18. 東アジアの排出量データと航空機観測データからの流跡線解析の比較

Comparison of emission data and the backward trajectory analysis from airborne observation for East Asia

倉田学児*・北田敏廣*・山本浩平**・G R カーマイケル***・Y タン***

Gakuji KURATA, Toshihiro KITADA, Kouhei YAMAMOTO, Gregory. R. CARMICHAEL, Youhua TANG

ABSTRACT: Long-range transport of the pollutants influenced by both anthropogenic and natural emission source in East Asia including the biomass burning emission in Southeast Asia was investigated by using the backward trajectory analysis from NASA TRACE-P airborne observation and a numerical simulation with three-dimensional chemical transport model (STEM-2k1). As a result, we found systematic regional bias between observed and calculated concentration. The ratios between CO and some NHMCs, such as ethane/CO and ethane/propane, were highly associated with the distribution of emission ratio in this period. We also investigated the time rate of change of the concentration of species and their ratio along the trajectory. From this analysis, the propane/ethane ratio and propane/acetylene ratio were proved to keep their emission ratio during regional transport. From the backward trajectory analysis, we also found the fact that our emission quantities from biomass burning have still some error for specific hydrocarbons. Further investigation will improve the model accuracy and potential capacity. This kind of analysis may help to determine the emission factor by observation-based inventory scheme.

KEYWORDS: Long-range transport, Air pollution, Numerical simulation, Biomass burning, Tropospheric chemistry

1. はじめに

東アジア諸国の急速な経済発展によって、これらの地域から排出される大気汚染物質の長距離輸送による北太平洋域や北アメリカへの影響に強い関心が持たれている。これらの汚染物質は対流圏の化学的組成を変化させることで、酸性雨から地球規模の気候変動まで幅広く影響を及ぼしていると考えられている。

TRACE-P 航空機観測は、NASA の主導で 2001 年 2 月から 4 月にかけて実施された。この観測では、DC-8 と P-3B の 2 機の航空機が用いられ、人為起源の大気汚染物質が北太平洋の対流圏化学組成に及ぼす影響を明らかにすることを目的として、南シナ海から東シナ海、黄海、日本・朝鮮半島周辺で、多種類の気相物質・エアロゾル物質の濃度、気象場、大気の光学的性質などが観測された。Fig.1 に、それぞれの航空機の飛行経路を示した。

本研究では、航空機で観測された気塊の持つ特徴が、東アジア地域の排出源とどのような関連性を持っているのかを明らかにするために、3次元化学輸送モデル(STEM-2k1)の計算結果とバックワードトラジェクトリーを利用した。これらの計算に必要な排出源データは、種々の統計値からのボトムアップによって構築されたものであるが、膨大な資料と努力にも関わらず、発展途上国からの排出量や、家庭での燃料使用、森林火災などについては、排出量の不確実性が未だに大きい。

3次元化学輸送モデルの計算結果に加えて、航空機の位置からのバックトラジェクトリーを計算すること

* 豊橋技術科学大学エコロジー工学系, Department of Ecological Engineering, Toyohashi University of Technology

** 京都大学大学院エネルギー科学研究科, Graduate School of Energy Science, Kyoto University

*** アイオワ大学地球地域環境研究センター, Center for Global and Regional Environmental Research, University of Iowa

で、観測された気塊の過去の動きを追跡し、それらの気塊が影響を受けたであろう排出源との関連付けを行い、気塊の持つ特徴量と排出源の特徴との間にある関係を明らかにすることを目的とする。また、ボトムアップ的な手法だけでは限界のある排出量インベントリーに、観測データの側から有効な情報を提供する手段ともなると考えられる。

2. 方法

化学輸送モデルである STEM-2k1(Carmichael, 2003)は、SAPRC-99(Carter, 2000)に基づく化学反応系を持っており、93 個の化学種と 225 個の反応から構成されている。光解離速度は、NCAR の TUV モデルで同時に計算しており、雲・エアロゾルの影響、オゾン・SO₂、NO₂ による気相吸収などの影響を考慮している。気象場には、ECMWF の再解析データ (6 時間毎、1 度×1 度の水平解像度) を初期値、境界条件として用いた RAMS の計算結果を用いている。濃度場の境界条件は、観測データから推定した。

