

40. エアロゾル全球化学輸送モデル (AGCTM) の開発と応用

Development of Aerosol Global scale Chemical Transport Model (AGCTM) and its application

北田敏廣**、我谷 薫*、倉田学児*、白川 夢*、鈴木正沖*、山本浩平**

T. KITADA, K. WAGATANI, G. KURATA, Y. SHIRAKAWA, M. SUZUKI, K. YAMAMOTO

ABSTRACT: A global scale chemical transport model for gaseous and aerosol species (AGCTM) has been developed to study possible effects of changes in human and natural emission activities on atmospheric environment and the Earth's environment. The AGCTM simulation as well as Lagrange particle simulation was performed for about 40 days from Feb. 21 to March 31, 2001 during TRACE-P field campaign. In the Lagrange particle simulation, emission areas for yellow sand and anthropogenic pollutant in China, Korea, Taiwan, and Japan were identified, and movements of the hypothetical non-buoyant particles released from the areas were kept tracked for one week. A technique to label particles with different colors for those released on different days allowed us to estimate spatial distribution of aged air-mass. In the AGCTM simulation, calculated results were compared with TRACE-P airborne observation, TOMS Aerosol Index, and surface observation in China.

KEYWORDS: chemical transport model, global scale, aerosol, Asian atmospheric environment

1. はじめに

2001年2-4月にかけておこなわれたTRACE-P観測の期間に合わせて全球の化学輸送計算と仮想的な粒子群の輸送計算を行った。粒子群の計算は、黄砂粒子の排出源、中国沿岸部の排出源を想定して、広がりを持ったこれらの排出地帯通過の気塊が流れ場のシアーよりどのように変形されるかを1週間にわたりトレースすることを目的とした。化学輸送計算では、上海、北京での1ヶ月間(3月1-31日)の地上観測(SO₂, NO_x, TSP)およびTRACE-P航空機観測の結果と比較した。

2. 全球化学輸送計算および仮想粒子群の輸送計算

2.1 全球化学輸送計算

全球輸送計算は、2001年2月20日00Z—3月31日10Zまで行った。流れ場はECMWFの2.5°×2.5°、鉛直23層(上端10hPa)である。輸送化学種は30、化学反応、移流拡散、乾性・湿性沈着等を含む(Kitada and Nishizawa, 1998¹⁾; Kitada et al., 2001²⁾; Kitada et al., 2003³⁾)。タイムステップは輸送30分、化学反応12秒である。排出源の1例をFig.1に示す。

土壤粒子の排出推定は、粒子を粒径別に4クラス(0.2-2.0, 2.0-3.6, 3.6-6.0, 6.0-12.0 μm)に分けて行った。排出モデルは、土地被覆(砂漠、草地等の地表分類; Fig.2参照)とそれに関連するパラメーター(粗度長、

* 豊橋技術科学大学エコロジー工学系 Department of Ecological Engineering, Toyohashi University of Technology, Tempaku-cho, Toyohashi, Japan 441-8580.

** 京都大学大学院エネルギー科学研究所 Department of Socio-Environmental Energy Science, Graduate School of Energy Science, Kyoto University, Gokanosho, Uji, Japan 611-0011.

土壤水分等) および風速により与える Gillette and Passi (1988)⁴⁾のものを用いた。

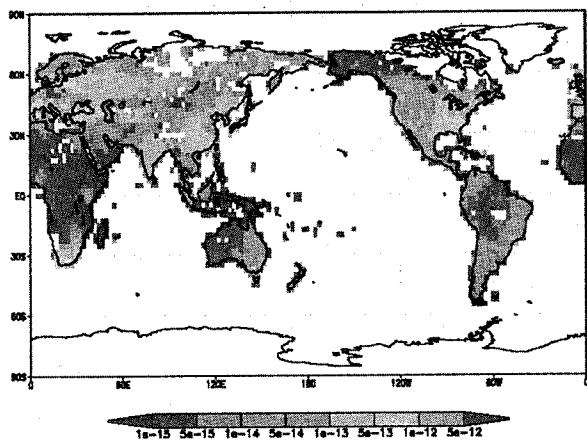


Fig. 1 BC by fossil fuel combustion (kmol/m²/s).

