九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

多波長ミー・ラマンライダー観測システムを用いた大気汚染排出量の最適化

弓本，桂也
九州大学応用力学研究所

鵜野，伊津志
九州大学応用力学研究所

西澤，智明
国立研究開発法人国立環境研究所

王，哲
九州大学応用力学研究所

他

https://doi.org/10.15017/1929736

出版情報：九州大学応用力学研究所所報. 154, pp.18-25, 2018-03. 九州大学応用力学研究所
バージョン：
権利関係：

KYUSHU UNIVERSITY

多波長ミー・ラマンライダー観測システムを用いた大気汚染排出量の最適化

弓本 桂也[*1] 鵜野 伊津志[*1] 西澤 智明[*2] 王 哲[*1] 原 由香里[*1]
清水 厚[*2] 杉本 伸夫[*2] 松井 一郎[*2]

(2018 年 1 月 31 日受理)

Inverse Estimate of Air Pollutant Emissions with Multi-wavelength Mie-Raman Lidar Observations

Keiya YUMIMOTO, Itsushi UNO, Tomoaki, NISHIZAWA, Zhe WANG, Yukari HARA,
Atsushi, SHIMIZU, Nobuo SUGIMOTO, Ichiro MATSUI
E-mail of corresponding author: *yumimoto@riam.kyushu-u.ac.jp*

Abstract

An inverse modeling system for air pollutant emissions (SO2, NOx, and NH3) was developed with a Multi-wavelength Mie-Raman Lidar (MMRL), the GEOS-Chem chemical transport model (CTM), and Green's functions method. MMRL, an improved two-wavelength polarization Mie-scattering Lidar by adding a nitrogen Raman Scatter measurement channel, can provide vertical profiles of seven aerosol optical properties (extinction coefficients (α) at 355 and 532 nm; backscatter coefficient (β) at 355, 532, and 1064 nm; depolarization ratio (δ) at 355 and 532 nm) and are operated at three sites in Japan. To use aerosol vertical profiles from MMRL measurements as observational constraint of the inverse modeling, we developed a Lidar simulator that converts CTM outputs (i.e., aerosol mass concentrations) into the seven aerosol optical properties and allows direct comparison with MMRL measurements. The feasibility and capability of the developed system was demonstrated in an inversion experiment in which we used extinction coefficient at 532 nm from MMRL at Fukuoka in 2015. The inverse experiment shows reduced emissions over China compared with 2010 reflecting recent reductions of Chinese SO2 and NOx emissions. Aerosol optical depth (AOD) derived from a posteriori emission exhibit a decreasing trend over not only China but also the downwind regions (e.g., Japan). This is consistent with AOD provided by the Japanese Aerosol reanalysis.

Keywords: *Inverse estimate, Green's function method, Chemical Transport Model, China, Tagged tracer*

1. はじめに

大気汚染とは、大気中のエアロゾル (微粒子) や排ガス等の微量気体の増加することによって大気質が悪化し、健康や人間活動、気候を含めた地球システムに (主に悪い) 影響をあたえることを指す。その顕著な事例として、光化学オキシダントによる光化学スモッグや、粒径が 2.5 μm 以下の微小粒子状物質 ($PM_{2.5}$) による高濃度スモッグが挙げられる。$PM_{2.5}$ はその粒子のサイズが小さく肺の奥にまで到達しやすいため、呼吸器系や循環器系の疾患に影響があることが指摘されている [1), 2)]。

*1 九州大学応用力学研究所
*2 国立環境研究所

$PM_{2.5}$ とその前駆物質は、自動車や工場、発電所等から排出される。日本国内では、大気汚染防止法や自動車から排出される窒素酸化物及び粒子状物質の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法 (自動車 NOx・PM 法) の制定や改正を通じて、排出量の抑制・低減が図られ、基準値の達成率向上に寄与してきた。一方、人口と経済規模の急速な増加が進む東アジア域では、大気汚染物質排出量が増加し続けており [3)]、自国だけでは無く、風下に位置する近隣国の大気環境にも大きな影響を与えている [4), 5), 6)]。鵜野らは、化学輸送モデルを用いたソース・レセプター解析を行い、福岡の $PM_{2.5}$ 濃度に対する人為起源排出量の相対的な寄与率を地域別に計算し、年平均では約 80%が、大陸からの

風が卓越する冬季においては約 90%が国外寄与であると報告している。このように、国境を超えて生じる大気汚染現象を正しく捉えるためには、国内だけではなく、東アジア全体の風向や季節変化、汚染物質の排出量の動向を正しく知る必要がある。

特に、大気汚染物質がいつ、どこから、どれだけ大気中に放出されたか (排出インベントリと呼ぶ) を正確に把握することは、大気汚染現象を理解する上で重要な要素の一つである。化学輸送モデルを用いた数値予測やシミュレーションの重要な入力情報でもあり、その結果を大きく左右する。一括りに排出インベントリといっても、その排出源やその分布は多岐にわたる。時間変動も大きく、日変化や季節変動、経済状況を反映させた年々変動を見せる。

排出インベントリを作成する主な手法として、ボトムアップ手法が広く採用されている。これは、エネルギー統計や人口分布といった国が発表する統計量に基づいて推計を行うものである[3]。様々な研究機関で推計されているボトムアップ排出インベントリであるが、各種統計量、排出係数や除去係数などを推定して計算を行うため、各行程に含まれる不確実性を積み上げてしまう。そのため、最終的なプロダクトである推定量に含まれる不確実性が大きくなってしまう問題を抱えている。また、各種統計量の公開を待つ必要があるため、インベントリの作成に時間を有する (3–5 年程度) という欠点もある。