計算に使っている排出源データは、Woo, et. al.(2003)などに基いている。これは、燃料の種類と、家庭・輸送・発電・産業などの活動分類に基づく地域毎の膨大なデータに基づくボトムアップインベントリーである。この排出源情報はすべての人為起源の排出源、森林火災、火山、植物起源などを含んでいる。雷放電、土壌粒子、海塩粒子の排出量はそれぞれ積雲活動、陸上・海上での風速に依存しているので、CFORS のフレームワーク(鵜野,2003)の中で計算された。モデルの領域は Fig.1 に示した通りであり、水平格子間隔は 80km で、鉛直には 23km までを不等間隔に 23 層に区切っている。

この研究では、5 分毎の値として整理された TRACE-P の両航空機の観測データセットを用いた。RAMS の 3 次元の風速場を用いて、5 分毎の航空機の位置から 5 日間のバックトラジェクトリーを計算した。トラジェクトリーの全個数は約 2300 個となった。また、輸送途中での化学反応や拡散・沈着による濃度変化を考慮するために、トラジェクトリーに沿った計算値を抽出した。飛行経路上での観測データとモデル計算値、さらにバックトラジェクトリーおよびその上でのモデル計算値を使って、排出源地図と比較できるような 2 次元および 3 次元の情報を再構築した。

3. 結果

3.1 モデルの再現性

Fig.2 に、いくつかの化学種を対象として、飛行経路上での観測値とモデル計算値との間の散布図によって、モデルの再現性を示した。NO_x を除いては、ほとんどのデータ点がファクター 2 の範囲に収まった。特に O₃、CO や非メタン炭化水素は観測とよく一致した。高い再現性が実現できたことから、モデル計算によって得られる 3 次元の気相物質の濃度場や、トラジェクトリーに沿ってモデルから抽出した計算場を使って、航空機で観測された気塊の性質と排出源との間の関係を説明することが可能であると考えられることができる。

Fig.1 Flight track of DC8 and P3B during TRACE-P campaign. Solid line represent DC-8 and Dashed line represent P3B. Our analysis use DC8 #6 · #17 and P3B #8 · #19. Internal box and points represent model boundary and grid point.

3.2 モデルと観測の濃度の比較

Fig.3 は、観測された CO、エタン、アセチレン、プロパンの濃度をバックトラジェクトリーによりそれぞれの気塊が通過してきたメッシュに再分配して求めた平均濃度場であり、次式によって求めた。

$$C = \frac{1}{N} \sum_i^N C_i \quad (1)$$

ここで、N は、各メッシュを地面から 3000m 以下で通過したトラジェクトリーの個数であり、 C_i は飛行機の場合での観測値を示している。 C_i が航空機の場合での濃度であるために、この解析では、排出源地帯から実際に観測されるまでの、化学反応・拡散・沈着などによる気塊の変質は考慮されていない点に注意が必要である。

Fig.3(a) は、CO の平均濃度である。非常に高濃度の CO (350ppbv 以上) が中国の中央部や東南アジアを通過してきた気塊にみられる。中国中央部での CO の排出量は工業活動からも、バイオマス燃料や化石燃料の家庭での利用からも多い。また、この時期、東南アジアの森林火災も CO の主たる起源である。また、比較的小さい平均値 (100~150ppbv) が太平洋起源の気塊にみられる。

Fig. 3 (b)~(d) は、それぞれエタン、アセチレン、プロパンの同様の解析結果である。エタンとプロパンに関しては、南北の大きな勾配がみられる。この勾配は北半球中緯度の排出源帯を反映している。アセチレンの場合には、CO と同じ地域に高濃度が観測されているが、顕著な南北勾配はない。

3.3 CO, 炭化水素間の濃度比の比較 (排出源、観測、モデル)

次に、CO と炭化水素の濃度の間の比について排出源、観測値、モデル計算値の三者を比較する。Fig. 4(a)(b) の左の図は、それぞれ、排出源データから計算したエタン/CO とエタン/プロパンの比である。中央の図と右の図は、それぞれ、同じ化学種の組み合わせによる観測値とモデル計算値の比であ

Fig. 2. Scatter plot between model and observed value at flight track every 5-minutes for both aircraft. Broken lines are represent factor 2.

