

アンサンブル気候予測データを用いた気温上昇が0.3 濃度に与える影響の評価

原田, 晃司
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

<https://hdl.handle.net/2324/4776848>

出版情報：九州大学, 2021, 修士, 修士
バージョン：
権利関係：



令和 3 年度
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修士論文

アンサンブル気候予測データを用いた
気温上昇が O_3 濃度を与える影響の評価

氏 名 原田 晃司

指導教員名 弓本 桂也 教授

目次

第 1 章 序論	1
1.1 研究の背景	1
1.1.1 大気汚染とは	1
1.1.2 光化学オキシダントとは	3
1.1.3 大気汚染の環境基準と歴史	4
1.1.4 温暖化と大気環境およびその対策	10
1.2 本研究に関する先行研究	15
1.3 本研究の目的と論文構成	17
 第 2 章 研究手法	 18
2.1 使用する数値モデルについて	18
2.1.1 アンサンブル機構予測データベース(d4PDF)	18
2.1.2 化学輸送モデル(NHM-Chem)	24
2.1.3 d4PDF-Chem を使用したアンサンブル実験	27
2.1.4 感度実験	30
2.2 観測データ(EANET)	33
2.3 光化学オキシダントとその支配要因	35
2.3.1 光化学オキシダント	35
2.3.2 窒素酸化物 NO _x	38
2.3.3 植物起源の VOC(BVOC)	39
2.3.4 OH ラジカル	40
2.3.5 ペルオキシアセチルナイトレート(PAN)	40
 第 3 章 結果と考察	 42
3.1 観測値を使用した精度検証	42
3.1.1 越境汚染の影響を受ける地点	42
3.1.2 内陸部	55
3.2 O ₃ への気候応答の検証	62
3.3 気温上昇に伴う O ₃ の変動	65
3.3.1 O ₃ 濃度	65
3.3.2 日最高 O ₃ 濃度	72

3.3.3 環境基準値・注意報発令基準値を超過した日数	79
3.4 O ₃ 濃度変化の要因に関する考察	84
3.4.1 BVOC	85
3.4.2 移流	91
3.4.3 水蒸気の増加による OH ラジカル生成の促進	100
3.4.4 太陽光による光解離の影響	103
3.4.5 PAN	108
3.5 感度実験を用いた各影響の O ₃ 濃度変化に対する定量化	110
第4章 結言	115
4.1 全体の総括	115
4.2 今後の展望	118
参考文献	119
謝辞	128

第1章 序論

本章では近年の地球温暖化に対する世界の活動の背景、大気汚染物質ひいては光化学オキシダントの基本的な性質や環境基準、そしてアンサンブル計算を用いた実験についての概要を述べる。最後に本研究の目的とその構成を示す。

1.1 研究背景

1.1.1 大気汚染とは

Figure 1.1 にアジアの地域別の一次汚染物質の排出量の年変化を、Figure 1.2 に大気環境汚染をもたらす様々な要因と発生源、プロセスなどの模式図を示す。

大気中に排出された何らかの物質が、自然の中での物理的な拡散・沈着・除去、および生物学的な浄化を上回って存在し、人間、動植物の生活環境や健康などに被害を及ぼす現象のことを大気汚染という。古くから硫黄酸化物(SO_x)を原因とする四日市ぜんそくや、窒素酸化物(NO_x)などを原因とする酸性雨などが、大気汚染によって引き起こされる公害として問題視されていたが、近年では、大気汚染の原因物質が数百、数千 km の遠く離れた発生源から気流に乗って運ばれ国境を超えて飛来する、越境汚染と呼ばれるものも大きな環境問題になっている。

これらは、人間活動によって、人為的に発生源から直接大気中に放出される一次汚染物質(一酸化炭素(CO), 二酸化硫黄(SO_2) など)が主な原因だが、放出された後に大気中の化学変化で生成される二次汚染物質(オゾン(O_3), ペルオキシアセチルナイトレート(PAN) など)の生成過程にも注意が必要である。

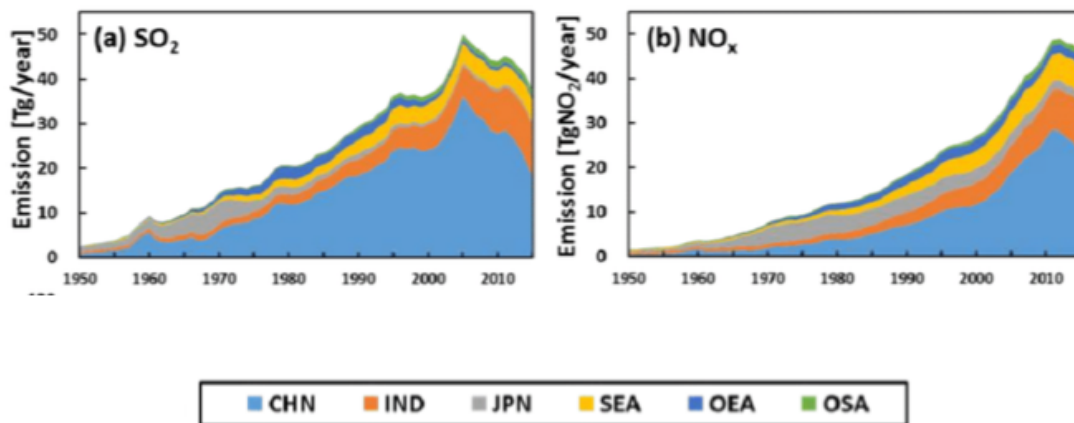


Figure 1.1 1950 年～2015 年のアジア地域別(a) SO_x (b) NO_x 排出量の年変化
(Kurokawa and Ohara 2019)

CHN=中国, IND=インド, JPN=日本, SEA=東南アジア,
OEA=中国と日本以外の東アジア, OSA=インド以外の南アジア

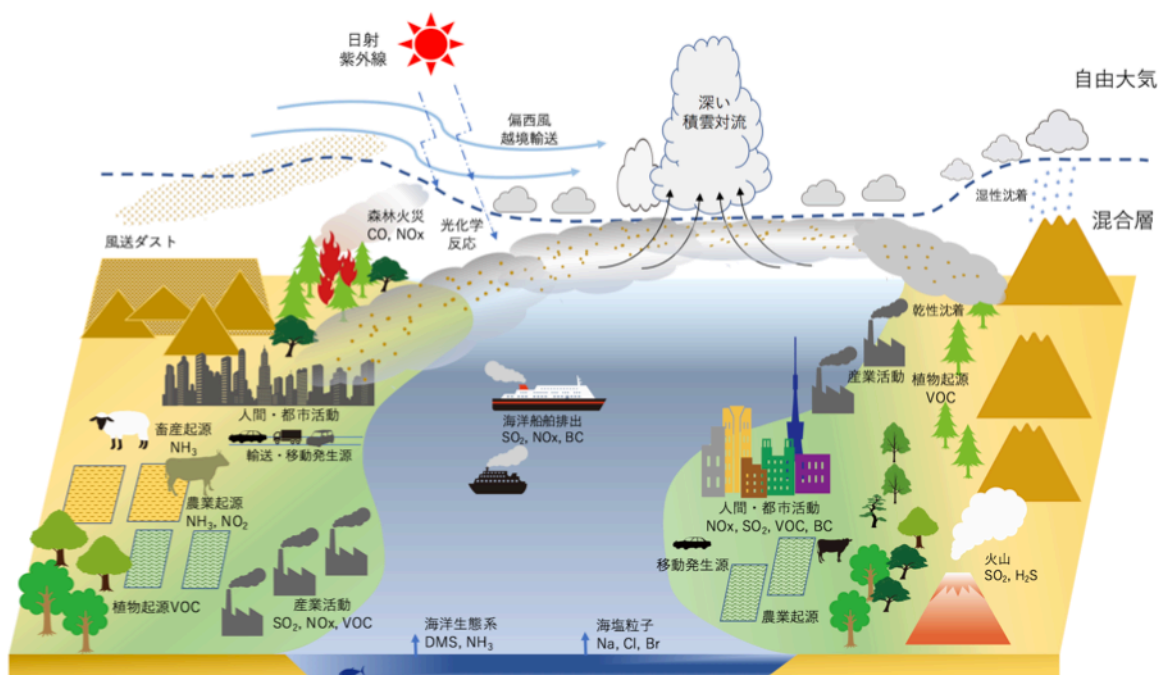


Figure 1.2 大気環境汚染をもたらす様々な要因と発生源の模式図
(鵜野伊津志, 弓本桂也, 板橋秀一: 大気環境モデリング, 森北出版(2021))

1.1.2 光化学オキシダントとは

光化学オキシダントとは、NO_x や炭化水素が光化学反応を起こして生成した O₃、PAN、アルデヒド類のことであり、その大部分が O₃ である。また、これらの物質からできたスモッグを光化学スモッグという。この O₃ は、高濃度で存在すると人体や生態系にとって有害な存在である。健康被害としては、目の症状(チカチカする、涙が出る等)、呼吸器の症状(喉が痛い、せきが出る、息苦しい等)、さらに重くなると吐き気や頭痛等の急性症状が出るということが知られている。農作物や森林被害としては、植物の生理機能、成長、収量などの低下や、葉の可視障害などが挙げられる。

対流圏における O₃ は、高濃度で存在すると人体や生態系にとって有害な存在であると同時に、大気中におけるヒドロキシラジカル(OH ラジカル)の主要な発生源として働くことで、大気の酸化能を司るなど、大気環境的側面ならびに大気化学的側面において重要な働きをする。加えて、O₃ 自体が紫外線を吸収する特性を持つため、地球温暖化にも寄与しており、IPCC 第 4 次報告書によると二酸化炭素、メタン(CH₄)に次いで、3 番目に大きい放射強制力を持つ温室効果ガスであると推定されている。対流圏の O₃ の 2005 年の放射強制力は 0.35[0.25 ~ 0.65] W m⁻² (IPCC 第 6 次報告書では成層圏と対流圏の O₃ を合計した 1750-2019 年の放射強制力は 0.47[0.24 - 0.71] W m⁻²) で、対流圏の O₃ 変動が支配的であることが知られている(Figure1.3)。なお、対流圏 O₃ の放射強制力は、大部分が人為起源による CH₄、NO_x、CO、非メタン揮発性有機化合物(NMVOCs)の排出に起因し、成層圏 O₃ の放射強制力は、主としてハロカーボン類による O₃ の破壊に起因するとされている。

光化学オキシダント生成のための光化学反応は気温の上昇により促進され、紫外線(日射)の強度が大きく関与するため、前駆物質の濃度が現状のままと仮定した場合でも、温暖化による気候変動によって光化学オキシダント濃度あるいは O₃ 濃度が増加すると考えられている。さらに気温上昇によって自動車や給油所、石油精製施設などから揮発性有機化合物(VOC)等の揮発量が増加し、また植物の活動が活発化して植物由来の VOC(BVOC)が増加するため、光化学オキシダント濃度の増加に繋がると指摘されている。