このボトムアップ排出インベントリの問題点を補うために近年研究が行われているのがトップダウン推定 (または逆推計) である。トップダウン推定では、ボトムアップ排出インベントリを先見情報として、数値モデルを媒体に、観測データを拘束条件とすることで排出量を最適化する。逆推計を行うことで、排出量やその時間変動の最適化 (不確実性の低減) 、統計量には含まれていない情報を排出インベントリに反映させることだけではなく、排出インベントリの延伸 (速報的に間近の排出インベントリを作成する) などが期待できる。トップダウン推定は、CO[6), 7)]、や窒素酸化物[8), 9)]、エアロゾル[10), 11)]に応用されている。

九州大学応用力学研究所では、JSPS 科学研究費基盤研究 S「多波長ライダーと化学輸送モデルを統合したエアロゾル5次元同化に関する先導的研究 (代表 鵜野伊津志九州大学教授) 」の支援を受け、多波長ミー・ラマンライダー (MMRL; Multi-wavelength Mie-Raman Lidar) 観測システムを開発・設置し、エアロゾルの連続観測を行っている。本研究では、MMRL による観測データを用いた、中国を対象とした大気汚染物質排出量の逆推計システムの開発とフィジビリティスタディのための予備実験の実施を目的とする。

2. 研 究 手 法

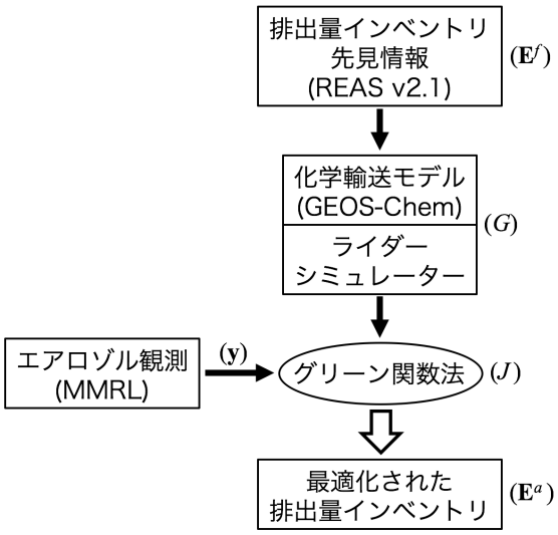

Fig.1 Schematic of the emission inverse modeling system.

開発する排出量逆推計システムは、基となる排出量インベントリ (先見情報) 、拘束条件に用いられる観測データ (MMRL 測定データ) 、観測データと排出量を結びつける化学輸送モデル、最適化ルーチンからなる (Fig.1にシステムの概念図を示す) 。この章ではそれぞれの要素について述べる。

2.1 多波長ミー・ラマンライダー (MMRL) 観測

ライダーはレーザー光線を大気中へと射出し、大気分子やエアロゾル粒子、雲粒子により後方散乱されたレーザー光線の強度を計測することで、それぞれの濃度の鉛直分布を推定する。例えば、国立環境研究所が運用する地上ライダー観測ネットワーク (AD-Net)[12), 13)]では、2波長 (1064、532 nm) 偏光 (532 nm) ミー散乱ライダー (ML) を東アジア域に広く展開し、15 年以上に渡ってエアロゾルの分布・経年変化等を監視してきた。

九州大学応用力学研究所 (福岡; 33.52°N、130.48°E) では、ML に2波長 (387、607 nm) の窒素振動ラマン測定チャンネル及び波長 355 nm での偏光ミー散乱ライダー測定機能を追加した多波長ミー・ラマンライダー (MMRL) を導入、2013 年より連続観測を行っている。また、同様の MMRL 観測を、富山 (富山大学五福キャンパス、36.70°N、137.10°E) 、沖縄県辺戸岬 (国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション、26.87°N、128.25°E) でも随時開始している。

MMRL では、ラマン測定チャンネルを追加することで、大気分子と大気浮遊粒子による弾性散乱光と、窒素分子によるラマン散乱光 (非弾性散乱光) を同時に測定する。従来の ML では、2波長 (1064、532 nm) の後方散乱係数 (β; エアロゾルに対して入射した光が後方に散乱される比) と波長 532 nm での偏光解消度 (δ; ML

では直線偏光したレーザーを大気に送信し、受信散乱光を水平な成分と垂直な成分で測定する。δ はその比(垂直/水平) で定義され、粒子の形状 (非球形性) に感度を持つパラメーターとして活用されている) を測定することができるが、エアロゾルの濃度とより関係の深い消散係数 (α；光の強度がエアロゾルなどの散乱や吸収によって減衰する割合。鉛直積分することで光学的厚さを得ることができる) を直接求めることは出来ず、ライダー比等を仮定して推定する必要があった。MMRL では、弾性散乱光とラマン散乱光の2つの測定信号を同時に解析することで、消散係数と後方散乱係数を独立に求めることができる。結果として、MMRL からは、2波長 (355、532 nm) の消散係数 (α_{355}、α_{532}) 、3波長 (355、532、1064 nm) の後方散乱係数 (β_{355}、β_{532}、β_{1064})、2波長 (355、532 nm) の偏光解消度 (δ_{355}、δ_{532}) の7つの要素を得ることができる [14]。本研究では、この MMRL 観測で得られたシグナルを使い、排出量の最適化システムの構築を行うが、この豊富なアウトプットとそれぞれのエアロゾル粒子が持つ光学的な特徴を結びつけることで、エアロゾル種毎 (例えば、鉱物性ダスト、海塩粒子、黒色炭素、人為起源エアロゾル) に光学特性を推定するアルゴリズムの開発行われている [14]。