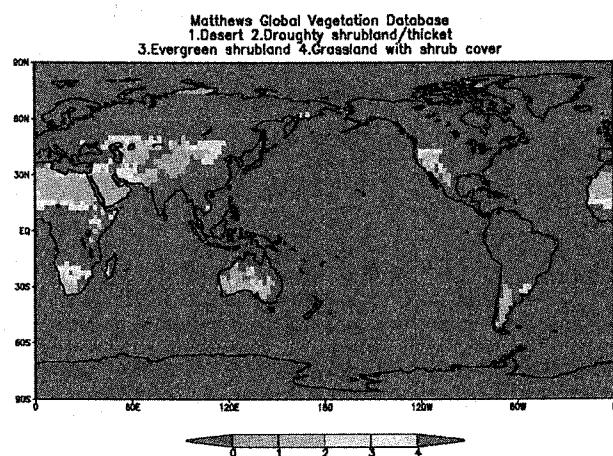


Fig. 2. 土壤粒子の巻き上げ発生に関連する土地被覆分類(マシューズの土地被覆データによる)。

2. 2 仮想粒子シミュレーション

流れと物質輸送の関係をよりクリヤーに見るために、Kitada and Tanaka (1992)⁵⁾ のモデルを用いて粒子群のラグランジエ型シミュレーションを合わせて行った。数値誤差が物質収支に影響しないのが特徴である。

粒子群のシミュレーションは、3月 18 日 00Z—3月 22 日 00Zまで、中国沿岸部の人為排出地帯(Fig. 3a)と内陸の土壤粒子排出地帯(Fig. 3b)を想定して2時間おきに粒子を放出し、3月 26 日 00Zまで8日間にわたって全粒子の位置座標を記録することによって行った。粒子のシンボルによって放出日を区別している (○—3月 18 日、△—3月 19 日、□—3月 20 日、+—3月 21 日)。

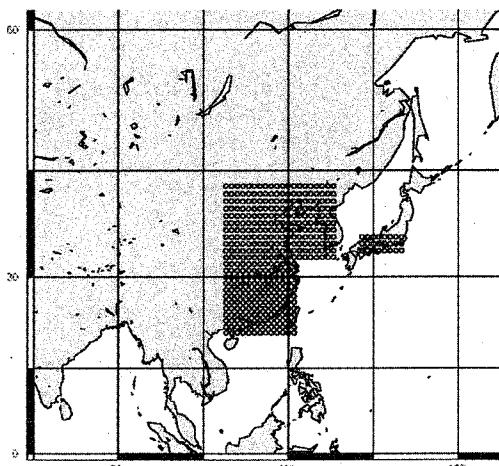


Fig. 3a 人為排出地帯

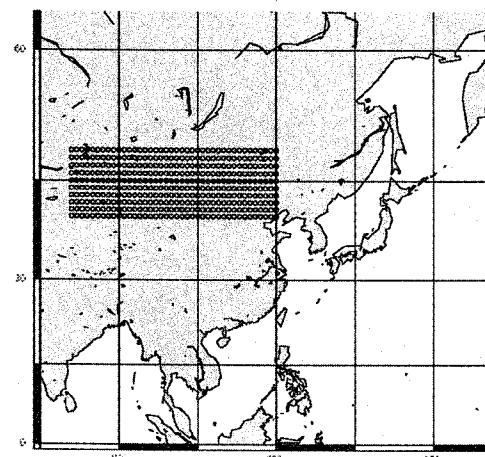


Fig. 3b 黄砂排出地帯

2. 2 2001年3月の東アジアの大気環境

中国域で、2001年3月に2度の高濃度エピソードのあったことが知られている。3月 1-8 日と同 20-22 日を中心とする数日である。Fig.4 は同期間の北京などの中国北部・東北部都市(上段)と上海などの東部都市(下段)の汚染物質濃度の変化であるが、この状況を明確に示す。ただし、3月 20-22 日を中心とした両地域の高濃度は、後の粒子群のシミュレーションからもわかるようにその理由が異なる。

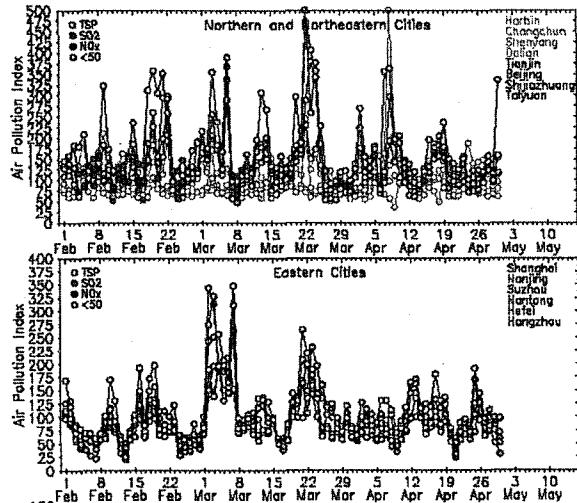
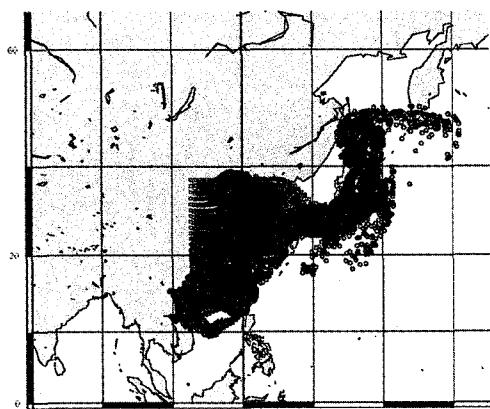


