

# 大気化学モデリングの研究と排出インベントリの研究と

黒川純一

一般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター

## 【はじめに】

この度は、平成 25 年度大気環境学会進歩賞を賜りまして、誠にありがとうございます。私は、大学院修士課程を修了後、富士通エフ・アイ・ピー株式会社（以下 FIP）に入社し、8 年半勤めた後、学位を持たないまま会社を飛び出して、国立環境研究所（以下 NIES）の契約職員となりました。そして、NIES 在籍中にそれまでの仕事の成果をまとめて何とか学位を取得し、現職（以下 ACAP）に至っています。やや異色な経歴を経てきた事もあり、研究対象とその変遷はやや変わっているかもしれません。研究活動のスタートは全球対流圏光化学モデリングでしたが、その後、モデル研究と排出インベントリの開発・改良の研究を同時進行で実施してきました。ここでは、これまでの主要な研究成果について、概要を紹介させていただきます。

## 【全球対流圏光化学輸送モデルの開発】

大学院修士課程では、秋元肇先生のご指導のもと、大気大循環モデル（CCSR/NIES AGCM）にオゾンを中心とする対流圏光化学過程を組み込んだモデルを開発し、対流圏オゾン濃度の全球的な分布の数値計算を行いました。全くのゼロからのスタートだった事もあり、悪戦苦闘の連続で、修士論文の提出もギリギリでしたが、地表付近オゾン濃度分布の概ねの特徴を再現する所までこぎつけました。この仕事は、現名古屋大学須藤健悟准教授により開発された CHASER<sup>1)</sup>のいわば立ち上げにあたり、日本で初めて本格的な全球対流圏光化学モデルに取り組んだ研究と位置付けられています。

## 【成層圏化学輸送モデル・化学気候モデルに関する研究】

FIP 在籍時に、秋吉英治先生、中根英昭先生のご指導のもと、成層圏光化学モデルの改良に関する研究に従事しました。当時、CCSR/NIES 成層圏ナッジング化学輸送モデル及び化学気候モデルでは、平行平板大気を想定して光解離定数計算を行っていました。しかし、極域中層大気における極夜明けオゾン破壊反応は、太陽天頂角が 90 度よりも大きな段階から開始されるため、オゾンホールにおける光化学過程を精度良く考察するためには、大気球面形状の効果を考慮する事が必要となります。そこで、大気の球面形状を考慮した光解離定数計算スキームを開発し、CCSR/NIES 成層圏ナッジング化学輸送モデル及び化学気候モデルに導入しました。また、開発されたモデルを用い、大気球面形状の考慮が南極オゾンホールに与える影響の化学-放射-力学相互作用について考察しました。その結果、オゾン破壊時期では光化学過程が、オゾン回復時期では放射-力学過程が南極オゾンホール時系列変動に対して支配的となっている事が解明されました<sup>2)</sup>。

## 【アジア域の広域越境大気汚染に関する領域化学輸送モデルを用いた研究】

対流圏大気微量物質の経年変動・年々変動や、アジア大陸から日本への越境輸送の実態と構造を解明するためには、アジア域を対象とした領域化学輸送モデルが必要となります。FIP 在籍時は、領域気象モデル RAMS と領域化学輸送モデル CMAQ を基にしたシミュレーションシステムを開発を行いました。この時のノウハウは、NIES が中心となって開発した、大気汚染予測システム VENUS<sup>3)</sup>にも生かされています。NIES 在籍時は、このシステムを用いて現象解析の研究を行いました。以下、主要な二つの研究について紹介させていただきます。

2007 年 5 月 8-9 日にかけ、北日本を除く日本全域で発生した高濃度オゾン汚染について、モデルによる解析を行いました。その結果、5 月 8 日の九州、中国地方日本海側の高濃度オゾン領域には、中国内陸部から北東部海上で発生した高濃度オゾンを含む気塊が流れ込んでいる様子が見られ、中国を起源とするオゾンが、最大で約 40% 寄与している事が示されました<sup>4)</sup>。このイベントは当時報道でも大きく取り上げられ、社会問題になりました。特に、日本の大気汚染に対する中国からの寄与について関心が高まっていましたが、ここで示した 40% という数値はあくまでこのエピソードに対する推測値であり、中国からの寄与は、その時々々の気象場（特に風向風速）、日本国内の大気汚染状況などに大きく依存します。また、数値そのものにも、モデルや境界条件、寄与率の計算手法などによる不確実性が存在します。しかし、この辺りの情報はうまく伝えられておらず、インパクトのある数値が一人歩きする危険性を感じていた記憶があります。研究結果を社会に向けて発信する事の重要性と、同時に情報を正確に伝える難しさを考えさせられた事例でもありました。