2.2　化学輸送モデル

排出量と観測データの関係を計算する化学輸送モデルには全球化学輸送モデル GEOS-Chem v9-02[15]を採用した。GEOS-Chem は NOx-Ox-VOC-HOx-CO の詳細な化学反応過程を含み、NASA GMAO (Global Modeling and Assimilation Office) によって提供される GEOS-FP 気象データによって駆動されるオフラインモデルである。全球計算 (水平解像度 2°×2.5°) を境界条件に、東アジア域を水平解像度 0.5°×0.667°で1方向ネストで計算を行った。鉛直方向は上空約 0.01 hPa までを 47 層に分けて計算している。計算領域設定および基本的な計算条件は桑原ら [4]に準拠しているので、詳細はそちらを参考にされたい。

モデルの主要な入力条件の1つである排出量インベントリには、REAS 2.1 (Regional Emission Inventory in Asia Version 2.1)[3] を用いた。本研究を行った時点で、REAS 2.1 には 2008 年までのデータしか整備されていない。そのため、本研究チームでは、2010 年までのエネルギー統計等を利用して外挿した結果を用いている。そのため、本研究では 2015 年を対象としているが、逆推計で用いる先見情報 ($\mathbf{E}^f$) には外挿から得られた 2010 年の排出量インベントリを用いていることになる。

化学輸送モデルでは、最適化の対象である排出量を入力条件に、大気汚染物質の重量混合比の時間発展を計算し、その分布を出力する。本研究では、排出量の

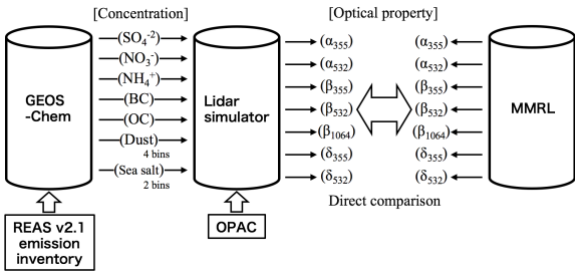

Fig.2 Schematic of the Lidar simulator.

最適化にライダー観測を用いるため、その観測物理量である消散係数や後方散乱係数などと、化学輸送モデルの出力を結びつける必要がある。そこで、化学輸送モデルの出力をライダー観測物理量に変換するライダーシミュレータの開発を行った。Fig. 2 にその概要図を示す。GEOS-Chem では、REAS 2.1 排出インベントリを入力し、エアロゾル成分として硫酸塩 (SO_4^{2-}) 、硝酸塩 (NO_3^-) 、アンモニウム塩 (NH_4^+) 、黒色炭素 (BC) 、有機炭素 (OC) 、海塩粒子、鉱物性ダストの重量濃度を出力する。ライダーシミュレータでは、これらとともに、GEOS-FP から提供された相対湿度、気温等の気象パラメータから、MMRL で観測される7つの要素 (2波長 (355、532 nm) の消散係数 (α_{355}、α_{532}) 、3波長 (355、532、1064 nm) の後方散乱係数 (β_{355}、β_{532}、β_{1064}) 、2波長 (355、532 nm) の偏光解消度 (δ_{355}、δ_{532})) を算出する。算出に必要な各エアロゾル種の特性のうち粒径分布に関するもの (有効半径や幾何標準偏差) については GEOS-Chem v9-02 標準のものを、光学特性 (複素屈折率) については、OPAC[16]や黄砂の実観測解析データ [17]を用いた。また、偏光解消度をシミュレートするために、黄砂に対しては回転楕円体を適用し [18]、その他のエアロゾルに対しては球形とした。

観測データを拘束条件に特定の地域の排出量を最適化するためには、その地域の排出量と観測データの間のソース・レセプター関係を求める必要がある。GEOS-Chem のモデルグリッドごとにソース・レセプター関係を求めることができれば、排出量分布を水平解像度 0.5°×0.667°で最適化できるが、計算機コストや得られる拘束

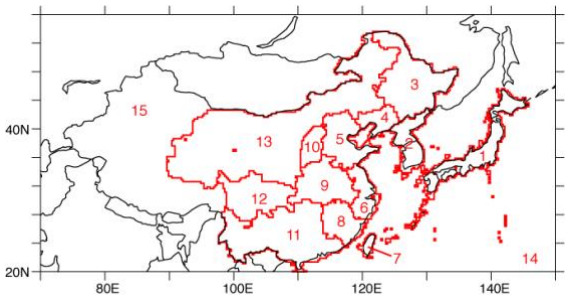

Fig.3 15 regions for the source-receptor analysis and inverse modeling.