Fig. 4 北京等中国北部・東北部都市（上段）、上海等東部都市（下段）の 2001 年 2 月—5 月大気汚染濃度変化
(Zhongguo Huanbaoju Wang, 2001- TRACE-P web site)

3. 粒子群のシミュレーションから見た 3 月 20 日前後の高濃度因

上海付近では 18-21 日まで連続して気圧傾度が小さく（南に高、北に低気圧）、Fig. 5 に示されているように、三日分の人為汚染物質の滞留により高濃度が形成された。一方、すでに多くの報告があるように、北京等の北部の諸都市では、北方に中心を持つ強い低気圧に伴う強風から 20 日に発生した土壤粒子の巻上げが主因となり高濃度となった(Fig. 6)。



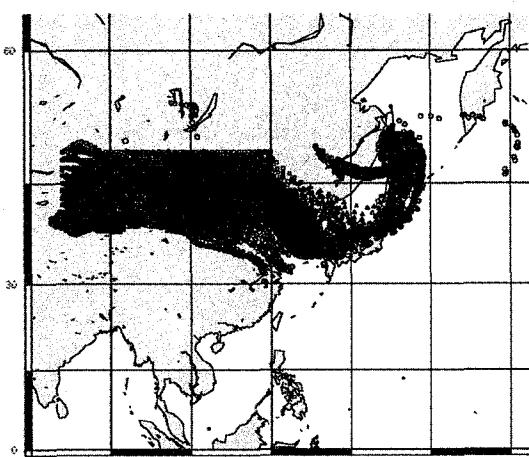
(a) 水平面



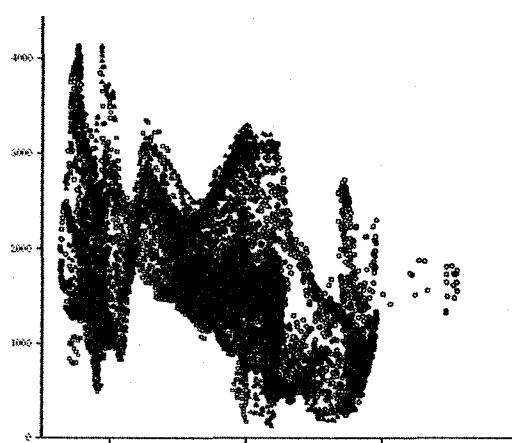
(b) 東西方向鉛直面

Fig. 5. 2001 年 3 月 21 日 00Z の人為排出汚染物質想定の粒子分布(○: 3 月 18 日放出、△: 19 日、□: 20 日)。

(a) 水平面投影図、(b) 東西方向鉛直面投影図。

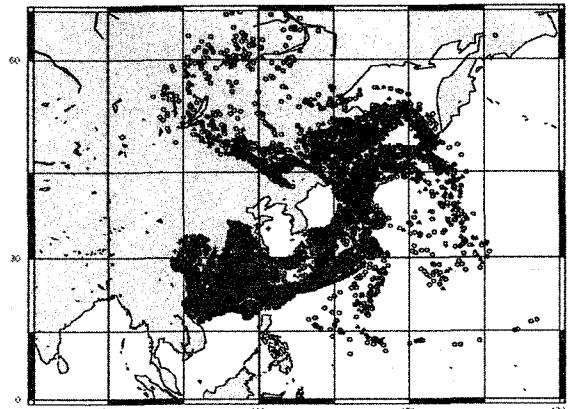


(a) 水平面

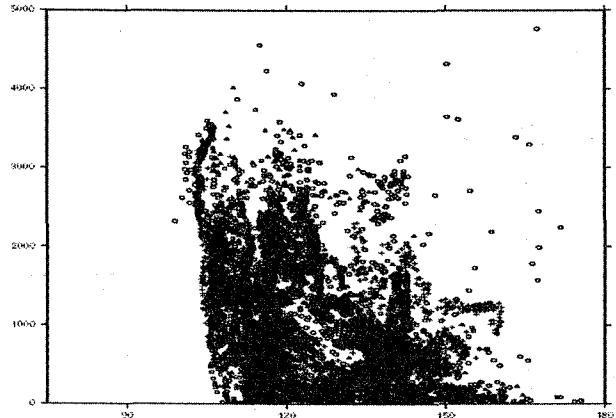


(b) 東西方向鉛直面

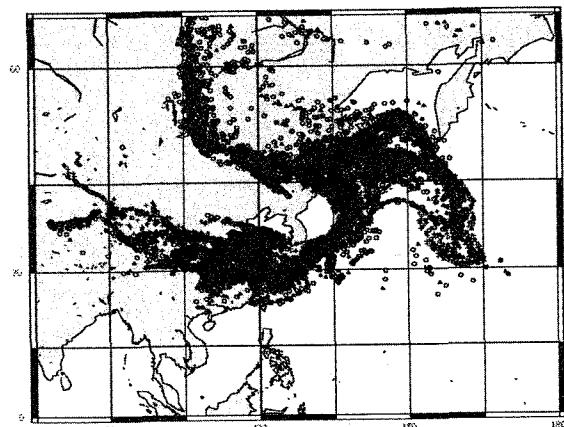
Fig. 6. 2001 年 3 月 21 日 00Z の土壤起源粒子分布 (○: 3 月 18 日放出、△: 19 日、□: 20 日)。(a) 水平面投影図、(b) 東西方向鉛直面。



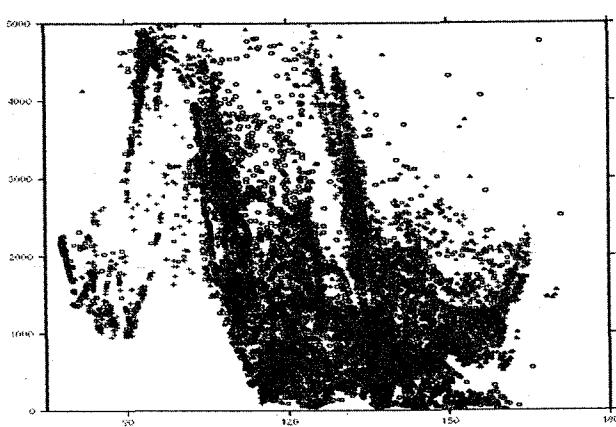