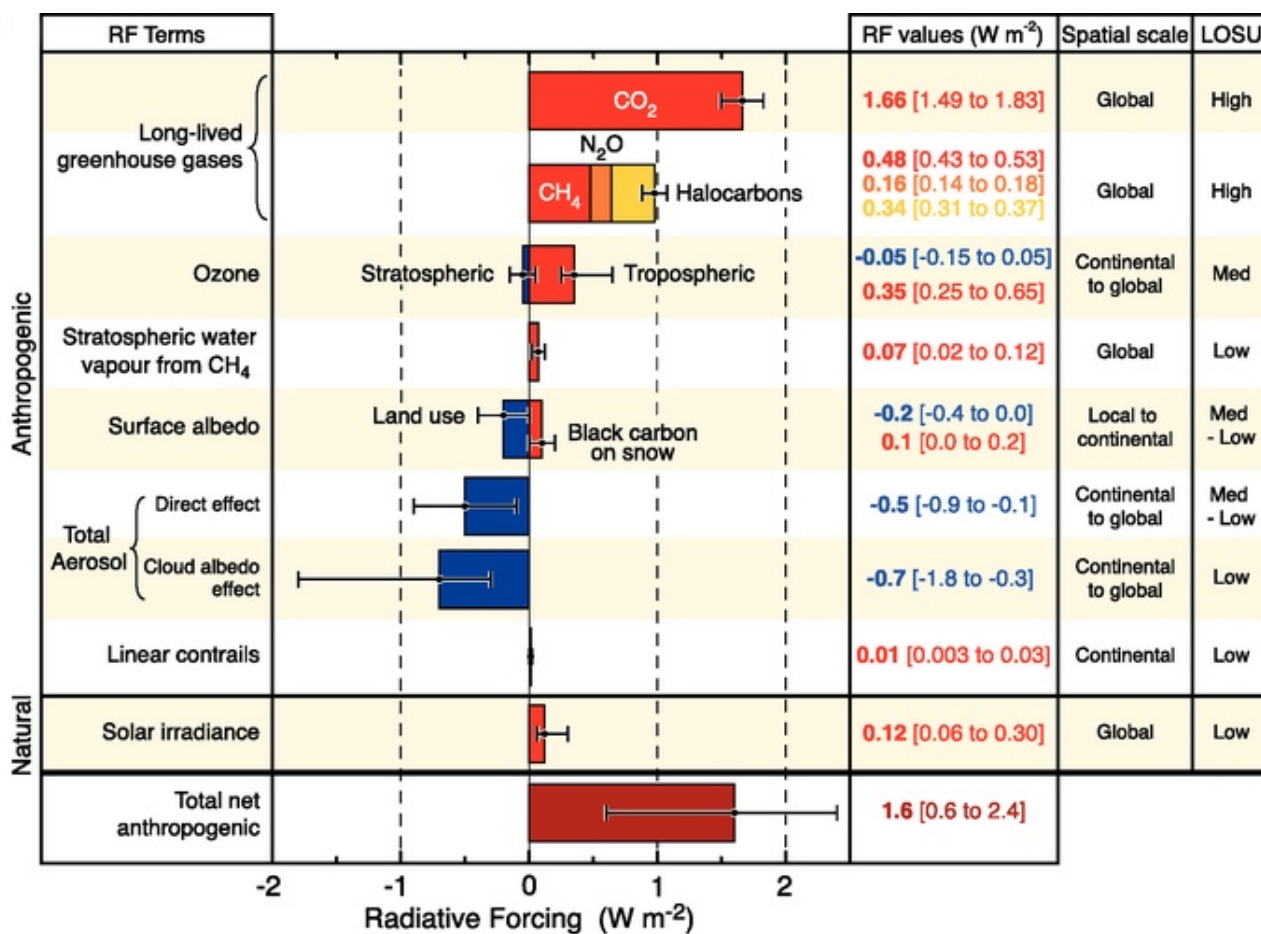


Figure 1.3 様々な放射性物質やメカニズムによる 2005 年の全球平均放射強制力 (RF) と 90%信頼区間。右側の列は最良推定値と信頼区間、強制力の典型的な地理的範囲 (空間スケール) 科学的信頼度を示す科学的理解度 (LOSU) を示している (IPCC AR4(2007))

1.1.3 大気汚染の環境基準と歴史

大気汚染物質には様々なものがあり、人の健康に影響を及ぼす代表的な大気汚染物質に関して環境省から環境基準を定められている。具体的には、1979 年に一酸化炭素、1972 年に浮遊粒子状物質、1973 年に二酸化窒素(NO_2)、光化学オキシダント、二酸化硫黄(SO_2 、硫黄酸化物に係る環境基準は廃止)、2009 年に $\text{PM}_{2.5}$ に対する大気環境基準が設定された。それらの濃度が環境中で環境基準値を超過しないように、全国各地に設置された測定局により、常に監視されている。これらの環境基準は環境基本法により、人の健康を保護し、生活環境を保全する上で、維持されることが望ましい基準として、以下のよう

国内で光化学オキシダントが高濃度となる、いわゆる光化学スモッグが最初に認知されたのは、1970年のことであり、それから半世紀過ぎた現在でも、この問題は未だに解決されていない。令和元年度の光化学オキシダントの測定局数は、1,166局(一般局:1,136局、自排局:30局)であった。このうち、環境基準達成局は、一般局で2局(0.2%)、自排局で局(0%)であり、他の大気汚染物質と比べ、依然としてかなり低い水準となっている(Table1.2)。この原因には、Oxの濃度が上で述べた前駆物質であるNOx、VOCの排出量に対して、非線形的に変化することが関係している。Oxの特性等については、第二章で詳しく述べる。昼間(5時~20時)の日最高1時間値の年平均値については、近年、一般局、自排局ともにほぼ横ばいに推移している(Figure1.3)。

光化学オキシダント濃度の長期的な改善傾向を評価するための指標(8時間値の日最高値の年間99パーセンタイル値の3年平均値)を用いて、注意報発令レベルの超過割合が多い地域である関東地域、東海地域、阪神地域、福岡・山口地域における域内最高値の経年変化をみると、こちらも近年横ばいで推移している。(Figure 1.4)。

Figure 1.5に令和元年度の注意報レベル(0.12ppm以上)の濃度が出現した日数の分布を示す。光化学オキシダント濃度が注意報レベルの0.12ppm以上となった測定局は、主に大都市及び、その周辺部に位置していることがわかる。こちらも、先ほどと同様の原因で、都市域を中心にNOxの排出量が多いため、Oxの生成が促進されているのだと考えられる。またFigure 1.6に本研究の対象期間に含まれる平成17年度(2005年)の注意報レベル(0.12ppm以上)の濃度が出現した日数の分布を示す。こちらとFigure 1.5を見比べると、十数年たった現在でも、それほど分布や濃度は変動しておらず、未だ環境基準超過割合が多いことが見て取れる。Figure 1.7,1.8にNOxと非メタン炭化水素(NMHC)の年平均値の推移を示す。こちらの2種の物質については、近年緩やかではあるが減少傾向にあることがわかる。

Table 1.1 大気汚染物質の環境基準

物質	環境上の条件
二酸化硫黄(SO ₂)	1時間値の1日平均値が0.04ppm以下であり、かつ、1時間値が0.1ppm以下であること。
一酸化炭素(CO)	1時間値の1日平均値が10ppm以下であり、かつ、1時間値の8時間平均値が20ppm以下であること。
浮遊粒子状物質(SPM)	1時間値の1日平均値が0.10mg/m ³ 以下であり、かつ、1時間値が0.20mg/m ³ 以下であること。
二酸化窒素(NO ₂)	1時間値の1日平均値が0.04ppmから0.06ppmまでのゾーン内又はそれ以下であること。
光化学オキシダント(Ox)	1時間値が0.06ppm以下であること。
微小粒子状物質(PM2.5)	1年平均値が15μg/m ³ 以下であり、かつ、1日平均値が35μg/m ³ 以下であること。

Table 1.2 環境基準達成率[%] ((環境省, 2020)をもとに作成)

		H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29	H30	R01
SO ₂	一般局	99.8	99.8	99.6	99.7	99.6	99.7	99.7	99.6	99.9	100	99.8	99.9	99.8
	自排局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
CO ₂	一般局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	自排局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
SPM	一般局	89.5	99.6	98.8	93.0	69.2	99.7	97.3	99.7	99.6	100	99.8	99.8	100
	自排局	88.6	99.3	99.5	93.0	72.9	99.7	94.7	100	99.7	100	100	100	100
NO ₂	一般局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	自排局	94.4	95.5	95.7	97.8	99.5	99.3	99.0	99.5	99.8	99.7	99.7	99.7	100
Ox	一般局	0.1	0.1	0.1	0	0.5	0.3	0.3	0	0	0.1	0	0.1	0.2
	自排局	3.3	0	0	0	0	0	0	3.6	0	0	0	0	0
PM2.5	一般局				32.4	27.6	43.3	16.1	377.8	74.5	88.7	89.9	93.5	98.7
	自排局				8.3	29.4	33.3	13.3	25.8	58.4	88.3	86.2	93.1	98.3

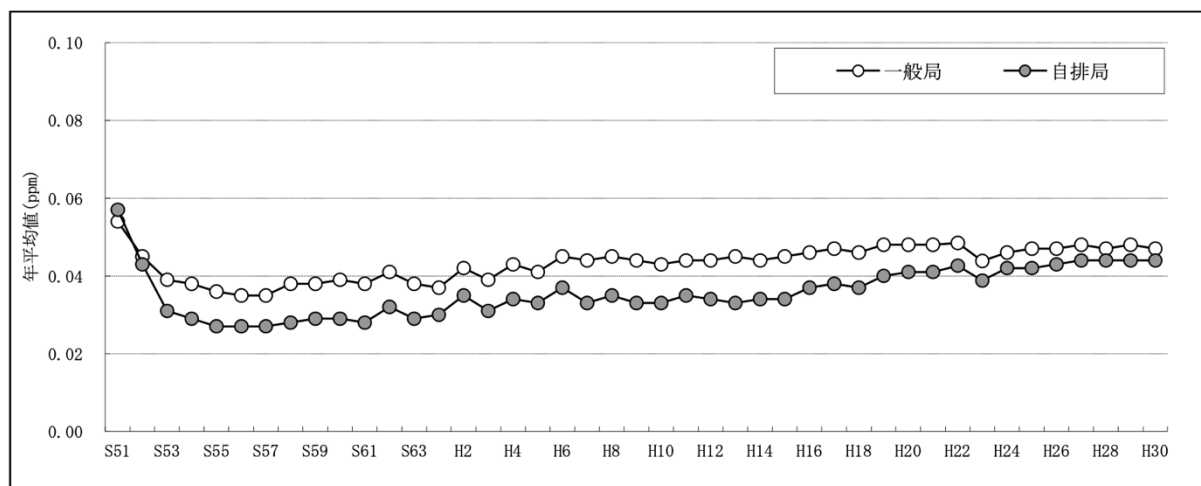


Figure 1.3 光化学オキシダント(昼間の日最高1時間値)の年平均値の推移(環境省, 2020)

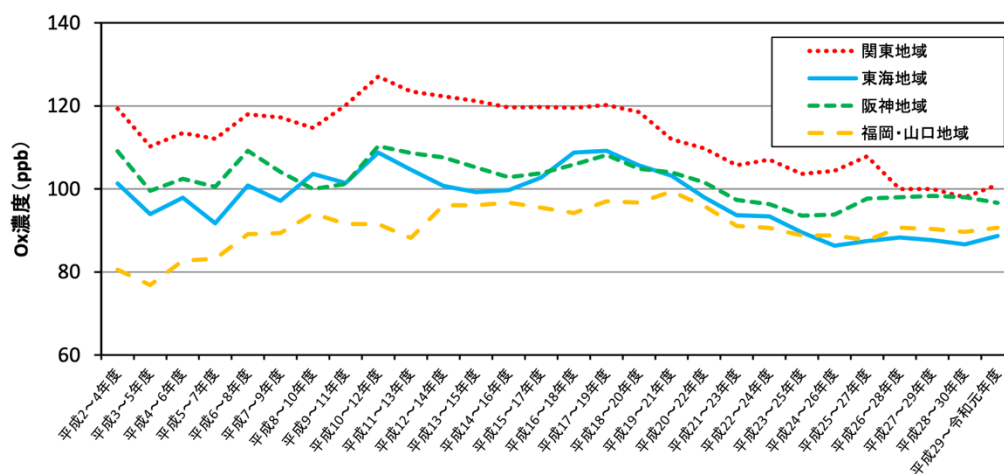


Figure 1.4 光化学オキシダント濃度の長期的な改善傾向を評価するための指標
(8 時間値の日最高値の年間 99 パーセンタイル値の 3 年平均値)を用いた域内最高値の経年変化
(環境省, 2020)