条件 (すなわち観測データの数) からも現実的ではない。そこで本研究では、中国を中心に計算領域を 15 の領域に分け、それぞれの地域を対象にソース・レセプター関係を算出し、排出量の最適化を行った。Fig. 3 に地域分けを、Table 1 に領域番号と具体的な地域名を示す。ソース・レセプター関係算出は、対象領域の排出量を一律 20%削減した感度実験を行い、ベース計算との差を計算し、相対寄与率を計算することで求めた。また、感度実験計算の際は、各領域について独立に行うのではなく、偏西風を考慮し、風下 (すなわち西側の領域) から風上へと排出量を順々に削減していくことで計算した。これは、単一の領域のみの排出量を削減することで、風上からの汚染物質が希釈され、ガス・エアロゾル平衡が変化し、ソース・レセプター関係の線形性が失われることを防ぐためである。本研究では、得られたソース・レセプター関係を排出量の最適化に用いるが、それだけでも汚染物質の輸送過程や濃度分布の季節変動の解析に大変有効である。このソース・レセプター関係を用いた西日本や日本海沿岸への $PM_{2.5}$ 越境輸送に関する解析結果は桑原ら [4] に詳細にまとめられている。

Table 1 Source regions for source-receptor analysis

No.	Source region	Detail
1	Japan	Japan
2	Korea	Korea
3	NE. China	Jilin, Heilongjiang
4	Liaoning China	Liaoning
5	Central N. China	Beijing, Hebei, Shandong, Hebei
6	Central E. China	Shanghai, Jiangsu, Zhejiang
7	Taiwan	Taiwan
8	Central S. China	Fujian, Jiangxi
9	Central China	Henan, Anhui, Hubei
10	Shanxi China	Shansi
11	SW. China	Guangdong, Hunan, Hongkong, Macao, Hainan, Yunnan, Guizhou
12	Inland China	Qinghai, Gansu, Shaanxi, Inner Mongolia, Ningxia
13	Chuan-Yu China	Sichuan, Chongqing
14	Ocean (ship)	Ship exhaustion
15	Others	Others than region 1–14

2.3 グリーン関数法

最適化手法としては、グリーン関数法 [19), 20), 21)] を用いた。観測データ (ここでは、MMRL の計測値) を $\mathbf{y}$ (観測データ数は m) とすると、数値モデル (ここでは化学輸送モデル) との関係は次の式で表される。

$$\mathbf{y} = G(\boldsymbol{\eta}) + \boldsymbol{\varepsilon} \tag{1}$$

ここで、G は化学輸送モデルとそのアウトプットの観測空間への変換 (観測演算子) を表す。$\boldsymbol{\eta}$ は数値モデルに含まれる最適化すべき不確定なパラメータで、初期条件や境界条件、パラメタリゼーションに用いられる係数などを設定することができる。本研究では、$\boldsymbol{\eta}$ に各領域の大気汚染物質排出量のスケーリングファクターを設定することで、人為起源大気汚染排出量 (SO_2、NO_x、NH_3 等) の最適化を行う。$\boldsymbol{\eta}$ の次元を n、その共分散行列を $\mathbf{Q}$ で表す。$\boldsymbol{\varepsilon}$ は観測誤差で、測器の誤差、リトリーバル誤差、代表性誤差、G の作用によって生じる誤差 (すなわち、数値モデルや観測演算子によって生じる誤差) を含んでいる。$\boldsymbol{\varepsilon}$ の共分散行列を $\mathbf{R}$ で表す。本研究では、大気汚染排出量を $\boldsymbol{\eta}$ に、MMRL で観測された消散係数や後方散乱係数を $\mathbf{y}$ に設定するため、式(1)は大気汚染物質のソース・レセプター関係を表すことになる。

式(1)をマクローリン展開し、1次の項までを考える。

$$\mathbf{y} = G(\mathbf{0}+\boldsymbol{\eta}) + \boldsymbol{\varepsilon} = G(\mathbf{0}) + \mathbf{G}(\boldsymbol{\eta}) + \boldsymbol{\varepsilon} \tag{2}$$

$\mathbf{0}$ の零ベクトルで、$G(\mathbf{0})$ は基本となる通常の設定のモデル計算から得られる結果である (ベース計算と呼ぶ)。$\boldsymbol{G}$ は G のヤコビアン行列で、その次元は $m \times n$ である。$\boldsymbol{G}$ の i 番目のカラム ($\mathbf{g}_i$) は以下の式で表される。

$$\mathbf{g}_i = \frac{G(\mathbf{e}_i) - G(\mathbf{0})}{e_i} \tag{3}$$

ここで、$\mathbf{e}_i$ は、i 番目の要素に e_i を、それ以外の要素は 0 である摂動ベクトルで、式(3)は G の i 番目の要素に対するグリーン関数となる。本研究では、グリーン関数は前述の感度実験で求める。

一方、式(2)を整理すると、

$$\mathbf{d} = \mathbf{y} - G(\mathbf{0}) = \mathbf{G}(\boldsymbol{\eta}) + \boldsymbol{\varepsilon} \tag{4}$$

となり、イノベーション $\mathbf{d}$ (モデル結果と観測の差) をグリーン関数、$\boldsymbol{\eta}$、$\boldsymbol{\varepsilon}$ を用いて表すことが出来た。

$\boldsymbol{\eta}$、$\boldsymbol{\varepsilon}$ を制御変数とし、それぞれの誤差 (すなわち $\mathbf{Q}$ と $\mathbf{R}$) を考慮に入れた評価関数は、

$$J = \boldsymbol{\eta}^T\mathbf{Q}\boldsymbol{\eta} + \mathbf{d}^T\mathbf{R}\mathbf{d} \tag{5}$$