(a)-1 人為汚染物質想定粒子：水平面。



(a)-2 人為汚染物質想定粒子：東西鉛直面。



(b)-1 土壤想定粒子分布：水平面。



(b)-2 土壤想定粒子分布：鉛直面。

Fig. 7. 3月26日00Z : (a) 人為排出想定粒子、(b)土壤想定粒子。○: 18日、△: 19日、□: 20日、+: 21日に放出。

Fig. 7 は3月18-21日の4日間に放出された物質の26日における分布を表す。沈着、沈降等の除去過程を想定しなければ、排出地域からあまり離れない地域内上空での1週間程度の滞留を示唆する。

例えば、台湾から香港、広州、海南島にかけて、上海から香港に到る地域で5-6日前に排出された人為起源汚染質が26日の時点でも滞留していることが、Fig. 7(a)に示されている（緑および黒の粒子群）。土壤粒子も同様の傾向を示すが（Fig. 7(b)）、ほぼ30Nの線に沿って東西に広がりそれより南には広がらないように見える。

4. 全球化学計算・粒子群計算と地上観測、TRACE-P、TOMSデータとの比較及び考察

4. 1 中国における地上データとの比較

観測と計算の比較には、TRACE-Pの観測期間に該当するバイオマス燃焼に伴う排出がまだ含まれていないこと等による制約がある。Fig. 8 にSO₂について上海での1か月分の観測と計算の比較を、Fig. 9 に上海および北京での観測 TSP と計算 SPM の比較をそれぞれ示す。

SO₂について（Fig. 8）、全球計算として定性的には観測の傾向によく追随していると考えられるが、濃度レベルが低い。大きな格子長（現状では、2.5x2.5 度）による、解像度の低さが、（特に）排出源の近傍での濃度の再現に影響していると考える。また、排出源情報の検討も必要と考えている。湿性沈着の有無は随所で濃度レベルに影響を与えており、Fig. 8 に見られる SO₂ 濃度への影響は比較的少ない。

