C_i(p_j=0) \approx S_{i,j}^{(1)} - \frac{1}{2} S_{i,j}^{(2)} \quad (11)$$

であり、感度パラメータとして2変数を考えれば、式(10)より、

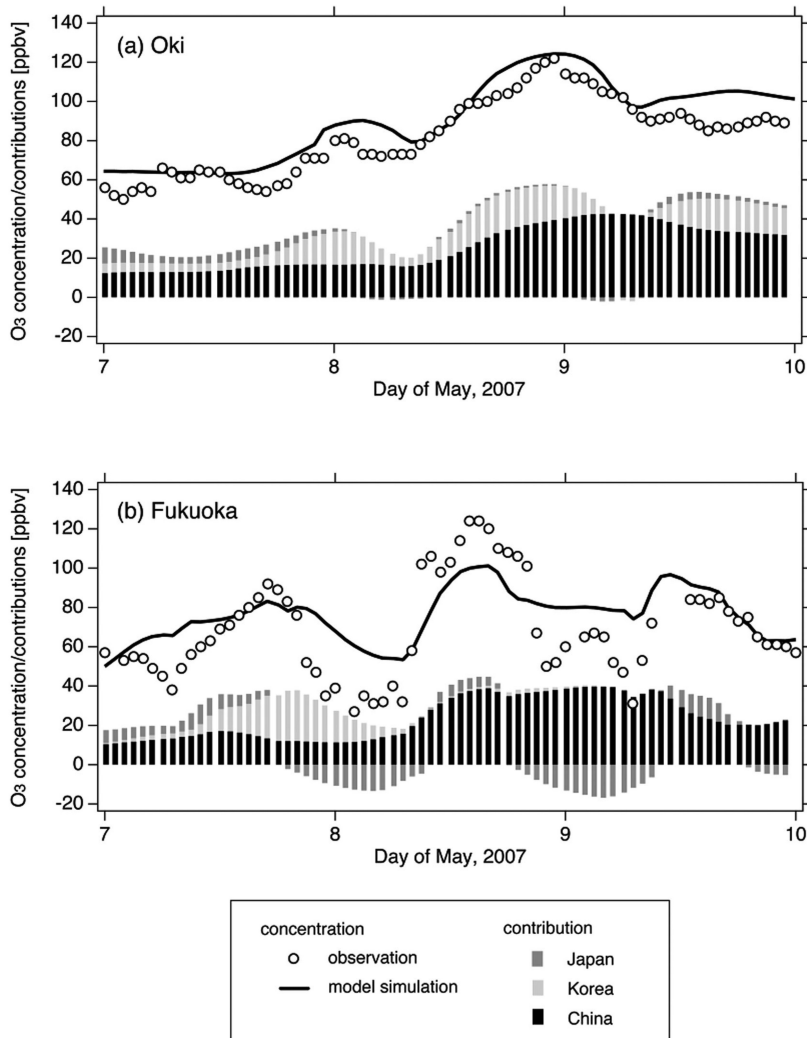
$$C_i(P_j, P_k) - C_i(p_j=0, p_k=0) \approx S_{i,j}^{(1)} + S_{i,k}^{(1)} - \frac{1}{2} S_{i,j}^{(2)} - \frac{1}{2} S_{i,k}^{(2)} - S_{i,(j,k)}^{(2)} \quad (12)$$

が得られます。第6図には、2007年春季に高濃度となった5月7日から9日までのモデル計算値と地上観測値、そして中国、韓国、日本の寄与を時系列で示します。第6図aの島根県隠岐は、国内の影響が小さな西日本の遠隔域を代表していると考えられる地点です。期間中は環境基準値の60 ppbv を超過し、特に8日夜間から9日朝にかけては120 ppbv 近くまで濃度が上昇しました。このピークに対しては中国が30~40 ppbv 程度寄与しており、韓国の寄与も10~20 ppbv 程度であったことがわかります。一方で、東アジア域の影響を受け、かつ国内の汚染も想定できる福岡です



第5図 2007年5月の高濃度エピソード時における感度レジーム別に評価した前駆体に対するオゾン濃度応答の等値線図。等値線の単位は ppbv。(板橋ほか(2012)の図6を転載)。

が、8日の日中に見られた120 ppbv ほどの高濃度には、国内の寄与は小さく、中国の寄与が40 ppbv 程度と卓越していたことがわかります。日本の寄与は、夕方から夜間にかけて負の値を示しますが、これは第4図に関連して述べたように、夜間にはNO タイトレーションが加速されるためです。福岡では、O<sub>3</sub>濃度は日中120 ppbv 程度まで高くなり、夜間には20 ppbv