で与えられ、J を最小とする解 ($\boldsymbol{\eta}^a$) は次の式で求めることができる。

$$\boldsymbol{\eta}^a = (\mathbf{Q}^{-1} + \mathbf{G}^T\mathbf{R}^{-1}\mathbf{G})^{-1}\mathbf{G}^T\mathbf{R}^{-1}\mathbf{d} \tag{6}$$

得られた解を用いることで、最適化された排出量は、

$$\mathbf{E}^a = (1 + \boldsymbol{\eta}^a)\mathbf{E}^f \tag{7}$$

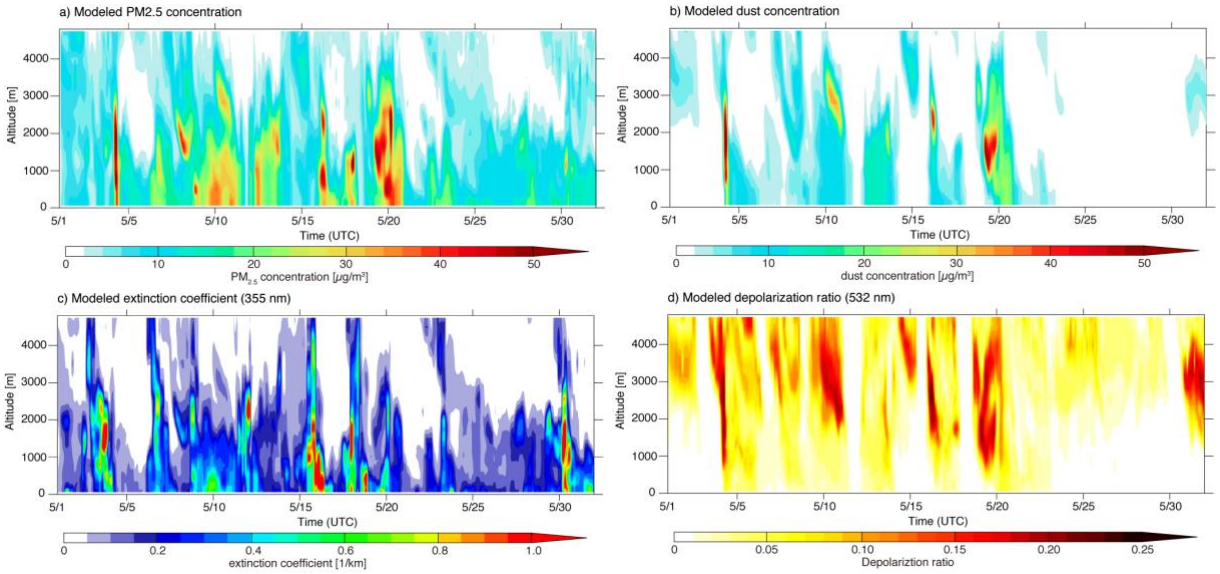

Fig.4 Time-height cross sections of modeled (a) $PM_{2.5}$ concentration, (b) dust concentration, (c) extinction coefficient (355 nm), and (d) depolarization ratio at RIAM MMRL site on May, 2015.

で表すことができる。ここで、$\mathbf{E}^f$ は逆推計を行う前の排出量（基準とした排出量または先見情報）、$\mathbf{E}^a$ は逆推計後の排出量である。また、得られた$\boldsymbol{\eta}^a$ の解析誤差$\mathbf{P}$は次の式から求めることができる。

$$\mathbf{P} = (\mathbf{Q}^{-1} + \mathbf{G}^T\mathbf{R}^{-1}\mathbf{G})^{-1} \qquad (8)$$

グリーン関数を用いた大気汚染排出量逆推計に関する研究は、二酸化炭素、メタンや一酸化炭素を中心に行われている他[19), 21)]、海洋モデルのパラメータ最適化にも用いられている[22, 23)]。

本稿では、開発した逆推計システムの実行可能性を確認するために、九州大学応用力学研究所に設置された MMRL 観測で得られた消散係数 (532 nm; α_{532}) を用い、排出量の最適化を、2015 年通年を対象に行なった。MMRL 観測データとモデル結果は鉛直プロファイルを日平均して用いた。それぞれの誤差（式(5)の$\mathbf{Q}$と$\mathbf{R}$）は、結果を左右する重要なパラメータである。背景誤差（$\mathbf{Q}$）は、排出量に含まれる誤差である。ここでは、REAS 2.1[3)]で見積もられている硫酸化合物の排出量の誤差 (31%) を用いた。観測誤差（$\mathbf{R}$）には、測器の誤差、リトリーバル誤差、代表性誤差、数値モデルや観測演算子によって生じる誤差を考慮に入れなくてはならない。正確な見積もりは困難であるが、ここでは、MMRL の観測値とモデル結果との比較から、120%を設定した。