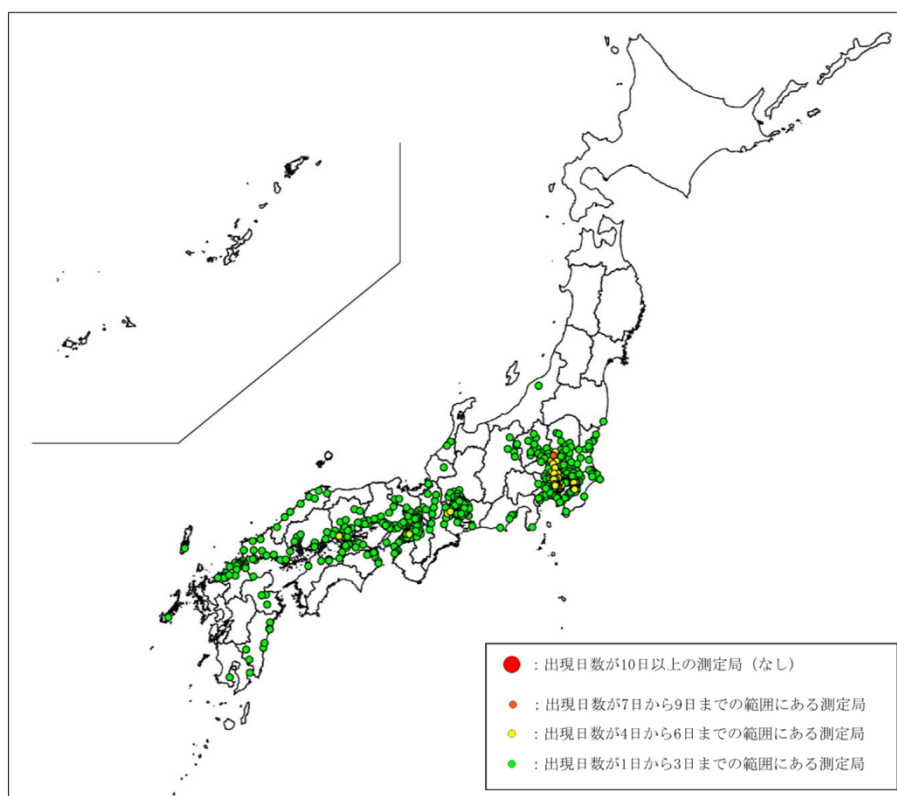


Figure 1.5 令和元年度の注意報レベル(0.12ppm 以上)の濃度が出現した日数の分布(一般局)
(環境省, 2020)

- ：出現日数が10日以上の測定局
- ：出現日数が1日から9日までの範囲にある測定局



Figure 1.6 平成17年度(2005)の注意報レベル(0.12ppm以上)の濃度が出現した日数の分布
(環境省, 2005)

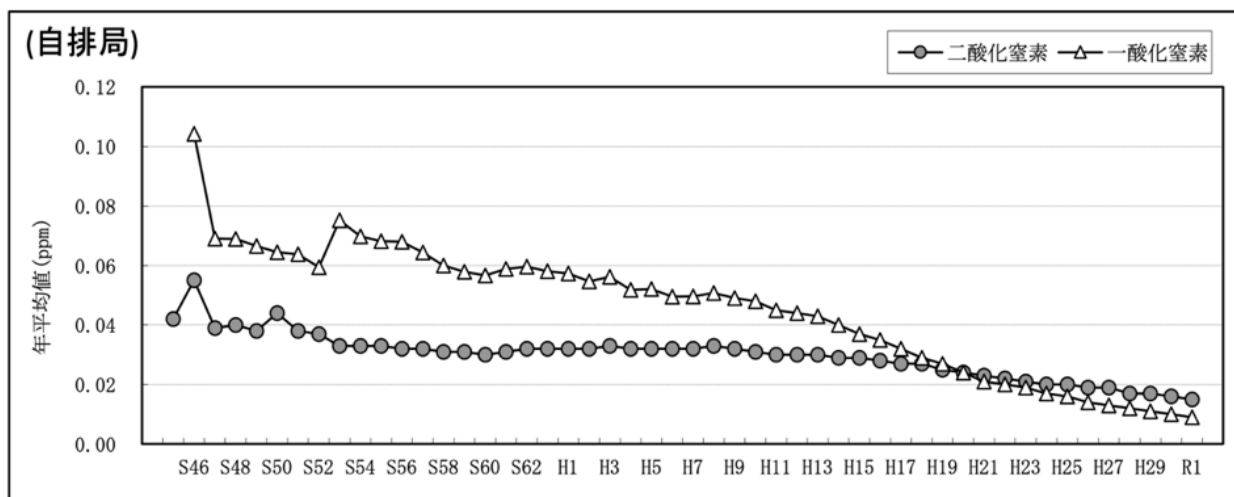
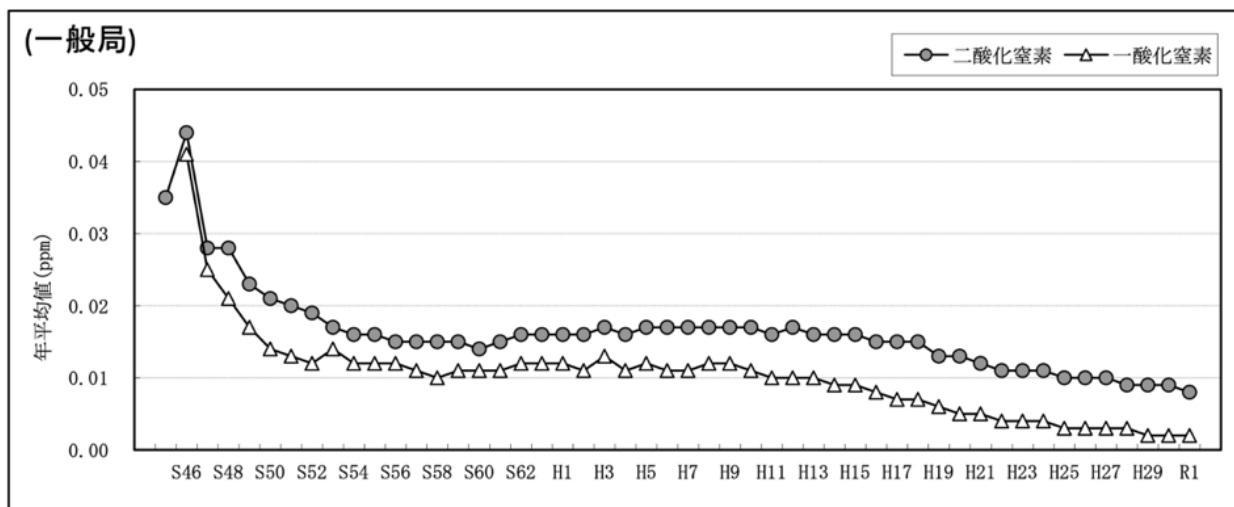


Figure 1.7 二酸化窒素及び一酸化窒素濃度の年平均值の推移(環境省, 2020)

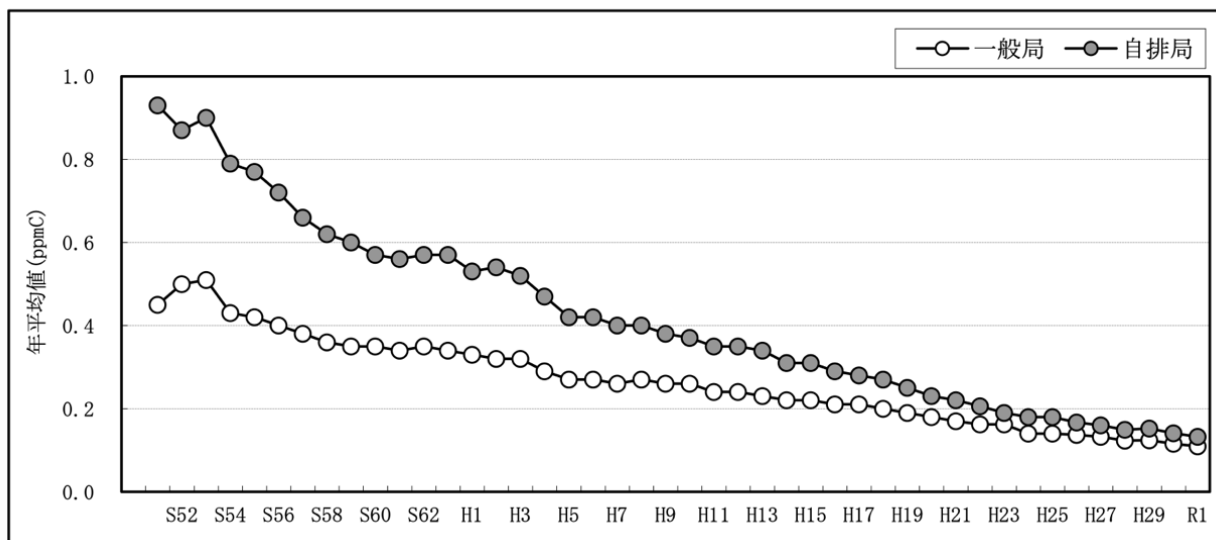


Figure 1.8 非メタン炭化水素濃度の午前6時~9時における3時間平均値の年平均値の推移
(環境省, 2020)

1.1.4 温暖化と大気環境およびその対策

人類の発展に伴い、大気・海洋汚染や地球温暖化などの環境問題が顕在化していることは広く知られている。特に地球温暖化に関しては、IPCC(The Intergovernmental Panel on Climate Change: 気候変動に関する政府間パネル)が2021年8月に発表した第6次評価報告書(AR6)において、その重大性に触れられている。報告書によると、世界の平均気温はAR6で考慮した全ての排出シナリオ(Table1.3)において、少なくとも今世紀半ばまでは上昇を続け、向こう数十年の間に二酸化炭素およびその他の温室効果ガスの排出が増え続けた場合、2100年には4°Cを超え、大幅に減少したとしない限り、21世紀中に、地球温暖化による気温上昇は1.5°C及び2°Cを超えると予測された(Figure 1.9)。

加えて、前回2013年の第5次評価報告書(AR5)では、温暖化の要因は人間活動であった可能性は95%以上とされ、余地が残されていたものの、今回のAR6では人間の影響が大気、海洋及び陸域を温暖化させてきたことには疑う余地がない、と断言された。人為起源の気候変動は、世界中の全ての地域で、多くの気象および気候の極端現象(熱波、大雨、干ばつなど(Figure 1.10))に既に影響を及ぼしている。これらの頻度と強度は、地球温暖化が0.5°C進むごとににより促進されていくと予測され、地球温暖化の進行を抑えなければ、極端な高温の常態化、豪雨の頻発による災害の増加などを現実的な脅威として直面しなければならない。