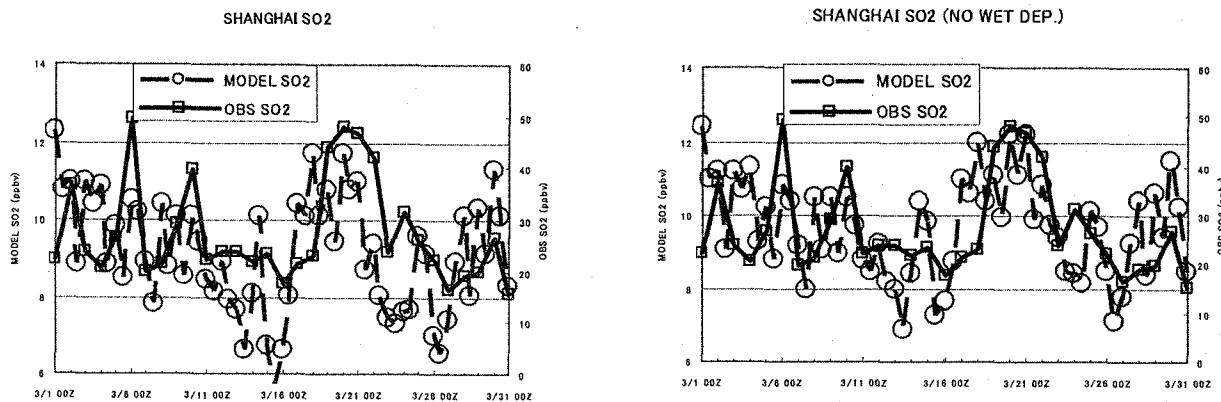
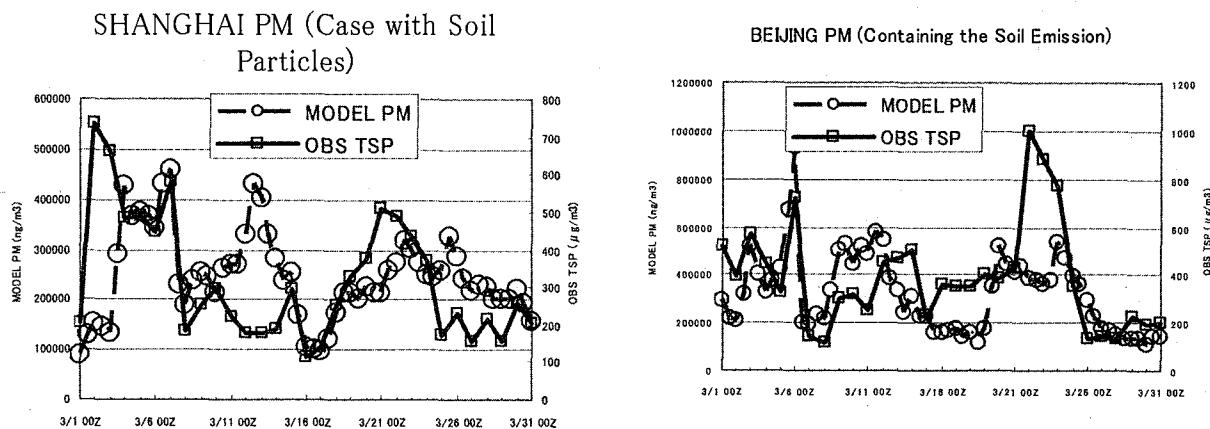
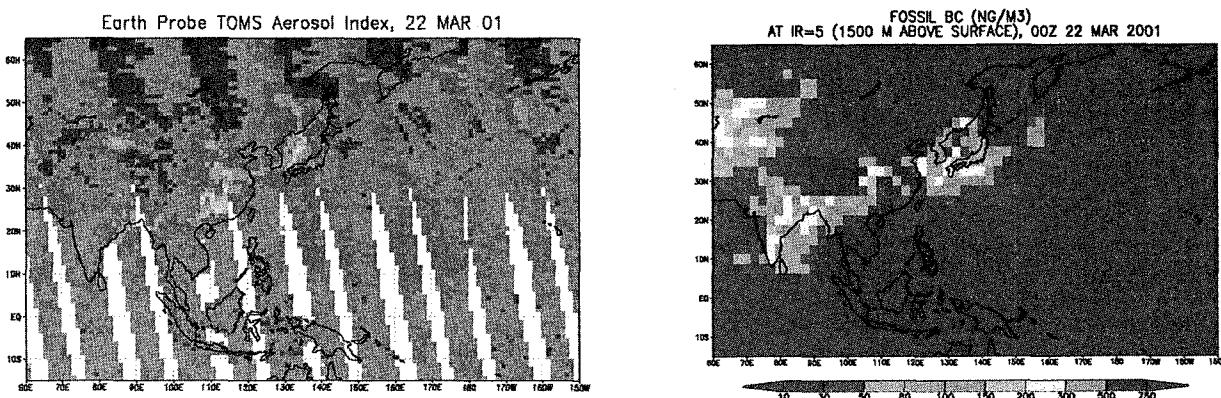