第6図 2007年5月の高濃度エピソード時における(a) 島根県隠岐と(b) 福岡のオゾン濃度および中国, 韓国, 日本への寄与の時系列(板橋ほか(2012)の図7をもとに作成)。

程度まで下がっているのですが, もし夜間に国内の前駆体の排出量がないならば,  $O_3$ 濃度は低下しないことが示唆されます。このように, 領域別の感度から寄与を評価することで,  $O_3$ 濃度の変動に対しての知見を拡充することができます。なお, 福岡では, 観測では夜間に20-30 ppbv程度まで濃度が低下するのに対し, モデルでは50 ppbv程度までしか低下していません。 $O_3$ の乾性沈着速度の不確実性もありますがNOタイトレーションによる $O_3$ 消失過程の不足といった可能性も示唆されます。このようにモデルの精緻化に資する知見も得られます。

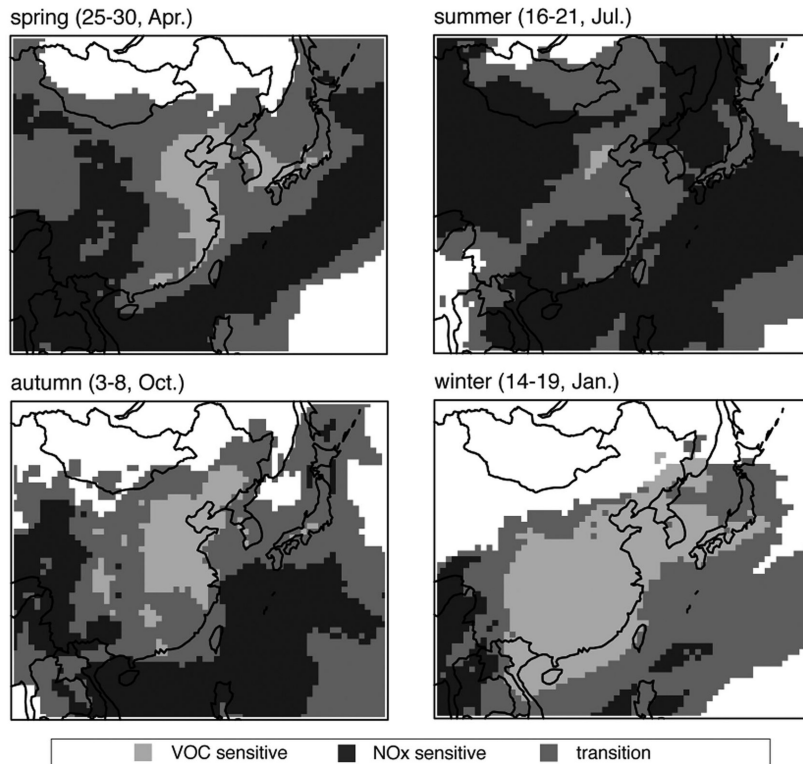
高くなった1週間を対象として, それぞれの季節で感度レジームを解析した結果を示します。まず, 春季から見てみると, 東アジア域では排出量の大きな中国中央東部, 韓国, そして日本にかけてVOC sensitiveレジームであることがあり, 大陸からの $O_3$ 高濃度域の張り出しに沿ってNOx sensitiveレジームであることがわかります。季節平均すればこのような様子ですが, 1時間毎に見てみると, 第4図に示したように春季の移動性高気圧に伴ってNOx sensitiveレジームが風下に広がるような様子となっていました。このような傾向は, 秋季にも同様に見られました。レジームが

## 5. 季節変動の解析

$O_3$ 濃度が最も高濃度となる春季の事例を取り上げてHDDM感度解析法による研究成果を解説してきました。最初に第1図で示したように,  $O_3$ 濃度は季節変動をもちます。そこで春季に適用した手法をもとに, 季節変動を解析することに着手しました。国外におけるHDDMを用いた従来の研究は高濃度事例に着目したものであり, 東アジアにおいてこのような視点から研究を進めるのは重要であろうと考えたためです。この成果を, Itahashi *et al.* (2013)をもとに解説をします。