また、このまま地球温暖化が進行することによって、大気環境も激変すると言われており、こちらも注目すべき重大な問題の一つである。気候変動が O₃ 濃度に与える影響として、2006 年に EPA (Environmental Protection Agency: アメリカ合衆国環境保護庁)は、将来気温が上昇すると Table1.4 の 7 つの要因から O₃ 濃度は増加する、という考察を発表している。日本エアロゾル学会から令和元年に出版されたエアロゾル研究 Vol.34 NO.2 では「猛暑と大気汚染」という特集が組まれ、気温の上昇や気候変動が大気質に与える影響について、世界的に注目が集まり議論が行われていることがわかる。

2015 年 12 月に開催された第 21 回気候変動枠組条約締約国会議(COP21)では、気候変動抑制に関する多国間の国際的な合意である“パリ協定”が採択された。産業革命前からの世界の平均気温上昇を「2°C 未満」に抑えることがその内容で、今世紀後半に人間活動による温室効果ガスの排出量と生態系の吸収量の均衡を達成することが求められる。さらに 1.5°C への言及がなされ、低炭素から脱炭素への変革を示した形となった。

同年の 9 月には、国連において“持続可能な開発目標”(SDGs: Sustainable Development Goals)を含む「我々の世界を変革する: 持続可能な開発のための 2030 アジェンダ(Transforming our world: the 2030 Agenda for Sustainable Development)」が採択された。Figure1.11 のような、2016 年から 2030 年までの 17 の国際目標が記載されており、その中で、あらゆる年齢のすべての人々の健康的な生活を確保し福祉を推進する(目標 3)と気候変動およびその影響を軽減するために緊急対策を講じる(目標 13)ことが謳われ、それぞれの下で、汚染物質による死亡および疾病の件数の大幅減少と、気候関連災害や自然災害に対する強靱性および適応力の強化がターゲットの一つとして位置づけられている。

こういった状況を鑑みて、日本国内では気候変動適応法が 2018 年 12 月より施行された。近年の地球温暖化によって、気温の上昇や大雨の頻度の増加、熱中症リスクの増大、動植物の分布域の変化などの気候変動が確認されている。それらのような、現在既に生じている・将来予測される被害の防止・軽減等を図る気候変動への適応に推進するための法律である。この法により、今まで各地方自治体や団体などが行っていた適応策を法的に位置付け、一帯となって取り組む体制が構築された。

加えて、気候変動適応法と同様に、地球温暖化を防止するために 1998 年に制定された法律である地球温暖化対策法は、京都議定書の内容に基づき改正が重ねられ、令和 3 年に 7 回目の改正がなされた。今回の改正では、地球温暖化対策のさらなる推進に向けた今後の方向性として、2050 年でのカーボンニュートラル宣言が基本理念として、法に明確に位置付けられた。このような長期的な方向性が法律上に明記されたことで、国の政策の継続性・予見可能性が高まるとともに、自治体や事業者もより確信をもって、地球温暖化への緩和策を加速できるようになった。

この二つの法律を背景として、適応策・緩和策を両輪とし、国立環境研究所を中心に、国、地方公共団体、事業者、国民などの関係者が一丸となってこういった活動を強力に推進できるようになった。

世界でも上の例のような、国内での法律・取り組みが積極的に進められている。フランスでは 2009 年に制定された環境グルネル法、イギリスでは 2008 年に気候変動法、ドイツでは 2019 年に機構保護法、2020 年に国家水素戦略が制定された。アメリカは 2021 年 2 月に、脱退していたパリ協定に正式復帰

し、同年9月に中国とともに、排出量削減を目的とする気候変動対策で協力していく共同声明を発表した。今後は全世界でよりいっそう気候変動への適応策・緩和策の推進が積極的に進められていくと予測される。

こういったSDGsやパリ協定等の国際的な政策要求に対応することも含め、政府や自治体など産学官民間問わず、協力して適応策・緩和策を考えていく必要がある。

Table 1.3 5つのシナリオで考慮されている温室効果ガスの排出量 (IPCC AR6(2021))

SSP1-1.9	CO ₂ 排出量が現時点から減少に向かい、今世紀半ばに排出量がゼロとなるシナリオ
SSP1-2.6	CO ₂ 排出量が現時点から減少に向かい、今世紀半ばに排出量がゼロとなるシナリオ
SSP2-4.5	SSP2-4.5：CO ₂ 排出量が今世紀半ばまで現在の水準で推移し、その後減少するシナリオ
SSP3-7.0	SSP3-7.0：CO ₂ 排出量が2100年までに現在の2倍になるシナリオ
SSP5-8.5	SSP5-8.5：CO ₂ 排出量が2050年までに現在の2倍になるシナリオ

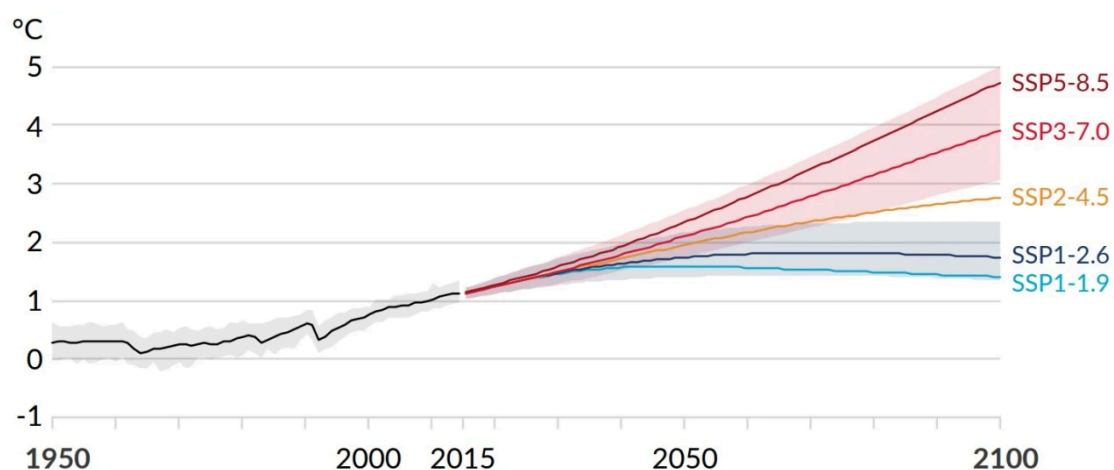


Figure 1.9 5つのシナリオごとの世界平均気温の変化 (IPCC AR6(2021))

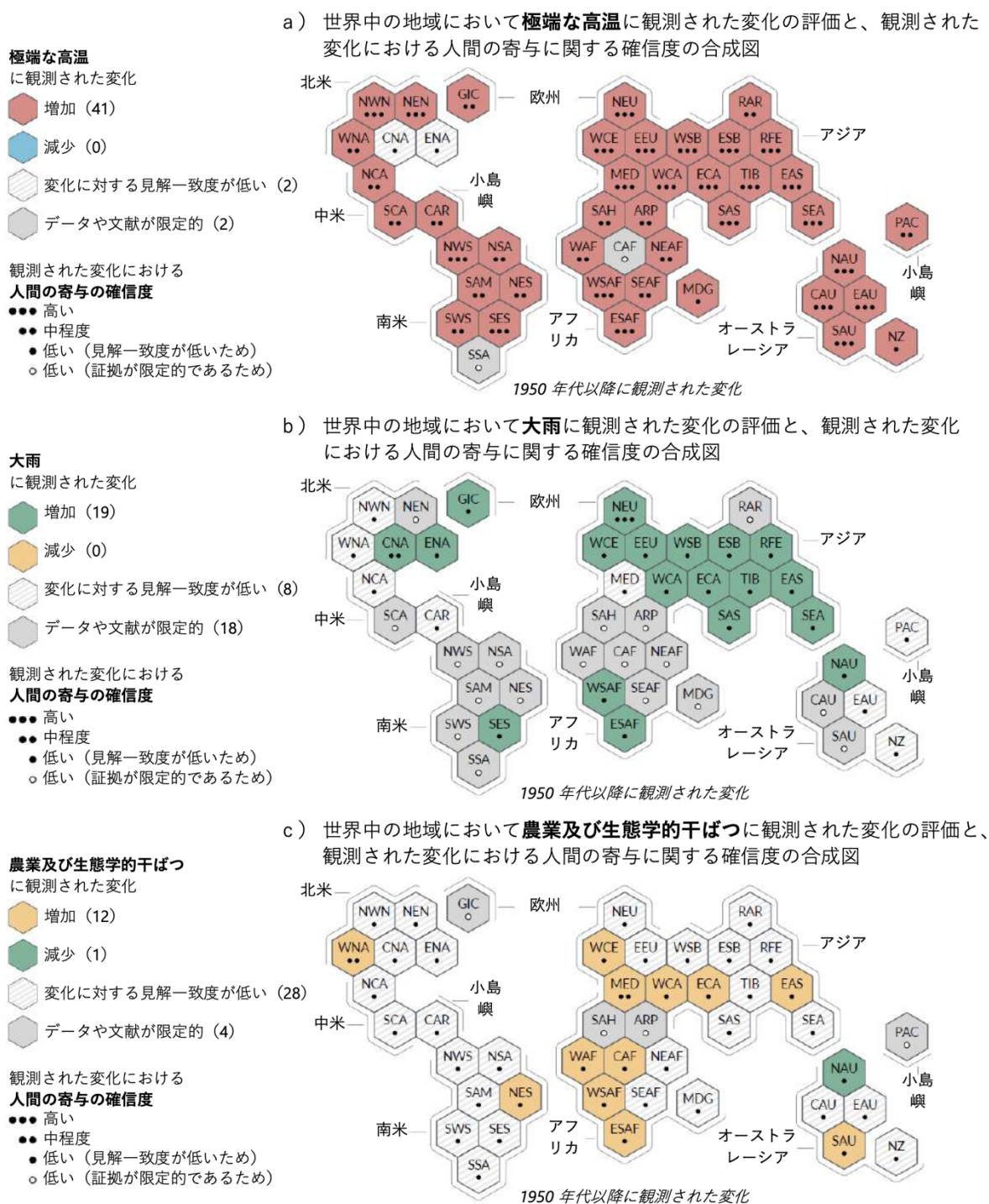


Figure 1.10 観測及び要因特定された地域的な変化の評価の合成図 ((IPCC AR6(2021))

Table 1.4 O₃濃度を増加させる物として考えられる要因 (EPA(2006))

O ₃ 濃度を増加させる物として考えられる要因
① 高温時の気象条件下で光乖離が促進されるため
② 高温時に水蒸気量が増加し、OH ラジカルの生成が促進されるため
③ 高温時に PANs の熱分解が促進され、NO _x が放出されるため
④ 高温時に人為起源の炭化水素や NO _x の排出が増加するため
⑤ 高温時に BVOC の放出が増加するため
⑥ 高温時の空気の循環の変化
⑦ 高濃度 O ₃ を含んだ空気塊の移流



Figure 1,11 SDGs(持続可能な開発目標)における 17 の目標 (外務省)

1.2 本研究に関する先行研究

1.1.4 節で、現在大気質に対する地球温暖化などの気候変動の影響について関心が集まっていることを述べたが、大気質は気象による影響を強く受けることが知られている。先行研究によると、降雨による汚染気塊に対する洗浄効果(Ohizumi, 2009)や、太陽からの紫外線による光化学反応で生じる前駆物質の酸化変化(Jacob, 1999)、大陸からの汚染気塊の輸送の影響が報告されている。国内では、夏には特に海と陸の昇温の差によって発生する海陸風によって、首都圏の湾岸域で放出された NO_x と VOC が、内陸部に輸送されながら高化学反応を起こすことで、 O_3 の濃度が上昇し、強い大気汚染が発生することが知られている(Yoshikado, 2018)。一方都市域では、NO タイトレーションと呼ばれる、光化学オキシダントを減少させる効果が働くことも知られている(環境省, 2014)。また、Yonemochi (2018)によると、2018年に埼玉県で発令された光化学スモッグ注意報10日間のうち、休日が7日間であったことがわかっている。これは、前駆物質である NO_x , VOC のうち、 NO_x を排出する自動車からの排出量が、平日より減少することで、NO タイトレーション効果が抑制され、 O_3 が蓄積しやすくなる、いわゆる週末効果が働いたのだと考えられている。