Fig. 3. Average field of the observed concentration reconstructed by backward trajectory. (a) CO, (b) Ethane, (c) Acetylene, (d) Propane (ppbv). All trajectories passed within 3000m of surface of each mesh were picked up.

Fig. 4. Comparison of the ratio between emission, model and observation by using backward trajectory to redistribute the value on flight track to the map. Ratios for observation and model are regression slope. Background concentration, which is a function of potential temperature, was subtracted for CO and ethane. All trajectories passed within 3000m of surface of each mesh were used.

る。

観測とモデルの比は、観測された時点での気塊の温位の関数として定義したバックグラウンド濃度を差し引いた上で、線形回帰によって傾きを求めて比とした。エタン/CO の場合には、観測された比とモデルの比は空間分布も絶対値に関しても、よく似ている。また、それらの値は、北緯 30 度以北では排出源データの比とよく合致している。しかし、東南アジアからの気塊の場合、両者は全く異なった比となった。この原因については、次節でトラジェクトリー上での濃度変化とそれに伴う比の値の変化について考察をする。Fig.4. (b) はエタン/プロパンの比である。この場合には、東南アジアからの気塊も含めて、観測からの比の値の分布は、排出源の空間分布のパターンをよく捉えている。モデル計算からの比も同様の定性的な特徴を持っている。しかしモデル計算結果から求めた比の値は、空間的な変動が排出比・観測比に比べて、均一すぎる。これはモデル内での気塊の混合（拡散・モデル解像度による）が過剰であることが原因の一つとして考えられている。

3.4 トラジェクトリー上での濃度変化と比の関係

次に、トラジェクトリーに沿って取り出したモデル計算値を利用して、気塊における濃度変化と比の変化の関係を調べた。ここまでの解析では、飛行経路上での観測値とモデル計算値だけを使っていたので、輸送中での気塊の化学反応や拡散・混合による濃度の変化は考慮されていないが、モデルの計算結果には、これらすべての効果が反映されている。

まず、解析を簡単にするために、トラジェクトリー上から濃度が最大となる点を探す。これは強い排出源の上空を通過した時点に対応すると考えられる。Fig. 5 に示した様に、トラジェクトリー上での気塊の出発点（多くはモデル領域の境界上）での濃度を(A)、トラジェクトリー上での最大濃度を(B)、航空機の場所での濃度を(C)として、(A)から(B)の変化を増加局面、(B)から(C)への変化を減少局面と定義して、それぞれを

線分で結んだものを全トラジェクトリー（ここではDC8のみ）についてはプロットしたのが Fig. 6 である。

Fig.6 (a)は濃度の増加局面を、(b)は減少局面について線分をプロットしたものである。線の濃淡は、気塊の出発点の緯度によって異なる。増加局面をみると、出発点の濃度は緯度によって異なっている。これはモデルのバックグラウンド濃度が緯度と高度に応じて設定されているためである。気塊の濃度は、排出源との遭遇によってほぼ排出比に比例した方向へ変化する。次に減少局面(b)の場合には、どの気塊についても、CO、エタン共に、濃度はモデル上の最小濃度に向かって減少していることが分かる。

これには、いくつかの原因が寄与している。一つは、航空機観測の多くが北西太平洋上の対流圏で行われているために、汚染された気塊は、海洋起源の清浄な気塊や、南方から来たバックグラウンドのエタン濃度が小さい気塊と混合する機会が多い。より清浄な気塊との混合の場合には、濃度比の値は大きく変わらないので、高緯度を起源とする気塊は輸送中も比の値を保ちやすい。それに対して、低緯度を起源として、バックグラウンド濃度の低かった気塊の場合には、北方からの気塊と混合することで、CO の濃度は減少するものの、エタンの濃度はそれほど減少しない事になり、エタン/CO の比の値を著しく低下させる結果となる。これが Fig. 4.で東南アジアからの気塊の濃度比がうまく排出源の比を説明できなかった理由の一つである。ただし、Fig.4 の場合には、それ以外にも森林火災からの排出比の不確定性なども原因となりうるので、さらなる検討が必要である。

バックグラウンド濃度の低い物質同士の比を用いた方が、気塊の起源を分類する場合には都合がよいが、そのような物質は逆に大気中の寿命が短い傾向にあり、化学反応による濃度変化の寄与を十分に考慮する必要があるが出てくる。

4. 結論

3次元化学輸送モデル、STEM-2k1 とバックトラジェクトリー解析の枠組みを用いて、気塊と排出源地域との関連づけに対するモデルの可能性を検討した。CTM は、飛行経路上のオゾン、CO、炭化水素の空間・時間分布をよく再現することができた

Fig. 5. Example of the Change of the concentration of CO and Ethane on the trajectory. (Model)

Fig. 6 Change of the concentration on the trajectory. Each line denote one trajectory. Shade of the line denote the latitude of the origin of the airmass.