Fig. 8. 上海の SO₂ 比較：観測 (□)、計算 (◇)。ノーマルケース (左)、湿性沈着なし (右)。2001 年 3 月 1 日—3 月 31 日。



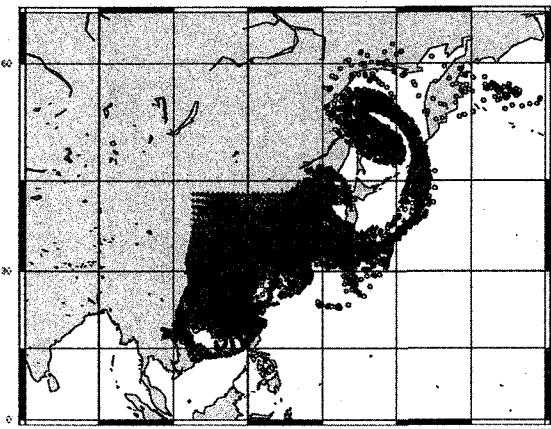
(a) (b)
Fig. 9. (a) 上海および (b) 北京における 2001 年 3 月の粒子状物質濃度の比較。ただし、観測 (□) : TSP ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、計算 (◇) : SPM (ng/m^3)—シミュレーションより得られる粒径 $12 \mu\text{m}$ 以下のすべての粒子状物質を含む。



(a) TOMS Aerosol Index.. (b)
Fig. 10. 2001 年 3 月 22 日の (a) TOMS Aerosol Index および (b) 高度 1500 m での化石燃料燃焼起源のブラックカーボン濃度 (計算値)。

Fig. 9 のエアロゾル粒子の場合、観測は TSP 濃度を、計算は SPM (粒径 $12 \mu\text{m}$ 以下の粒子) 濃度を表す。Fig.9(a)上海で観測と計算土壤粒子を含めることにより計算濃度レベルは、かなり観測値に近づいている。内訳では、黄砂のイベント時には土壤成分が全体の 8-9 割を占める。計算値と観測値に乖離があるのは、3 月 2, 3 日、11-14 日、20-22 日であるが、計算結果の検討より、2-3 日が土壤粒子の過小評価、同じく 11-14 日が過大評価、20-22 日は人為起源粒子の過小評価と考えている。