続いて、気候変動が O_3 に与える影響について既往の先行研究を参照する。Stevenson et al., (2013)は、複数の全球スケールの化学輸送モデルの相互比較実験 ACCMIP において、全球平均気温が 4K 上昇の環境で計算を行ったところ、気温上昇に伴った水蒸気量の増加によって NO_x の少ない清浄域では O_3 濃度が減少することがわかった。Doherty et al., (2013)では、将来温暖化が進んだ地球の気候状態を全球スケールの化学輸送モデルに与えて、 O_3 への影響について調べた。すると、 O_3 の全球的な分布は、先ほど同様の水蒸気量増加による地表 O_3 の減少と、 O_3 前駆物質の排出領域を中心とした気温増加に伴う PAN の分解促進、自然由来の VOC であるイソプレンの放出量増加、この3つの影響バランスで説明できると結論づけた。

このように、大気汚染の増減は、様々なメカニズムや要因が絡まり合って決定されるものであるが、実大気観測の面から、気温が上昇することで、 O_3 濃度も同様に上昇することがいくつか報告されている。アメリカの EPA は 2006 年に、メリーランド州において、1994-2004 までの O_3 の日内 8 時間最高値と日最高気温を比べたところ、相関係数 $r=0.74$ の正の相関が得られたと報告している。国内の研究でも、25-30°Cを超えると、 O_x の高濃度出現率と気温の間に正の相関が見られる(Ueno and Tsunematsu, 2018)ことや、33°Cを超えるとその正の相関が顕著になる(Yoshikado, 2021)ことなどが報告されている。このような気温が増加したことによる地表 O_3 濃度の増加は、将来地球温暖化が進んだ場合でも、上で述べたような基準値などを達成するために、温暖化が進まなかった場合に比べ、追加のコントロールが必要になってくることを表しており、このことを気候罰則(Climate Penalty)と呼ぶ(Wu et al., 2008)。この気候罰則の大きさは、気温と O_3 双方の指標値の散布図における線形回帰の傾き($\Delta\text{O}_3/\Delta T(\text{ppbv/K})$)で評価され、CPF(Climate Penalty Factor: 気候罰則係数)と呼ばれている(Bloomer, 2009)。

これらの正の相関についての原因となる決定的な要素についてはまだ多くの議論を呼んでいる。しかし、対流圏 O_3 の生成に重要な化学反応(VOCs の酸化、 HO_x サイクルの進行)の速度は、気温が上昇し

でも促進されないことがわかっており、気温増加自体が原因なのではなく、それに伴った様々な物理的、複合的に関わっていることが原因だと考えられている(Sadanaga, 2019)(Kirtman, 2013)。

現在までに、このような将来の変化した地球環境における大気質変動を評価したような研究というものはいくつかあるものの(Jacob and Winner, 2009)、アジア域を対象とした研究というものは十分になされているとは言い難い。また、数値モデルを使用した将来計算を行った研究もいくつか存在しているが、気候変動が大気質に影響を与える経路は様々で、正味の大きさと符号はそれらのバランスによって決定される。こういった途中の経路の表し方やバランスは数値モデルによって異なっているため、同じ場所でも年代や季節によって結果が異なってしまう不確実性を未だに包含している。

このような認識に基づき、誤差の拡大を事前に把握するために、「アンサンブル予報実験」という手法が開発された。この手法は、ある時刻に少しずつ異なる初期値を多数用意し、それら複数の予報を集合として扱うことで、予報の平均やばらつきなどに関する情報を得ることができる。一番の運用目的としては、アンサンブルによって表現される数値予報の不確実性を定量的に求めることにあり、この情報の活用により、予報精度の向上はもちろん、予報の利用価値を高めることが可能になる。初めに実用的なアンサンブル予報が行ったのは、1992年のアメリカの国立環境予測センター(NCEP)とヨーロッパ中期予報センター(ECMWF)で、複数の初期値を用意した計算が行われた。日本においても、台風情報や天気予報、異常天候早期警戒情報など、これらの予報に関する確率などの情報の多くも、複数アンサンブル予報システム(EPS: Ensemble Prediction System)が用いられている。また、このアンサンブル手法を気候変動影響評価に応用するため、2015年には文科省・気候変動リスク情報創生プログラムによって、高解像度全球大気モデルおよび高解像度領域大気モデルを使用し、多数のアンサンブル実験を行う「地球温暖化対策に資するアンサンブル気候予測データベース(d4PDF)」が作成された。

1.3 本研究の目的と論文構成

前節まで述べたように、光化学オキシダントを始めとする大気汚染物質は、気候変動や人体への健康被害として多大な影響を与えており、気温の上昇局面に入った地球環境において、正しい適応策・緩和策を計画するためには、正確に将来の変化を予測・理解することが重要になってくる。

地球温暖化により気温が上昇することで、光化学オキシダント濃度も同様に増加していることは確認されているものの、アジアや日本に関する CPF の将来変化・原因考察に関する研究はまだ数が多くない。加えて、気候変動の将来予測に関する計算や研究は、昔からいくつか行われているものの、不確実性を正しく考慮して、その影響・評価を試みるような研究事例も未だに数少ないことが知られている。

そこで本研究では、将来の適応策や緩和策などのリスクマネジメントに向けて、気候変動が与える東アジアの大気汚染物質への影響について解析することを目的とする。d4PDF を境界条件に作成された大気質版アンサンブル気候予測データベース（d4PDF-Chem）を用い、変化した気候が O_3 濃度に与える影響、どの原因がどれくらい O_3 濃度に影響を与えているかの定量化を目指す。

本論文の構成について以下に示す。第 2 章では、本研究で使用した数値モデル、観測データ及び大気エアロゾルや大気汚染物質の特性について、その特徴や境界条件、パラメータ特性、発生源や化学反応過程について述べる。第 3 章では、観測データと比較した精度検証を行った後、本研究の目的である気候変動が O_3 濃度に与える影響を解析し、その結果について議論する。また入力データを変化させた感度実験を行い、それぞれの要因が O_3 濃度に与えた影響についての定量化、考察を行う。

第 4 章では、結果を総括し、本研究の結言とする。

第2章 研究手法

本章では、本研究で使用した数値モデル、観測データ及び大気エアロゾルや大気汚染物質の特性について、その特徴や境界条件、パラメータ特性、発生源や化学反応過程、メカニズムについて述べる。

2.1 使用する数値モデルについて

本研究では気候変動による O_3 濃度の変化を解析するために、大気環境版の地球温暖化対策に資するアンサンブル気候予測データベース(d4PDF-Chem)を用いた。d4PDF-Chem は地球温暖化対策に資するアンサンブル気候予測データベース(d4PDF)を境界条件に利用し、領域化学輸送モデルである NHM-Chem による計算によって作成された気候予測データベースである。ここでは、それぞれの項目について説明する。

2.1.1 アンサンブル気候予測データベース(d4PDF)

気候変動の影響についての評価を行う場合、多くは気候モデルのシミュレーションの結果が用いられている。気候システムは、大気のみならず海洋や植生などから様々な相互作用が働いているため、海洋と大気の循環の変動を結合して計算を行う大気海洋結合気候モデル(AOGCM: coupled Atmosphere-Ocean General Circulation Model)が世界中の多くの機関で開発されている。しかし日本列島には、山地が多く南北方向に長い地形という特徴があるため、それぞれの地域により、降水量、気温、風速などに大きい違いが見られ、局地的に高温などの極端現象が発生するため、解像度が大きい AOGCM では十分に評価を行うことができない。そこで気象庁の気象研究所は、世界の研究機関の様々な AOGCM で計算される海面水温(SST)を境界条件として大気環境を計算する、解像度 60km と 20km の高分解能の大気大循環モデル(AGCM: Atmospheric Global Climate Model)が開発され、より細かいスケールでのシミュレーションを行うことができるようになった。だが観測値と比べ、未だに誤差は多いことが確認されている。

将来予測や数値予報の結果の誤差の原因は主に二つあり、①予測モデルの不完全さにより現実大気を再現できていないこと、②現実大気のもつカオス(混沌)的性質により初期値に含まれる誤差が増大すること、があげられる。数値モデル計算では、“バタフライ効果”として知られる大気の「初期値の小さな差が将来大きく増大する」という性質のため、初期値に必然的に含まれる僅かな誤差は時間とともに成長してしまい、最終的に全く違った結果になることから、数値予報の誤差を完全になくすことは避けることができない。そのため①の誤差要因については、日々モデルの改良・改善が進み、徐々に少なくなっているものの、それに伴い予報誤差の変動は、②の初期値誤差の増大に関連するとみなしうようになってきた。

そういった背景から、日本の文科省・気候変動リスク情報創生プログラムでは、AGCM を使用し、不確実性の多い極端現象や将来変化の再現について、確率的に、かつ高精度に評価することを目的とした、

多数のアンサンブル実験を行う「地球温暖化対策に資するアンサンブル気候予測データベース(d4PDF)」が作成された。これによって、大気環境の将来変化や、その不確実性、将来想定される最も厳しいシナリオに基づく災害に対する規模の評価などを行うことができるようになった。d4PDF は、水平解像度約 60km の気象研究所全球大気モデル MRI-AGCM3.2 (Mizuta et al., 2012)を用いた全球実験と、水平解像度約 20km で日本域をカバーする気象研究所領域気候モデル NHRCM (Sasaki et al., 2011, Murata et al., 2013)を用いた領域実験によって構成される(Figure 2.1)。

ここからは、d4PDF で行われた、「過去実験」「4℃上昇将来実験」「非温暖化実験」の3種類のアンサンブル実験の設定概要について説明する。3種類それぞれの実験で、海面水温 (SST)、海氷密接度 (SIC)、海氷厚 (SIT) を下部境界条件とし、温室効果ガス (CO₂、CH₄、N₂O、CFC)、O₃、エアロゾルの濃度を外部強制条件として設定することとしている。詳しい各気候実験での設定を Table2.1 に示す。