$O_3$ 濃度低減に向けた発生源対策のため, NOxとVOCのどちらに感度があるかという感度レジームの情報は必要不可欠と考えられます。一般的には, 日中や夏季においてはNOx sensitiveレジームに, 朝方や冬季においてはVOC sensitiveレジームに相当することが報告されています。第7図には, 2007年の各季節において $O_3$ 濃度が





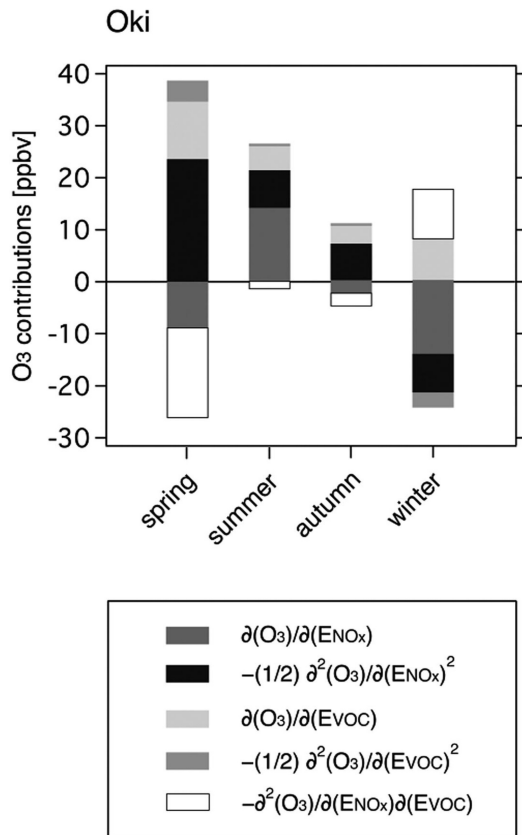
第7図 2007年各季の高濃度事例で平均した感度レジームの空間分布 (Itahashi *et al.* (2013) の Fig. 5をもとに作成).

はっきりと大別されていたのが夏季と冬季でした。まず夏季は、VOC sensitive レジームが中国の北京から上海にかけての一部の領域に限定的で、東アジアの多くの領域で NOx sensitive レジームでした。夏季は光化学反応が盛んになる時期ですが、NOx 排出量の対策は風下域で有効である一方、中国上に見られる高濃度をさらに増大させてしまう可能性が示唆されます。一方で冬季は中国、韓国、日本にわたる全域で VOC sensitive レジームでした。冬季においては光化学反応は盛んでなく O<sub>3</sub>濃度は高くはなりにくいのですが、O<sub>3</sub>濃度の低減に向けては VOC 排出量が削減されるべきで、NOx 排出量対策は冬季の O<sub>3</sub>濃度を増加させることを示唆します。

より詳しい解析として、第6図aに示した島根県隠岐において感度を見てみることにします。第8図には、季節毎に評価した式(12)の各項の大小関係を示します。このことにより、NOx と VOC のどの感度が O<sub>3</sub>生成に影響を与えているかを評価できます。まず、春季と秋季は感度の季節平均は正負の傾向が同様でし

た。すなわち、正の感度としては NOx の 2 次感度が最も寄与しており、これに VOC の一次感度が続きます。第3図dと同様に、VOC の 2 次感度の影響は小さいです。一方では、NOx の一次感度が負の寄与で、NOx と VOC に対する 2 次感度も大きな影響を与えていました。春季と秋季には、非線形性が強く、NOx 排出量の削減が大きくなると効果的であること、また VOC 排出量の削減効果はその割合によらず効果的であることが示唆されます。夏季には、わが国においては NOx sensitive レジームが卓越するため、NOx 排出量削減が効果的であることがわかり、一方で冬季には、VOC sensitive レジーム下で NOx 排出量削減は逆効果

であることがわかります。続いて第9図には、寄与を感度別ではなく、国別で評価した結果を示します。感度の寄与の傾向が類似していた春季と秋季ですが、国別に評価するとその寄与は異なっていることが明らかとなりました。まず春季は、圧倒的に中国の影響が大きい (11.5 ppbv) ことがわかります。一方で秋季には、中国の寄与 (4.6 ppbv) に加えて日本の寄与 (3.1 ppbv) も重要であることがわかりました。夏季については、中国の寄与 (8.4 ppbv) と日本の寄与 (5.1 ppbv) のほか、韓国の寄与 (3.8 ppbv) も大きいことがわかります。以上に示したように、西日本の離島の代表地点としての隠岐においては、国外の影響を強く受けていることが示唆されました。従って、わが国の O<sub>3</sub>濃度低減に向けては、国外の排出量対策も重要な要素となると言えます。ただし、前駆体の NOx と VOC のどちらが削減されるべきか、季節、そして O<sub>3</sub>濃度低減を目指す地点をきちんと考慮した上で決定される必要があります。第8図でも議論した通り、寄与の大きな中国については、わが国にとって