3. 結 果 と 考 察

3.1 ライダーシミュレータによる変換

Fig.4 に化学輸送モデル GEOS-Chem で計算された $PM_{2.5}$ および鉱物ダスト濃度、ライダーシミュレータで変換された消散係数 (355 nm)、偏光解消度 (532 mm) の時間高度分布（福岡、2015 年 5 月）を示す。$PM_{2.5}$ の分布より、福岡の 5 月に幾つかの高濃度イベントがシミュレートされている。また、その中には黄砂イベントも含まれており（例えば 5 月 4 日や 5 月 19 日）、$PM_{2.5}$ の濃度は 50 μg/m^3 を超える日も存在する。ライダーシミュレータで計算された消散係数は、高濃度になる時期や高度は一致こそすれ、$PM_{2.5}$ 濃度分布と比べるとその様相は少々異なる。これは、エアロゾル光学特性がエアロゾル種によって異なること、大気中の水分量の影響を受けることなどから、エアロゾル種の濃度総和である $PM_{2.5}$ の濃度と必ずしも比例関係ではないためである。ライダーシミュレータで得られた偏光解消度は、土壌性ダスト濃度と良い一致を見せている。この結果は、偏光解像度を用いてエアロゾル全体から鉱物ダストを分離した発生量逆推計の実現可能性を期待させる。

3.2 逆推計による排出量の変化

Fig.5 に 5 月および 11 月における逆推計で得られた人為起源排出量 (SO_2、NO_x、NH_3 等) を先見情報に対する変化量を割合で示す（すなわち、2010–2015 年の排出量の変化量を 2010 年の排出量で割ったもの）。5 月、11 月ともに中国全土で排出量が大幅に減少していることがわかる。Li et al.[24)]は二酸化硫黄の衛星データを解析し、中国からの二酸化炭素の排出量は 2007 年の 36.6 Mt をピークに、2010 年の 27.5 Mt を経て、2015 年には 10.0 Mt, 2016 年には 6.4 Mt まで減少していると推

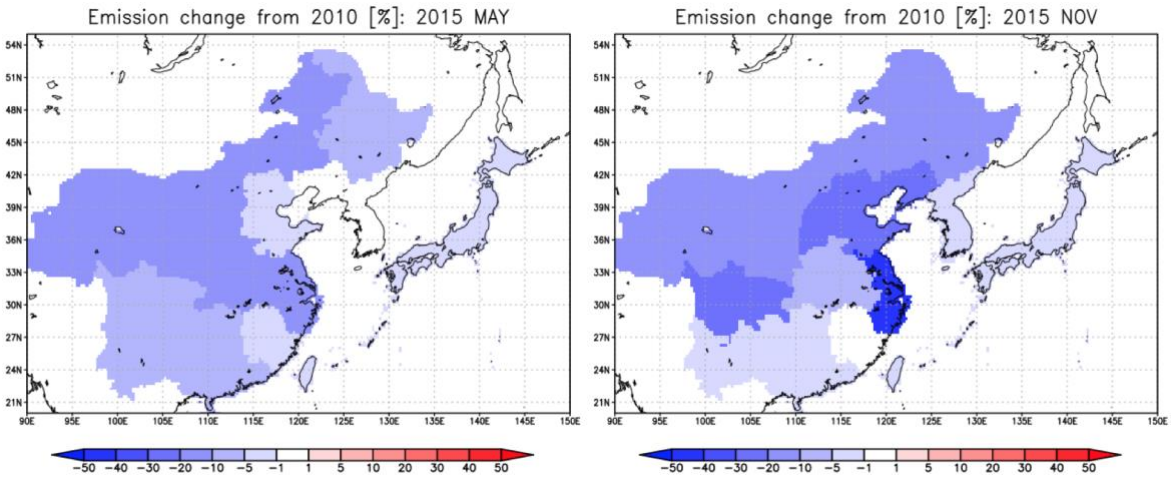

Fig.5 Spatial distribution of change in emissions between a posteriori (2015) and a priori (2010) in (a) May and (b) November.

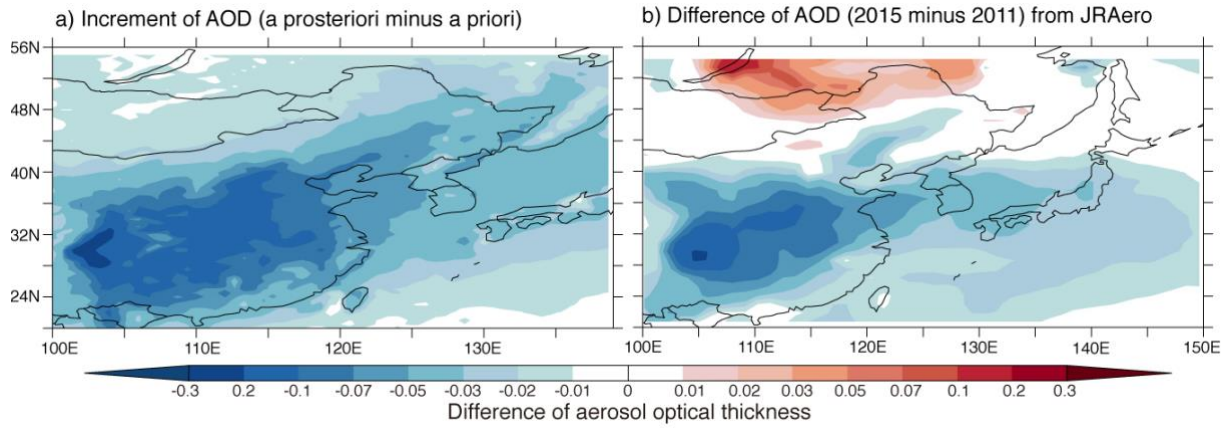

Fig.6 Horizontal distribution of annual averaged AOD: (a) increment (a posteriori AOD minus a priori AOD) obtained by this study and (b) difference between 2015 and 2011 provided by the JRAero aerosol reanalysis