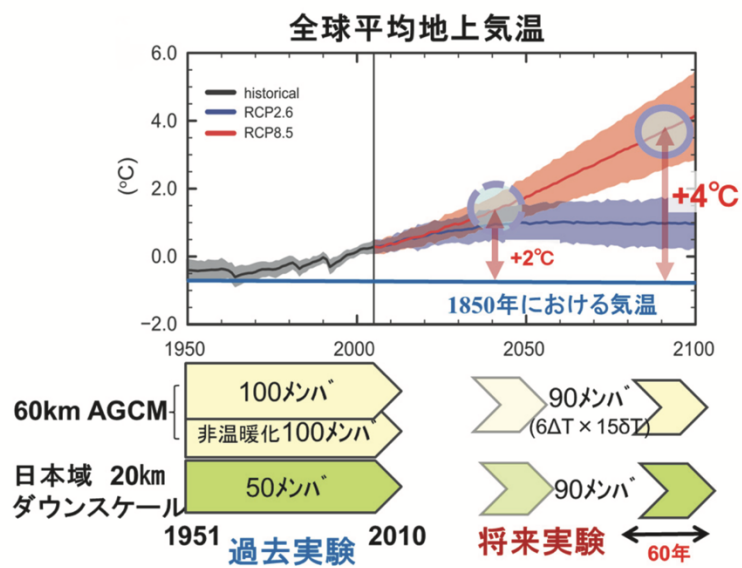
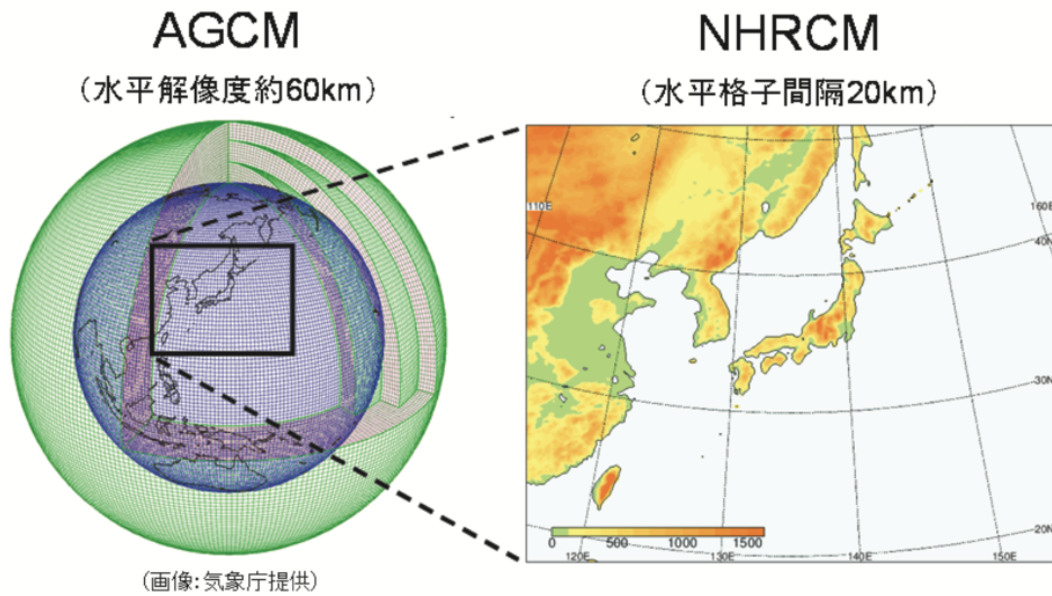


Figure 2.1 実験デザインの概略
(d4PDF 利用手引き参照)

Table 2.1 それぞれの気候実験における設定
(d4PDF 利用手引き参照)

		過去実験	将来実験 (+4K 上昇)	非温暖化実験
気候実験期間		1951~2010 (60 年間)	2051~2110 (60 年間)	1951~2010 (60 年間)
アンサンブル メンバー数	AGCM	100	90	100
	NHRCM	50	90	N/A
下部境界条件	SST	観測値： COBE-SST2 (Hirahara et al., 2014)	観測値 SST+気候 的海面水温上昇パ ターン(Δ SSTs)	長期的なトレンド を除去した観測値
	SIC	観測値： COBE-SST2 (Hirahara et al., 2014)	将来 SST と一致す るように調整した もの	SST と一致するよ うに調整したもの
	SIT	気候値：(Bourke and Garrett 1987) を元に、SIC に整 合するもの	将来 SST と一致す るように調整した もの	SST と一致するよ うに調整したもの
外部強制力	温室効果ガス	観測値	RCP8.5 シナリオ 2090 年時点の値	1850 年時点の値
	オゾン	MRI-CCM： (Deushi and Shibata 2011)	MRI- CCM の 2090 年時点の出力 値	MRI- CCM の 1961 年時点の出力 値
	エアロゾル	MRI-CGCM3： (Yukimoto et al., 2012)	MRI- CGCM の 2090 年時点の出力 値	硫酸,BC,OC は産 業革命前、土壌、海 塩は過去実験と同 じ

1951 年から 2010 年までの過去実験は、下部境界条件とそれらの初期条件に摂動を与えた 100 のアンサンブルメンバーでシミュレーションを行った。下部境界条件は、観測された SST と SIC (COBE-SST2; Hirahara et al., 2014) および気候学的月平均 SIT (Bourke and Garrett, 1987) を使用した。また、COBE-SST2 に SST 解析の推定誤差に基づく小さな SST の摂動(δ SST)を加え、異なる初期条件を作成した。温室効果ガス濃度は、各実験年の全球平均の観測値に設定した。O₃については気象庁の化学-気候モデル (Deushi and Shibata, 2011)、エアロゾルは MRI-CGCM の地球気候結合モデル (Yukimoto et al., 2012) の 3 次元分布を使用した。

2051 年から 2110 年までの 4°C 上昇将来実験では、全球平均地上気温が産業革命前より 4K 高くなると仮定し、90 のアンサンブルメンバーで実施した。温暖化の振幅については、CMIP5 の代表濃度経路 8.5 (RCP 8.5) シナリオにおける 21 世紀末の温暖化に対応し、実験期間中一定に保たれるようにした。このようにすることで、同じ温暖化指定環境下での大きなサンプルを得ることができる。境界条件については、長期トレンド成分を除去した観測 SST に気候的海面水温上昇パターン(Δ SSTs)を追加した。この将来の海面水温変化パターンは Figure 2.2 に示すように、CMIP5 の RCP8.5 実験の主要 6 モデル (Table 2.2) の 2070 年から 2099 年の平均的水温変化量として定義した。6 モデルは海面水温変化パターンのクラスター分析 (Mizuta et al., 2014) をもとに、パターンが互いに似ていないモデルを主要なモデルから選定した。気象研大気モデルにこれらの海面水温変化パターンを与えたとき全球平均地上気温が +4°C に近い応答となるように、海面水温変化パターンに CMIP モデル依存のスケーリングファクターを乗じる (Shiogama et al., 2010) (Table 2.2)。これに過去実験で使用した海面水温摂動のうち、任意の 15 個を選び使用した。摂動は 6 モデルの変化パターンを変えた各実験間で同じものを使用した。調整された SIC と SIT は、将来気候条件における SST と一致するように設定された。また、アンサンブルメンバーごとに異なる初期条件を作るために、現在気候実験の δ SST のうち、任意の 15 個を選択し、6 つのモデルの Δ SSTs とそれぞれ組み合わせることで、90 のアンサンブル実験を行った。温室効果ガスは RCP8.5 シナリオの 2090 年における値を割り当てた。O₃ とエアロゾルの分布は、過去のシミュレーションで使ったのと同じモデルを用いた拡張実験で、2088 年から 2092 年の平均値を選択した。

1951 年から 2010 年までの非温暖化実験は、産業革命以前の気候から地球温暖化が起こっていないと仮定して、トレンドを除去した観測 SST に、過去実験と同じ摂動を与え、100 のアンサンブルメンバーで実施された。この実験と過去の気候実験を比較することで、過去の外部強制要因による気候変動の傾向を議論することが可能になる。この実験では、長期トレンドを除去した境界条件を与え、アンサンブルメンバーの境界値と初期摂動は過去実験のものと同じにした。外部強制力については、1850 年の温室効果ガスの値を適用した。O₃ は過去のシミュレーションの 1960 年から 1962 年の平均値に固定した。エアロゾルは、産業革命以前の硫酸塩、黒色炭素、有機炭素の排出量に設定している。

これらのさらに詳しい設定などについては、d4PDF 利用手引きを参照されたい (<https://www.miroc-gcm.jp/d4PDF/design.html>)。d4PDF-Chem では、d4PDF を境界条件に過去実験と 4°C 上昇将来実験を行なっている。

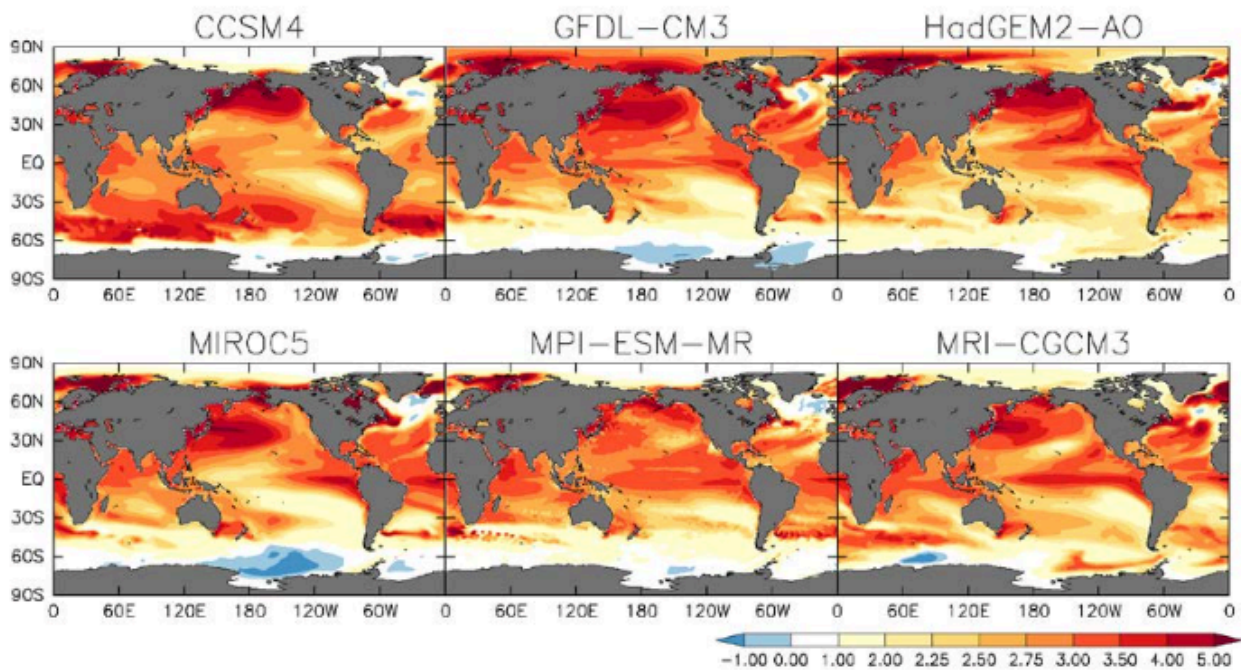


Figure 2.2 使用した CMIP5 結合モデルごとの、与えた海面水温変化パターン [K]。
すべての月、すべての年、すべてのメンバーを平均したもの。(d4PDF 利用手引きから引用)

Table 2.2 気候学的な海面水温の上昇パターンを得るために使用した CMIP5 モデルと
各モデルに対応するスケーリングファクター(d4PDF 利用手引きから引用)

Model(略称名)	Scaling Factor	Institution	Country
CCSM4(CC)	1.10981	National Center for Atmospheric Research	USA
GFDL-CM3(GF)	0.75166	NOAA Geophysical Fluid Dynamics Laboratory	USA
HadGEM2-AO(HA)	0.90222	Met Office Hadley Centre	UK
MIROC5(MI)	1.06162	AORI, NIES, JAMSTEC	Japan
MOI-ESM-MR(MP)	1.01852	Max Planck Institute for Meteorology	Germany
MRI-CGCM3(MR)	1.13509	Meteorological Research Institute	Japan

2.1.2 化学輸送モデル(NHM-Chem)