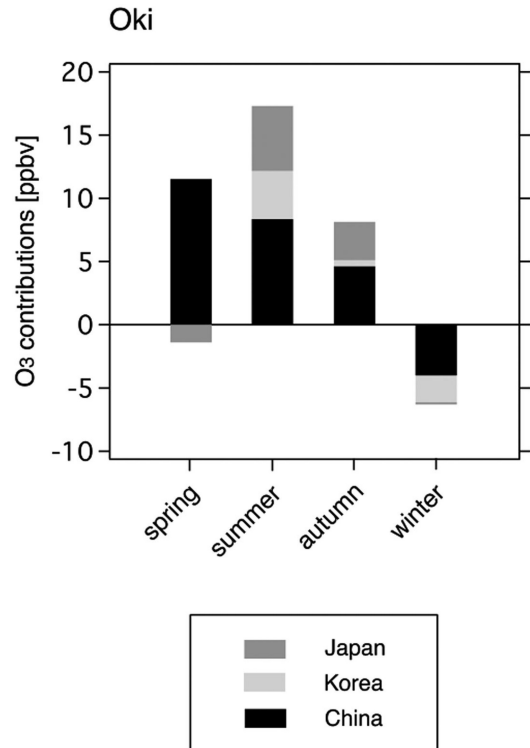


第8図 島根県隠岐で評価した2007年各季の高濃度事例で平均した各感度係数の寄与 (Itahashi *et al.* (2013) の Fig. 7をもとに作成)。

は中国の NOx 排出量が削減されるべきですが、これは中国では逆に O<sub>3</sub>濃度を増大させかねません。春季、夏季、冬季とは対照的に、冬季はいずれの国も負の寄与を示しました。日本の寄与はほぼ見られず、中国の寄与 (-4.0 ppbv) と韓国の寄与 (-2.1 ppbv) が支配的でした。つまり、国外由来の排出量により O<sub>3</sub>が破壊され、濃度が低下していることとなります。O<sub>3</sub>に対する感度の季節変化について、HDDM による解析を通じて以上に示したような様々な点が明らかとなりました。

## 6. まとめと今後の課題

わが国の大気環境基準の達成水準が著しく低い O<sub>3</sub>に対し、HDDM という非線形過程を考慮できるソース・レセプター解析手法によって得られた研究成果についてご紹介させていただきました。Itahashi *et al.*



第9図 島根県隠岐で評価した2007年各季の高濃度事例で平均した中国、韓国、日本の寄与 (Itahashi *et al.* (2013) の Fig. 9をもとに作成)。

(2015) では、第2図に概念図として示した O<sub>3</sub>の非線形の応答について、中国、韓国、日本の排出量を削減したケースを5通りずつ用意し、O<sub>3</sub>の非線形性についてさらに詳しく検証を行いました。このことを通じ、2次感度で記述される非線形性を加味することの重要性が示された一方、排出総量が非常に大きな中国の感度に対しては、2次感度以上の高次感度の情報が必要となりうることも明らかとなりました。今までの研究では、各国レベルの感度を解析することに留まっており、より具体的な排出量削減効果を提言し、O<sub>3</sub>濃度の低減に資するためにも、今後は、例えば自動車や産業、発電所といった発生源種別にも着目する必要性があると感じています。これらの点を勘案しながら、さらに研究を進めていくことを考えています。

## 謝辞

研究者を志してから今日に至るまで本当に多くの方々を支えられてきたことに改めて感謝いたします。

まずは修士・博士後期課程とご指導下さった九州大学応用力学研究所大気環境モデリング研究室 鶴野伊津志主幹教授に心より感謝いたします。やさしく厳しく終始ご指導いただきました。憧れだった先生のもとで研究できて本当に幸いでした。また、同研究室 竹村俊彦准教授（現気候変動科学研究室教授）、先輩・同期・後輩のみなさま、特に原 由香里博士（現同研究室助教）、弓本桂也博士（現気象庁気象研究所主任研究官）には大変お世話になりました。気象学への第一歩を共通講義やゼミを通じて教えて頂いた九州大学理学部地球惑星科学科 宮原三郎名誉教授、伊藤久徳名誉教授、廣岡俊彦教授、中島健介博士、個性豊かな流体圏科学講座の同期にも改めて感謝申し上げます。そして、現職場での研究にお声掛けいただいた電力中央研究所環境科学研究所大気・海洋環境領域 速水 洋上席研究員、領域の先輩方、同期入所のみなさま、沈着量にも私の視野を広げて下さった藤田慎一名誉研究アドバイザーにも感謝申し上げる次第です。