定している。彼らの評価によれば、2015 年の中国二酸化硫黄排出量は、2010 年と較べて 63.6%減少していることになる。

Ding et al.[25]は、複数の窒素酸化物排出インベントリを比較し、中国主要地域から排出される窒素酸化物の総量は、2011–2012 年をピークとし、すべてのインベントリで近年は減少傾向であることを示している。本研究で得られた排出量の減少という結果は、これらの研究成果とも符合するが、減少割合や地域分布など詳細な検証が今後必要である。

3.3 エアロゾル光学的厚さ

Fig.6a に、本研究で得られた逆推計後の排出量で計算されたエアロゾル光学的厚さ (a posteriori AOD) から逆推計前の排出量で計算されたエアロゾル光学的厚さ (a priori AOD) を引いたものを示す。すなわち、2015 年の排出量を用いたシミュレーションから計算された AOD と、2010 年の排出量 (先見情報) を用いたシミュレーション (ただし、2015 年の気象場を使用) から計算された AOD の差を示している。排出量の減少を反映して、AOD も減少しているが、発生源である中国だけではなく、その風下である朝鮮半島、日本海や日本列島でも AOD が減少しているところに特徴がある。

Fig.6b に、エアロゾル再解析プロダクト (JRAero)[26]から算出した年平均 AOD の 2015 年と 2011 年の差をしめす。計算対象年や、使用している気象場に違いがあるものの、中国から日本列島にかけて AOD が減少する様子はよく一致している。エアロゾル再解析プロダクトでは、シベリアからモンゴル北部で AOD が増加しているが、これは 2015 年にバイカル湖付近で発生した大規模森林火災に由来するものであり、本研究の対象外である (ソース・レセプター解析の対象外) 。そのため、本研究の結果 (Fig.6a) には現れていない。

4. ま と め

本稿では、MMRL の観測データを用いた大気汚染物質排出量逆推計システムの概要について述べるとともに、

フィジビリティスタディを目的とした予備実験の結果について示した。開発したライダーシミュレータが、化学輸送モデルの出力を、消散係数等のライダー観測物理量へと適切に変換していることを確認した。予備逆推計実験の結果より、MMRL の観測データで拘束することにより、2015 年の中国の大気汚染物質排出量が 2010 年に較べて大きく減少することが明らかになった。これは、他の研究で報告されている、近年の中国からの二酸化硫黄、窒素酸化物排出量の減少傾向と符合する。得られた排出インベントリを用いて東アジアのエアロゾル光学的厚さの分布を求めた。排出インベントリの減少傾向を反映し、東アジアのエアロゾル光学的厚さは大幅に減少しており、これは、本研究とは独立して行われたエアロゾル再解析プロダクトの結果とも傾向が一致した。

本稿では、福岡 (九州大学応用力学研究所) に設置された MMRL のデータの内、532 nm の消散係数のみを拘束条件に用いた。福岡のほかにも、富山、沖縄辺戸岬でも MMRL は連続観測を行っており、これらのデータを用いることで、分布等でより正確な結果が得られると考えられる。また、532 nm の消散係数に加えて MMRL で得られる 7 つの観測変数も同時に拘束条件に加える事ができる (これがライダーシミュレータを用いる強みでもある) 。これにより、逆推計に用いる情報が大幅に増加するわけだが、特に、波長の異なるデータを用いることでエアロゾルの粒径分布に関する情報を逆推計に取り入れることができる。また、偏光解消度を用いることで、土壌性ダストとそれ以外のエアロゾルを明確に分けて逆推計を行うことが可能である。

前述のとおり、適切な逆推計結果を得るためには、それぞれの誤差情報を正確に見積もることが重要となってくる。化学輸送モデルと MMRL 観測の比較だけではなく、その他の観測データとの相互比較を行うことで、観測誤差をより正確に求めることが今後の課題である。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP25220101、JP16H02946 および、環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域課題（S12）の助成を受けて行った。

参考文献

1) Kanatani, K. T., I. Ito, W. K. Al-Delaimy, Y. Adachi, W. C. Mathews, and J. W. Ramsdell, Desert Dust Exposure Is Associated with Increased Risk of Asthma Hospitalization in Children, Am. J. Respir. Crit. Care Med., 182(12), 1475–1481, 2010.

2) Kojima, S., T. Michikawa, K. Ueda, T. Sakamoto, K. Matsui, T. Kojima, K. Tsujita, H. Ogawa, H. Nitta, and A. Takami (2017), Asian dust exposure triggers acute myocardial infarction, Eur. Heart J., 38(43), 3202–3208, 2017.

3) Kurokawa, J., T. Ohara, T. Morikawa, S. Hanayama, G. Janssens-Maenhout, T. Fukui, K. Kawashima, and H. Akimoto, 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(21), 11019–11058, 2013.

4) 桑原昇平，鵜野伊津志，王哲，板橋秀一，弓本桂也，長田和雄，山本重一，ソース・レセプター解析による西日本・日本海沿岸への PM2.5越境輸送，九州大学応用力学研究所所報, 152, 1–11, 2017.