また、センシティビティ研究を通じて湿性沈着の適正な評価がなおかつ必要であると考えている。



(a) 人為起源：水平面。



(b) 人為起源：東西方向鉛直面。

Fig. 11. 2001 年 3 月 22 日 00Z の人為起源粒子の分布 (18 日○、19 日△、20 日□、21 日+粒子を放出)。

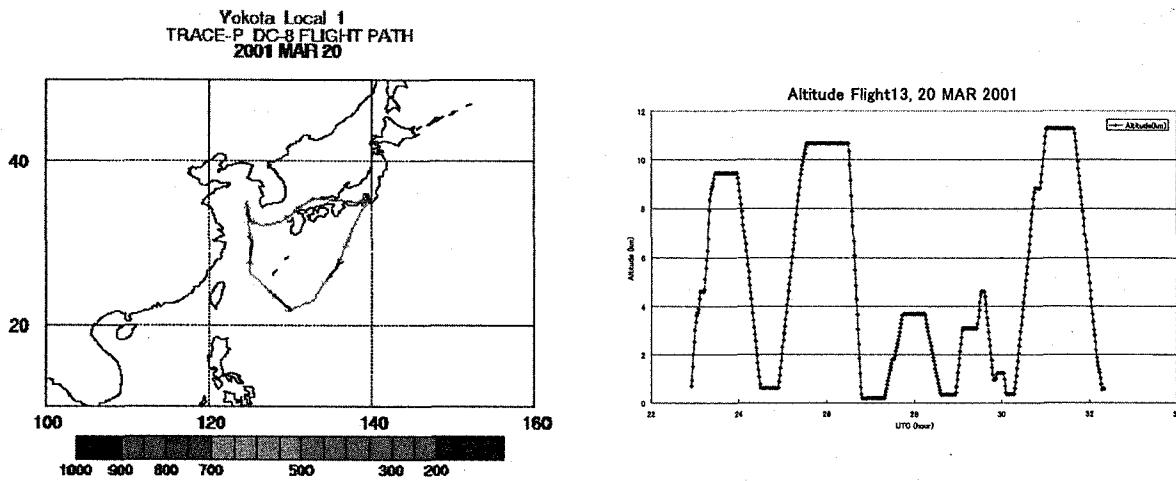
4. 2 TOMS のエアロゾル・インデックスと BC 濃度分布の比較

Fig. 10 に (a) TOMS の aerosol index と (b) 全球モデルシュミュレーションにより得られた化石燃料起源のブラックカーボン(BC)のアジア分布を示す。TOMS による分布は上海と中国南部さらに日本海上に大きな値を示すスポットがある。TOMS の aerosol index の正值は放射吸収性のエアロゾル量の指標であるから、これを化石燃料起源の BC (Fig. 10(b)) と比較した。Fig. 10(b) の高度 1500m での化石燃料起源のブラックカーボン分布は、定性的には TOMS の特徴をはずしていないと考えるが、中国南部のスポットは弱い。一つの原因是 Fig. 10(b) が鉛直カラム内の積算量ではないことによると考える。実際、Fig. 11 (3 月 22 日 00Z) は、日本海および中国南部の正值スポットに該当する位置 (Fig. 10(a) 参照) に、高度 2-3 km にわたって分布する粒子群を示しており (Fig. 11(b))、地表付近だけでなく上空にも粒子が蓄積しエアロゾルのカラム量が他の場所に比べて増していることを示している。Fig. 11(a), (b) より、日本海上の汚染物質は上層に 19-20 日排出の物質、下層に 21 日排出の物質があり、概して “aged air-mass” を中心とするのに対して、中国南部のそれは 21 日排出の汚染物質を中心とする “fresh pollutant” と言える。いずれにしても fire spot の情報により状況に応じたバイオマス燃焼の排出も含める必要がある。

4. 3 TRACE-P 航空機観測データとの比較

TRACE-P の観測期間中に DC-8 : 17 (FL4-FL20) フライト、P3-B : 21 フライトが行われている。日本の横田をベースにしたフライトのうち、3 月 20 日に DC8 によって行われた観測 (Fig. 12(a), (b) 参照) について今回の計算結果と比較した。

Fig. 12 に (a) 3 月 20 日 FL13 のコース (色によってフライト高度の概略を気圧で表示)、(b) フライト高度の変化を示す。Fig. 12(a) はインターネットのサイトから得たものである。3 月 20 日は、北緯 47 度、東経 135 度付近に中心を持つ強い低気圧によって日本海北部から北海道にかけて西風ないし南西風が吹き、日本の太平洋岸も晴天ながら、その影響を受けていた。一方、フライトコースの大部分、すなわち太平洋からコースの南端および東シナ海 (Fig. 13(a)) にかけては気圧傾度が緩やかで弱風であった。



(a) フライトコース

(b) フライト高度の時間履歴

Fig. 12. 2001年3月20日に行われたDC8による観測(FL13)のコース。(a)コース、(b)高度。

Fig.13は、このような気象状況の下での観測と計算の比較を示す。(a) O₃、(d) HNO₃とガス成分であり、(b) BC、(c) SO₄は粒子状成分の濃度である。

O₃に関して観測と計算の一一致は良好である。UTC31時の高オゾン濃度は、日本列島の日本海沿岸上空11kmの飛行時であり成層圏オゾンを示すものである。一方、26時でも同程度の高度を飛行している(Fig. 12b)が、オゾン濃度は25ppb程度と低い。同時刻にDC8は南緯22度の低緯度にあり、対流活動の活発な南方の対流圏上部の空気を代表するものと考えられる。O₃には成層圏にも重要なソースがあるが、BC, SO₄, HNO₃は地表面にソースを持つ。これらの化学種に対する適合も定性的にはかなり良好である。いずれも高濃度を示しているのはUTC29-30時であり、この時点でDC8は中国と朝鮮半島に囲まれた黄海上の低高度にある。位相は、ほぼ合っているものの、BCについてはかなり過小評価、SO₄についても若干の過小評価(Fig.13(b),(c))となっている。(SO₄については観測が ppbv、計算が $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 単位であることに注意。) 2-3ヶ月に合わせたBCの適切な排出源強度分布の設定も検討課題である。HNO₃については、計算結果が良く観測に追随している。

5. おわりに

2001年3月のTRACE-P期間を対象に開発中のエアロゾル全球輸送/反応/沈着モデルのパフォーマンスを検討した。定性的には、満足できる結果が得られた。排出源の精度、モデルの解像度の向上が必要である。

参考文献

- 1) Kitada, T., and Nishizawa, M.: Modeling study of the long range transport of acidic pollutants over East Asia and the west Pacific Ocean: Sensitivity of acid deposition to scavenging model parameters and emission source distribution. *J. Global Environment Engineering*, 4, 1-29 (1998).
- 2) Kitada, T., Nishizawa, M., Kurata, G., and Kondo, Y.: Numerical simulation of the transport of biomass burning emissions in Southeast Asia -September and October, 1994. *J. Global Environment Engineering*, 7, 79-99 (2001).
- 3) Kitada, T., Kurata, G., and Yamamoto, K. (2003). Development of AGCTM (Aerosol Global scale Chemical Transport Model): Emissions of carbonaceous aerosol and soil dust. *Proceedings of the 5-th Seminar of JSPS-MOE Core University Program on Urban Environment*, 73-80, Shanghai, China, Oct.30-31.
- 4) Gillete, D., and Passi, R.: Modeling dust emission caused by wind erosion. *J. Geophys. Res.*, 93, 14233-14242 (1988)
- 5) Kitada, T., and Tanaka, K. (1992) Simulated semi-global scale transport of SO₂ and SO₄²⁻ from East Asia to the

northern Pacific ocean in spring season: the role of low and high pressure systems. In Air Pollution Modeling and Its Application IX, Han van Dop & G. Kallos (eds.), Plenum, 445-454.