モデル研究は決して一人では成り立ちません。排出量データについては、国立環境研究所 大原利真フェロー、アジア大気汚染センター 黒川純一博士にご助言・ご協力をいただきました。モデル検証のための観測データについては、国立環境研究所 杉本伸夫フェロー、清水 厚主任研究員、名古屋大学 長田和雄准教授、千葉大学 入江仁士准教授、NASA Zhaoyan Liu 博士のご協力をはじめ、モニタリングネットワークの関係者のみなさま、地方環境研究所の多くの方々のご尽力であることに深く感謝いたします。大韓民国 Ajou University Soontae Kim 教授には HDDM 感度解析法の確立にあたってご協力いただき、また、中国科学院大気物理研究所 Zifa Wang 教授には中国の大気汚染の現況等、様々なことを教えていただきました。そして、研究者としての実生活を支えてくれる妻と子供たち、両親と義両親にもこの場をお借りして感謝したいと思います。

末筆ではありますが、浅学非才の身でありますゆえ、ご指導、ご鞭撻を賜りますよう、何卒よろしくお願ひ申し上げます。少しでも東アジア域の大気環境問題に貢献できるように絶えず精進してまいりたいと思います。

#### 参 考 文 献

Akimoto, H., 2003: Global air quality and pollution. *Science*, 302, 1716-1719.

秋元 肇, 河村公隆, 中澤高晴, 鷲田伸明, 2002: 対流圏大気の化学と地球環境. 学会出版センター, 223pp.

秋元 肇, 伊豆田 猛, 植田洋匡, 内山巖雄, 大原利真, 河野吉久, 小林和彦, 若松伸司, 2005: 増えつづける対流圏オゾンの脅威. 酸性雨研究センター, 30pp.

Dunker, A. M., 1984: The decoupled direct method for calculating sensitivity coefficients in chemical kinetics. *J. Chem. Phys.*, 81, 2385-2393.

Hakami, A., M. T. Odman and A. G. Russell, 2003: High-order, direct sensitivity analysis of multidimensional air quality models. *Environ. Sci. Technol.*, 37, 2442-2452.

板橋秀一, 鶴野伊津志, S. Kim, 2012: 感度解析手法 HDDM の東アジアスケールのソース・レセプター解析への応用. *大気環境学会誌*, 47, 205-216.

Itahashi, S., I. Uno and S. Kim, 2012: Source contributions of sulfate aerosol over East Asia estimated by CMAQ-DDM. *Environ. Sci. Technol.*, 46, 6733-6741.

Itahashi, S., I. Uno and S. Kim, 2013: Seasonal source contributions of tropospheric ozone over East Asia based on CMAQ-HDDM. *Atmos. Environ.*, 70, 204-217.

Itahashi, S., H. Hayami and I. Uno, 2015: Comprehensive study of emission source contributions for tropospheric ozone formation over East Asia. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 331-358.

Jin, L., S. Tonse, D. S. Cohan, X. Mao, R. A. Harley and N. J. Brown, 2008: Sensitivity analysis of ozone formation and transport for a central California air pollution episode. *Environ. Sci. Technol.*, 42, 3683-3689.

環境省, 2015: 平成25年度大気汚染状況. [http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo\\_h25/index.html](http://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h25/index.html) (2016.1.11 閲覧).

Kurokawa, J., T. Ohara, T. Morikawa, S. Hanayama, G. Janssens-Maenhout, T. Fukui, K. Kawashima and H. Akimoto, 2013: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11019-11058.

大原利真, 2009: 越境大気汚染の日本への影響—光化学オキシダント増加の謎—. *環境儀* No. 33, 国立環境研究所, 16pp.

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.

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.

---

Toward the Advancement of Source-receptor Analysis  
to Elucidate the Air Quality Variation over East Asia

Syuichi ITAHASHI\*

\* *Atmospheric and Marine Environment Sector, Environmental Science Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI), 1646 Abiko, Abiko, Chiba, 270-1194, Japan.*

(Received 1 March 2016; Accepted 18 April 2016)

---