化学輸送モデルは大気中の微量気体および微小粒子状物質（エアロゾル）の挙動をシミュレーションする数値モデルである。大気中のエアロゾルは、その大きさ、組成、形態、混合状態などが非常に複雑であるため、世界中のモデルの中には様々なエアロゾル表現が存在する。気象庁により、それぞれの地域の気候、大気質、化学天気予報をシミュレーションするために、地域スケールの化学輸送モデル(NHM-Chem: Kajino et al., 2012a, 2012b)が開発された。この中のエアロゾルの表現方法として、物性の違いを考慮した5カテゴリー非平衡法、エアロゾルのサイズで分類した3カテゴリー非平衡法PM2.5, 黄砂, 海塩で分類するバルク平衡法、の3つのオプションを、地域気候、大気質、運用予報の3つのそれぞれの目的に合わせて組み込んでいる(Figure 2.3)。3カテゴリー法は、様々な地域規模の化学輸送モデルで広く使われている世界標準の手法であり (Grell et al., 2005; Byun and Schere, 2006 など)、5カテゴリー法とバルク平衡法は独自の手法である。

NHM-Chem の気象場のシミュレーションでは、気象庁で気象予報のために開発・使用される非静力学モデル(NHM)(Saito et al., 2006, 2007) を用いて、オフライン・オンラインで結合し計算されている。オフライン結合の枠組みでは、気象モデルの出力を化学モデルの入力に変換するインターフェースさえあれば、複数の気象モデルのアンサンブルを容易に実行することが可能である。現在、NHM-Chem には気象研究予測モデル (WRF; Skamarock et al., 2008) とのインターフェースが実装されており、気象庁の次世代非静力学モデル asuca (JMA, 2014) とのインターフェースも現在開発中である。

Table 2.3 に NHM-Chem で利用可能なモデル、スキーム、データベースの一覧を示す。この中で、自分の研究対象である光化学オキシダントに関わるスキームを抜粋して説明する。NHM-Chem の CTM 部分(または -Chem)は、Regional Air Quality Model 2 (RAQM2; Kajino et al., 2012a) を継承しており、以下の要素が含まれる：(人為起源の微量成分の排出、バイオマス燃焼、生物起源および自然起源(黄砂と海塩)エアロゾルの排出、移流と乱流拡散、光化学と新粒子の生成、無機および有機化合物のガスから粒子への変換、ブラウン凝固、CCN と IN の活性化と雲の微物理過程、hydrometeors および水中エアロゾルのグリッドスケール液相化学、サブグリッドスケールの対流と湿性沈着、ガスおよび粒子の乾性沈着)。オフライン結合の NHM-Chem では、CTM の水平格子は気象モデルと同じであるが、鉛直座標が異なるので、ユーザーは計算効率を上げるために鉛直層数やモデル頂上の高さを減らしたり、鉛直座標が異なる気象モデルを利用したりすることができる。鉛直補間による質量発散を 10^{-5} から $10^{-6} (\text{s}^{-1})$ 程度に抑えるために、オフライン結合された NHM-Chem の気象-化学モデルインターフェースに、質量連続モデル(Ishikawa, 1994) が組み込まれた。CTM と NHM の鉛直座標は同一であるため、オンライン結合の NHM-Chem では質量連続モデルは不要である。

移流、乱流拡散、光分解速度、気相化学、二次有機エアロゾル化学、液相化学の計算方法は、SAPRC99 気相化学メカニズム (Carter, 2000) に含まれる Jacob (2000) の N_2O_5 , HO_2 , NO_2 の3つの不均一化学反応を除いて、Kajino et al (2012a)と同じものである。3時間ごとのガスとエアロゾルの側方および上部境界濃度は、それぞれ MRI-CCM2 (Deushi and Shibata, 2011) と MASINGAR-mk2 (Tanaka and Ogi,

2017; Tanaka et al., 2018) のグローバルモデルのシミュレーション結果から取得した。NHM-Chem の非メタン揮発性有機化合物 (NMVOC) の集中メカニズムやエアロゾルの表現は 2 つの全球モデルとは異なるため、NO_x, O₃, CO のみ MRI-CCM2 から、BC, OC, SO₄²⁻, 黄砂, 海塩の総質量は MASINGAR-mk2 から取得した。境界濃度には OM/OC 比 1.8、SO₄²⁻は(NH₄)₂SO₄として 100%存在するものと仮定した。鉱物性ダストと海塩は外部混合として扱われ、BC、OM、(NH₄)₂SO₄は今回の 3 カテゴリー法では ACM にすべて含まれている。

NO_x, SO₂, NH₃, NMVOC, BC, POC, PM_{2.5}, PM₁₀ の人為起源の排出量については REASv3.2 (Kurokawa et al., 2020) を用い、毎月の変動を考慮することとした。NH₃については月次の変動はない。REASv3.2 では、燃料などの燃焼、産業プロセス、蒸発起源 NMVOC、農業起源 NH₃を主要発生源とし、国・領域別の排出量テーブルデータ、アジア全域の排出量グリッドデータが作成されている。排出量の時間別・鉛直プロファイルは提供されていないため、電力、工業、国内、運輸、航空、大規模点源という各セクターに対して Li et al., (2017)のものを適用した。バイオマス燃焼の排出量 (NO_x, SO₂, NMVOCs, BC, POC) には Global Fire Emissions Database (GFEDv4; van der Werf et al., 2017) を、生物起源の排出量 (イソプレネ、テルペン、メタノール、NO) には Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN2; Guenther et al., 2006) を使用した。GFEDv4 については、月平均値を時間変化なくそのまま適用した。MEGAN では全球を対象に、解像度 30 秒×30 秒(1 km×1 km) で月平均排出係数(EF, Emission Factor)、葉面積指数(LAI, Leaf Area Index)、植物機能タイプ(PFT, Plant Functional Type) のデータが提供されている。これらの EF、LAI、PFT に加え、WRF から得られる対象期間の気温と太陽放射の時間値を利用して植生起源の VOC の推計を行う。なお生物起源の排出量は最下層に割り当てられ、バイオマス燃焼の排出については、最下層から地上 1,000 m まで一律に割り当てられている。REASv3.2 は NMVOC の化学種の情報を提供しており、これを SAPRC99 の NMVOC 化学種に再分配している。GFEDv4 は NMVOC の化学種の情報を提供していないため、Woo et al., (2003)の情報を適用し、SAPRC99 の化学種に割り当てた。また本研究では、日本における火山性 SO₂ の 1 時間当たりの排出量を作成した。なお、火山性 SO₄²⁻は考慮せず、100%SO₂と仮定している。気象庁は日本の 6 つの主な火山の SO₂ 排出フラックスと煙高を定期的に観測している。観測データは時間的にまばらであり、観測頻度も対象火山や期間によって異なるため、Kajino et al., (2004) と同様に、時間的に三次スプライン補間を行い、1 時間単位のデータを求めた。

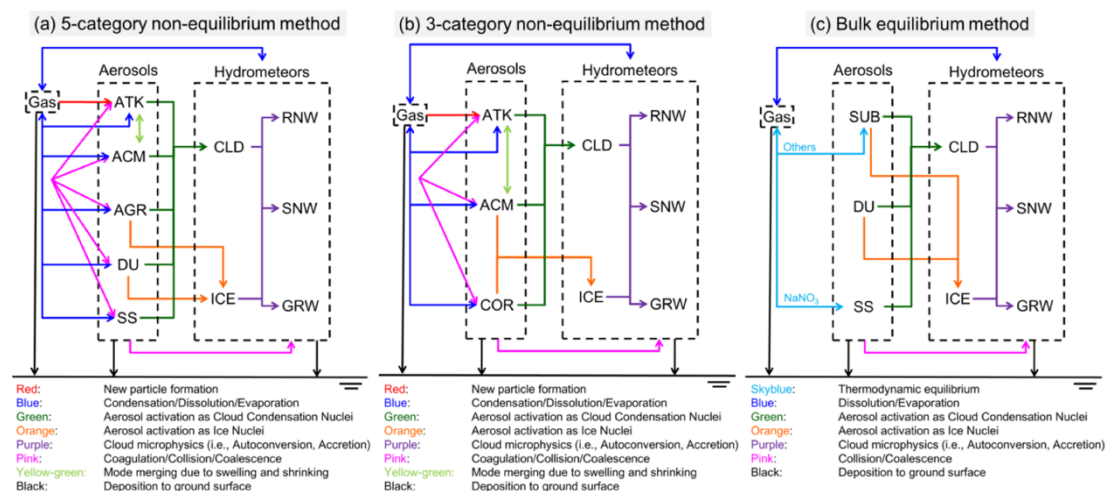


Figure 2.3 NHM-Chem で考慮されるガス及びエアロゾルの物理・化学素過程
 左から、5 カテゴリ非平衡法(領域気候予測向け)、3 カテゴリ非平衡法(大気質予測向け)、
 バルク平衡法(現業予報向け)(Kajino(2018)より引用)

Table2.3 NHM-Chem で利用可能なモデル、スキーム、データベースの一覧(2018 年時点)
 (Kajino(2018)より引用)

Scheme/data	Name/reference
Meteorological model ^a	Non-hydrostatic model (NHM; Saito et al., 2006, 2007)
Mascon model ^b	MCWCM (Ishikawa, 1994)
Boundary concentrations	Climatological value or 3-hourly field obtained from MRI-CCM2 (Deushi and Shibata, 2011) and MASINGAR-mk2 (Tanaka et al., 2018)
Emission	Anthropogenic (REASv2, Kurokawa et al., 2009, EAGrid, Kannari et al., 2007, Fukui et al., 2014), Biomass burning (GFED3, Giglio et al., 2010), Biogenic (MEGAN2, Guenther et al., 2006), Asian dust (Han et al., 2004), Sea-salt (Clarke et al., 2006)
Advection	MPMAA (Walcek and Aleksic, 1998)
Photolysis rate	Madronich (1987) with TOMS O ₃ column data
Gas chemistry	SAPRC99 (Carter, 2000) (72 species and 214 reactions) + Jacob (2000) heterogeneous reactions (3 reactions)
SOA chemistry	Edney et al. (2007)
Liquid chemistry	Walcek and Taylor (1986), Carlton et al. (2007)
New particle formation ^c	Kuang et al. (2008)
Aerosol microphysics ^c (condensation, evaporation, coagulation)	Kajino (2011), Kajino et al. (2012a)
Surface gas-aerosol equilibrium of inorganic compounds	ISORROPIA2 (Fountoukis and Nenes, 2007)
Dry deposition	Zhang et al. (2001, 2003), Katata et al. (2008, 2011), and Kajino et al. (2012a)
Fog deposition	Katata et al. (2015)
In-cloud scavenging	CCN activation (Abdul-Razzak and Ghan, 2000), IN activation (Lohmann and Diehl, 2006), and subsequent cloud microphysical processes (i.e., autoconversion and accretion; Lin et al., 1983)
Below-cloud scavenging	Kajino and Kondo (2011), Slinn (1984), Murakami (1985), Andronache et al. (2006)
Sub-grid-scale convection and wet deposition	ACM (Pleim and Chang, 1992)

2.1.3 d4PDF-Chem を使用したアンサンブル実験

d4PDF-Chem は d4PDF で計算された気象場を境界条件とした大気質版のアンサンブル気候予測データベースである。本研究ではアンサンブル気象予測データベース d4PDF、化学輸送モデル NHM-Chem、二つをつなぐインターフェースとして領域気象モデル WRFv3.7.1 を使用し、計算を行なう。

d4PDF-Chem の作成の流れを Figure2.4 に示す。今回の実験では、d4PDF から過去実験、将来実験それぞれ 18 メンバーを使用してシミュレーションを行う。また具体的な d4PDF の使用メンバーは、以下の Table2.4 に示す。それぞれのメンバーのデータが各 5 年ずつ存在しているため、過去実験・将来実験で、18 メンバー×5 年=90 年分のデータを使用し、解析を進めていく。