5) 茶谷聡，森川多津子，中塚誠次，松永壮: 3次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏 2.5濃度に対する国内発生源・越境輸送 感度解析，大気環境学会誌, 46, 101-110, 2011.

6) Ikeda, K., K. Yamaji, Y. Kanaya, F. Taketani, X. Pan, Y. Komazaki, J. Kurokawa, and T. Ohara, Sensitivity analysis of source regions to PM $_{2.5}$ concentration at Fukue Island, Japan, J. Air Waste Manage. Assoc., 64(4), 445–452, 2014.

7) Arellano, A. F., P. S. Kasibhatla, L. Giglio, G. R. van der Werf, and J. T. Randerson, Top-down estimates of global CO sources using MOPITT measurements, Geophys. Res. Lett., 31(1), L01104, 2014.

8) Kopacz, M. et al., Global estimates of CO sources with high resolution by adjoint inversion of multiple satellite datasets (MOPITT, AIRS, SCIAMACHY, TES), Atmos. Chem. Phys., 10(3), 855–876, 2010.

9) Kurokawa, J. -i., K. Yumimoto, I. Uno, and T. Ohara, Adjoint inverse modeling of NOx emissions over eastern China using satellite observations of NO2 vertical column densities, Atmos. Environ., 43(11), 2009. Lamsal, L. N., R. V. Martin, A. Padmanabhan, A. van Donkelaar, Q. Zhang, C. E. Sioris, K. Chance, T. P. Kurosu, and M. J. Newchurch, Application of satellite observations for timely updates to global anthropogenic NO x emission inventories, Geophys. Res. Lett., 38(5), 2011.

10) Wang, J., X. Xu, D. K. Henze, J. Zeng, Q. Ji, S.-C. Tsay, and J. Huang, Top-down estimate of dust emissions through integration of MODIS and MISR aerosol retrievals with the GEOS-Chem adjoint model, Geophys. Res. Lett., 39(8), L08802, 2012.

11) Yumimoto, K., and T. Takemura, The SPRINTARS version 3.80/4D-Var data assimilation system: Development and inversion experiments based on the

observing system simulation experiment framework, Geosci. Model Dev., 6(6), 2013.

12) Sugimoto, N., I. Uno, M. Nishikawa, A. Shimizu, I. Matsui, X. Dong, Y. Chen, and H. Quan, Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events, Geophys. Res. Lett., 30(12), 2003.
13) Shimizu, A., T. Nishizawa, Y. Jin, S.-W. Kim, Z. Wang, D. Batdorj, and N. Sugimoto, Evolution of a lidar network for tropospheric aerosol detection in East Asia, Opt. Eng., 56(3), 31219, 2016.
14) Nishizawa, T., N. Sugimoto, I. Matsui, A. Shimizu, Y. Hara, U. Itsushi, K. Yasunaga, R. Kudo, and S.-W. W. Kim, Ground-based network observation using Mie–Raman lidars and multi-wavelength Raman lidars and algorithm to retrieve distributions of aerosol components, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., 188, 2017.
15) Bey, I., J. Jacob, R. M. Yantosca, A. Logan, B. D. Field, A. M. Fiore, Q. Li, H. Y. Liu, J. Mickley, and M. G. Schultz, Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation, J. Geophys. Res., 106, 73–95, 2001.
16) Hess, M., P. Koepke, and I. Schult, Optical Properties of Aerosols and Clouds: The Software Package OPAC, Bull. Am. Meteorol. Soc., 79(5), 831–844, 1998.
17) Aoki, T., T. T. Tanaka, A. Uchiyama, M. Chiba, M. Mikami, S. Yabuki, and J. R. Key, Sensitivity Experiments of Direct Radiative Forcing Caused by Mineral Dust Simulated with a Chemical Transport Model, J. Meteorol. Soc. Japan, 83A, 315–331, 2005.
18) Dubovik, O. et al., Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, J. Geophys. Res., 111(D11), D11208, 2006.
19) Enting, I. G., Inverse Problem in Atmospheric Constituent Transport, Cambridge University Press, Cambridge, 2002.
20) Menemenlis, D., I. Fukumori, and T. Lee, Using Green's functions to calibrate an ocean general circulation model, Mon. Weather Rev., 133, 1224–1240, 2005.
21) Yumimoto, K., I. Uno, and S. Itahashi, Long-term inverse modeling of Chinese CO emission from satellite observations, Environ. Pollut., 195, 2014.
22) Hirose, N., Inverse estimation of empirical parameters used in a regional ocean circulation model, J. Oceanogr., 67(3), 323–336, 2011.
23) Toyoda, T. et al., Improved state estimations of lower trophic ecosystems in the global ocean based on a Green's function approach, Prog. Oceanogr., 119, 90–107, 2013.
24) Li, C. et al., India Is Overtaking China as the World's Largest Emitter of Anthropogenic Sulfur Dioxide, Sci. Rep., 7(1), 14304, 2017.
25) Ding, J., K. Miyazaki, R. J. van der A, B. Mijling, J. Kurokawa, S. Cho, G. Janssens-Maenhout, Q. Zhang, F. Liu, and P. F. Levelt, Intercomparison of NOx emission inventories over East Asia, Atmos. Chem. Phys., 17(16), 10125–10141, 2017.
26) Yumimoto, K., T. Y. Tanaka, N. Oshima, and T. Maki, JRAero: The Japanese Reanalysis for Aerosol v1.0, Geosci. Model Dev., 10(9), 2017.