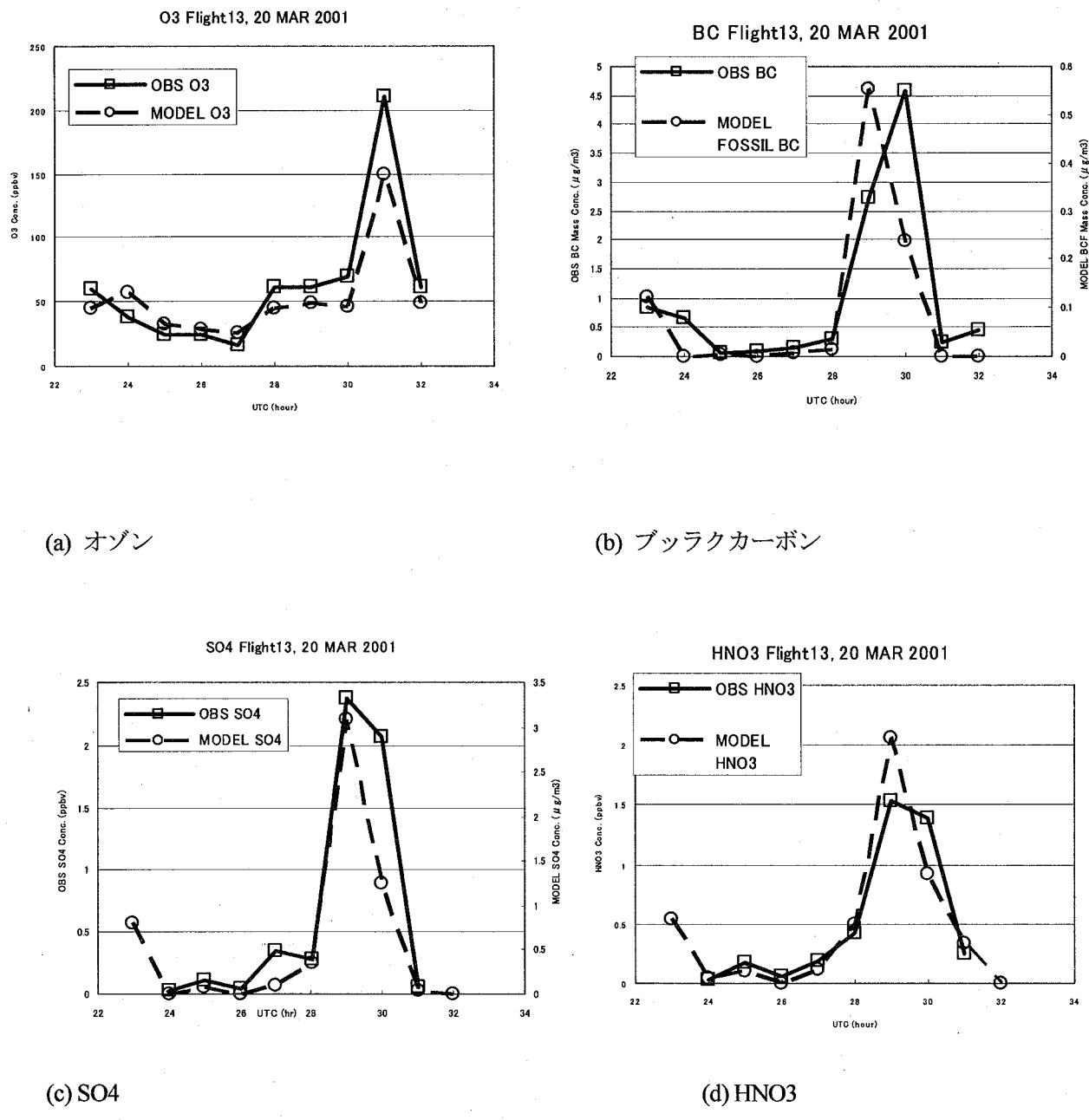


Fig. 13. FL13 (フライト 13) : 観測と計算の比較。