越境大気汚染に関連する研究として、1981-2005 年における日本の春季オゾン濃度の年々変動に、気象場の

変動が与える影響について、モデルを用いて解析しました。その結果、日本の春季オゾン濃度は、平年に比べて西風が強く、アジア大陸上の高濃度オゾンを含んだ気塊が日本に輸送されやすい年に高くなり、逆に、西風が弱く、太平洋上の低濃度オゾンを含んだ気塊が南から輸送されやすい年に低くなる傾向がある事がわかり、それが日本の東側海上の地表面気圧アノマリ（平均からの偏差）と相関している事が示されました。また、日本の春季オゾン高濃度アノマリとラニーニャ、低濃度アノマリとエルニーニョの間に関係が見られ、エルニーニョ・南方振動によって引き起こされる気象場の変動は、日本の春季オゾン濃度の年々変動の要因の一つである事が示唆されました<sup>5)</sup>。

#### 【アジア域排出インベントリ REAS の開発】

大気化学モデルを用いて大気微量物質の濃度・組成・分布の変動などを解析するためには、高精度・高分解能の排出インベントリが不可欠です。特に、近年経済成長が著しく、大気質が悪化しているアジア域では、極めて重要な課題となっています。その目的のため、アジア域の排出インベントリを開発するプロジェクトが当時の地球フロンティア研究システム（現在の海洋研究開発機構）で発足され、その後、総合地球環境学研究所、国立環境研究所と共同で進められてきました。ここで開発されたアジア域排出インベントリ REAS (Regional Emission inventory in ASia) 1.1<sup>6)</sup>は、世界的に広く認知されており、数多くの研究論文で引用されています。私は、このプロジェクトに立ち上げから参加し、以降現在に至るまで、主要な人為発生源である燃料燃焼プロセスや産業プロセスなどを起源とする排出量の推計を、FIP, NIES, ACAP で一貫して担当してきました。現在、REAS は version 2 のフェーズに進んでおり、最近その成果を国際学術誌に投稿すると同時に、REAS 2.1 としてデータの公開を行いました<sup>7)</sup>。近年、アジアの排出インベントリ研究は活発化してきています。今後は、国内外の研究者と連携を取りながら、データ精度の向上に努めていきたいと考えています。また、どれだけ研究が進んでも、「年次更新」という課題が解消される事はありません。いかにしてデータを継続して開発・提供する体制を作れるか、これも大きな課題と考えています。

#### 【中国の NO<sub>x</sub> 排出量の逆推計に関する研究】

ボトムアップ・アプローチによる排出インベントリでは、統計データやパラメータに基づく不確実性が不可避であり、また、統計データは一般に公開が数年遅れるという問題も存在しています。そこで、これらによる問題を回避するアプローチとして、4次元変分法と衛星観測データによるデータ同化を利用した NO<sub>x</sub> 排出量逆推計モデルを開発しました。このモデルと GOME NO<sub>2</sub> カラム濃度衛星観測データを用い、1996, 1999, 2002 年 7 月の中国東部における NO<sub>x</sub> 排出量の逆推計を行った結果、1996 年から 2002 年にかけての排出量増加率は、逆推計前から逆推計後で大幅に増加する事が示され、REAS 1.1 における中国 NO<sub>x</sub> 排出量は、1996 年から 2002 年にかけての増加率を過小評価している可能性が示されました。排出量逆推計モデルの結果を REAS の精度向上に反映させる研究についても、今後継続して取り組んでいく予定です。

#### 【おわりに】

ここで紹介させて頂きましたのは、多くの方々と共同で進めてきた研究の成果です。これ以外の研究活動においても、私は様々な方々に支えられてきました。特に、学生時代からの恩師である秋元肇先生、REAS 立ち上げからご指導頂いている大原利眞先生、学位の指導教官となって頂いた鶴野伊津志先生に心より感謝を申し上げます。お世話になった方々お一人おひとりのお名前を挙げる事が叶いません事をご容赦下さい。また、優秀な諸先輩・同僚にも恵まれ、刺激を受けてきました。正直な所、自分の実力との落差に凹む事もしばしばでしたが、本賞を励みに精進して参ります。今後ともご指導の程どうぞよろしくお願い致します。

#### 【参考文献】

- 1) Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto (2002), *J. Geophys. Res.*, **107**, 4339, 10.1029/2001JD001113.
- 2) Kurokawa, J., H. Akiyoshi, T. Nagashima, H. Masunaga, T. Nakajima, M. Takahashi, and H. Nakane (2005), *J. Geophys. Res.*, **110**, D21305, 10.1029/2005JD005798.
- 3) 菅田誠治, 大原利眞, 黒川純一, 早崎将光 (2011), *大気環境学会誌*, **46**, 49-59.
- 4) 黒川純一, 大原利眞, 早崎将光, 鶴野伊津志 (2008), *大気環境学会誌*, **43**, 209-224.
- 5) Kurokawa, J., T. Ohara, I. Uno, M. Hayasaki, and H. Tanimoto (2009), *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 6287-6304.
- 6) Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, and T. Hayasaka (2007), *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4419-4444.
- 7) Kurokawa, J., T. Ohara, T. Morikawa, S. Hanayama, G. Janssens-Maenhout, T. Fukui, K. Kawashima, and H. Akimoto (2013), *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **13**, 10049-10123.
- 8) Kurokawa, J., K. Yumimoto, I. Uno, and T. Ohara (2009), *Atmos. Environ.*, **43**, 1878-1887.