バックトラジェクトリーを使うことで観測値とモデル計算の平均値やその差を地図上で再構築することができた。この解析から、この時期、観測された高濃度の CO が、いつも中国中部と東南アジアの排出源と関係していることを見いだした。

また、CO, エタン、プロパン、アセチレンの間の濃度比について、排出源比、観測値の比、モデル計算値の比を比較したが、観測されたエタン/CO 比とエタン/プロパン比は、それらの排出源での比とよく一致していた。しかし、東南アジアからの気塊のエタン/CO 比が排出比と大きく異なったり、モデル計算値からのエタン/プロパン比が均一すぎるなどの差違もみられた。トラジェクトリー上での濃度と比の変化について、モデルで計算値を用いて、排出源近くでの濃度の増加局面と、その後の輸送過程での減少局面について調べた結果、エタンが緯度によって顕著に異なるバックグラウンド濃度を持つために、特に東南アジアから来る気塊の場合に、CO との濃度比が、混合等によって排出源での比よりも小さくなってしまいう事が分かった。

また、本稿では十分に示せなかったが、モデルの計算値と観測値との間の系統的な差についてもバックトラジェクトリー解析をすることで、その原因となりうる排出源を推定することができた。TRACE-P 観測期間に東南アジアで顕著であった森林火災からの排出量の推定もそのひとつで、特にアセチレンの観測値とモデル計算値の間のバイアスが顕著であった。森林火災からの個々の炭化水素の排出量については、最近ようやく実験や観測に基づく排出強度の推定値が整備されてきた段階で、その地域性や燃焼状態との関係など、今後の検討課題も多い。

本研究のようなバックトラジェクトリーを結合した解析によって、航空機観測で得られた気塊のデータから、それらの気塊と排出源との関係を説明する重要な情報を得ることができると示せたので、今後はさら、体系的な方法論を構築するための検討が必要となると考えられる。

謝辞

この研究の一部は、文部科学省の 21 世紀 COE プログラム“未来社会の生態恒常性工学”による支援を受けて行われた。

参考文献

- Carmichael, G. R., Tang, Y., Kurata, G., Uno, I., Streets, D.G., Woo, J.-H., et. al, (2003), Regional-Scale Chemical Transport Modeling in Support of Intensive Field Experiments: Overview and Analysis of the TRACE-P Observations, *Journal of Geophysical Research*, 10.1029/2002JD003117
- Carter, W., (2000), Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Final report to California Air Resources Board Contract No. 92-329, University of California Riverside
- Phadnis, M. J., Carmichael, G. R., (2000), Transport and distribution of primary and secondary nonmethane volatile organic compounds in east Asia under continental outflow conditions, *Journal of Geophysical Research*, 105, 22,311-22,336
- Woo, J.-H., Streets, D., Carmichael, G. R., Tang, Y., Yoo, B., Lee, W.-C., Thongboonchoo, N., Pinnock, S., Kurata, G., Uno, I., Fu, Q., Vay, S., Sachse, G. W., Blake, D. R., Fried, A., Thornton, D. C., (2003), The contribution of biomass and biofuel emissions to trace gas distributions in Asia during the TRACE-P Experiment, *Journal of Geophysical Research*, 10.1029/2002JD003200
- Tang, Y., Carmichael, G. R., Uno, I., Woo, J.-H., Kurata, G., Lefer, B., et. al, (2003), Impacts of Aerosols and Clouds on Photolysis Frequencies and Photochemistry During TRACE-P, Part II: Three-Dimensional Study Using a Regional Chemical Transport Model, *Journal of Geophysical Research*, 10.1029/2002JD003100
- 鵜野伊津志、(2003)、アジアスケールの越境物質輸送モデリング、大気環境学会誌、38(1), pp.1-12