まずこれらの気候データをインターフェースである WRF に気象場として代入、ナッジングを行う。WRF をインターフェースとして間に挟む理由としては、d4PDF-Chem は東アジアを対象としているため、空間解像度を向上させるためのダウンスケーリングを行うためである。WRF で計算された気象場を直接 NHM-Chem に代入し、対流圏オゾンを始めとする微量気体や黄砂といったエアロゾルの気候計算を行う。

WRF を使用した計算部分について説明する。過去実験メンバーは 2000 年 1 月 1 日 00UTC から 2006 年 1 月 1 日 00UTC まで、将来気候メンバーは 2100 年から 2106 年まで計算を行った。なお、土壌水分量を最下層まで馴染ませるため、気象計算は 1 年間のスピンアップ期間(それぞれ 2000,2100 年)を取った。その後、出力された WRF の結果を NHM-Chem に代入するための境界値に変換(変数変換・鉛直内挿)した。内容としては、側面上部境界、初期値、排出量、晴天光解離定数、土壌植生等である。

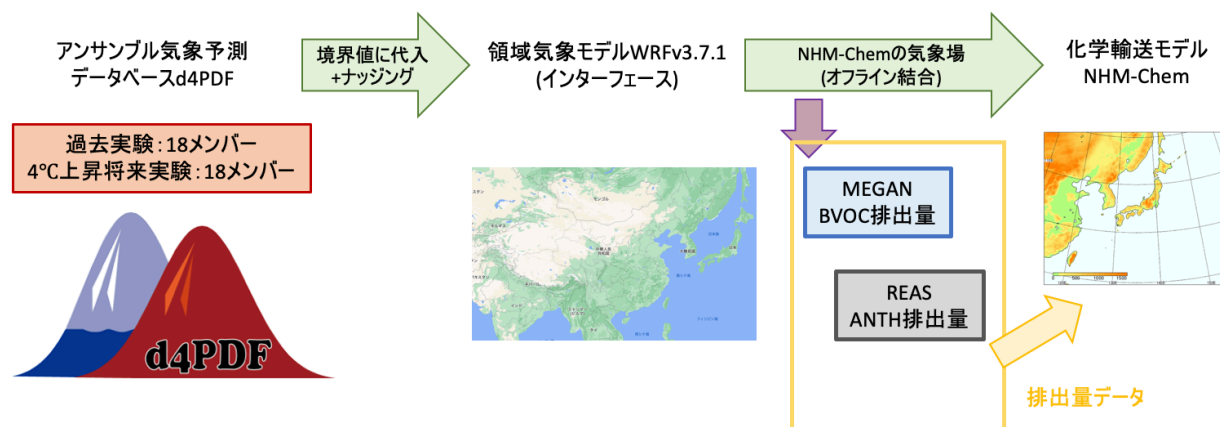


Figure2.4 研究概念図

Table2.4 本研究で使用する d4PDF のメンバー

過去実験使用メンバー# (2001-2005)	HPB_m0XX
4°C上昇将来実験使用メンバー\$ (2101-2105)	HFB_4K_YY_m101 HFB_4K_YY_m102 HFB_4K_YY_m103

#XX はアンサンブルメンバー(00-18 まで)

\$YY は CMIP 5 のモデルの略称(Table 2.2 参照)、m101, m102, m103 はそれぞれアンサンブルメンバーを表す。

続いて出力された境界値を使用した NHM-Chem の計算部分について説明する。WRF と NHM-chem はオフラインで結合されているため、WRF の出力をアーカイブ保存し、その結果を読み込みながら計算を行っていく。そのため今回の計算では気候と化学のフィードバック作用は含まれていない。オフライン結合を選択した理由としては、気候変動が O_3 に与える影響を評価することを目的としているためである。

Figure2.5 は、北東アジアを 136×91 の水平格子セル、格子分解能 $dx = 45 \text{ km}$ で表現したシミュレーション領域である。WRF の鉛直格子の数は 21 で、時間変化する η 座標系を採用している。 η 座標系とは、地形に沿った静水圧鉛直座標系であり、 η の値は地表面を 1、計算領域上端が 0 となっており、時間によって変化する。NHM-Chem の鉛直格子の数は 20 (高度 9500m) で、地形に従った座標系となっている。解析期間は 2001-05, 2101-05 年の 5 年間ずつだが、2000 年, 2100 年の 12 月 29 日 UTC から 3 日間は spin-up 期間としている。

なお、本研究ではこれらの側面上部境界、初期値、排出量、晴天光解離定数、土壌植生については、MEGAN で導出される生物起源の排出量を除き、全て 2001-05 のものを使用する。理由としては、これらを固定することで、気温上昇が与える O_3 への純粋な影響を考察することができるためである。

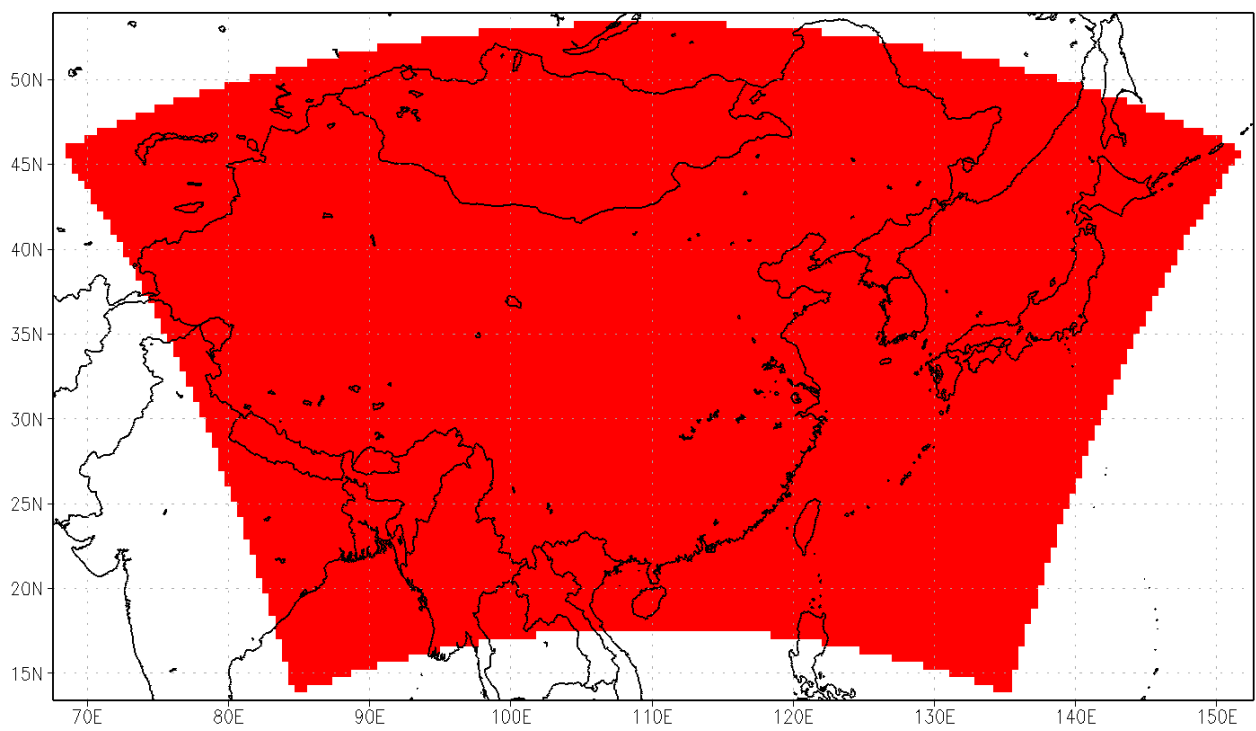


Figure2.5 本研究のシミュレーション領域

2.1.4 感度実験

O₃が変化した要因について、それぞれの影響を定量化することを目指して、感度実験を行った。本研究では、以下の2種類の感度実験を行った。

- ①BVOC 感度実験
- ②水蒸気感度実験

それぞれを順番に説明する。

VOCは対流圏のO₃生成に大きな影響を与える。特に植物由来(BVOC)のものは植物の生産力の影響をうけ、気候変動による気温上昇によってその生成量が増加することが指摘されている。BVOCがO₃濃度にどれだけの影響を与えるかの定量化を目指す、①BVOC感度実験を行った。この実験では、BVOC排出量を過去実験の気象条件で導出されたデータを使用し、将来実験の計算を行った。NHM-Chemでは、BVOC放出量についてはMEGANを使用して計算を行なっている。その際には、WRFから得られる対象期間の気温と太陽放射の時間値を代入しBVOCを推計しているのだが、そこで代入するデータに、過去実験のWRF計算から得られたものを使用する。すなわち、輸送・拡散・除去過程・化学反応等の計算には将来気象を用いる一方、BVOCの放出量は過去実験の気象条件で計算を行うことになる。この設定で計算されたO₃と、将来実験のO₃を比較することで、気候変動に左右されたBVOCの排出量がO₃に与える影響を評価することができる。

今回の実験では、計算コストや時間の都合上、d4PDFから将来実験1メンバーを使用してシミュレーションを行う。具体的なd4PDFを使用メンバーは、以下のTable2.5に示す。このメンバーのデータを5年分使用し、解析を行った。なお、d4PDFには代表メンバーのようなものは存在しておらず、それぞれが独立で存在している。そのため今回メンバーを選択した理由についても特になく、ランダムに選択した。その後、アンサンブル実験と同様の手順で、WRFに気象場として代入、ナッジングを行い、NHM-Chemで計算を行う。解析期間は2101-05年の5年間で、2100年の12月29日UTCから3日間はspin-up期間としている。境界値や排出量データベースなどについてもアンサンブル実験と同様の設定である。

対流圏O₃の生成にはOHラジカルも大きく影響している。気温上昇によって大気に含まれる水蒸気が増加すると、OHラジカルの濃度も増加する。そこで、気候変動による水蒸気量の増加がO₃濃度にどれだけの影響を与えるかの定量化を目指す、②水蒸気量感度実験を行った。この実験では、基本的な気象場は将来実験を用いる一方、水蒸気のみ過去実験のものと置き換えた。この設定で計算されたO₃と、将来実験のO₃を比較することで、気候変動で変化した水蒸気がO₃に与える影響を評価することができる。

Table2.5に示すようにd4PDFのメンバーはBVOC感度実験と同様のものを使用する。なお、こちらの実験は計算コストや機関の都合上、解析期間は2101-03年の3年間となっている。こちらにも境界値や

排出量データベースなどについてはアンサンブル実験と同様の設定である。アンサンブル実験と異なる部分としては、NHM-Chem の計算を行う際に使用する水蒸気量のデータを、過去実験の WRF 計算から導出されたものを使用して将来実験の計算を行う点である。こうすることで水蒸気量は 4K 上昇の影響を受けていないデータだが、その他の気象条件は 4K 上昇の影響を受けたものとなる。この設定で計算された O_3 と、4K 上昇した環境での水蒸気の影響も含まれるアンサンブル実験で導出された O_3 を比較することで、純粋に水蒸気が O_3 に与える影響を評価することができる。

Table 2.5 本研究の感度実験で使用する d4PDF メンバー

BVOC 感度実験使用メンバー	HFB_4K_CC_m101
水蒸気量感度実験使用メンバー	HFB_4K_CC_m101

最後に、二種類のアンサンブル実験と二種類の感度実験のそれぞれに必要なインプットデータ設定と、それらの実験結果から定量化できる要因についてまとめる。Table2.6 にそれぞれの実験に必要なインプットデータの一覧と、それらの実験から定量化できる要因についての一覧を示す。

大きくまとめると、NHM-Chem の計算には、BVOC 放出量(BVOC emission)と人為起源排出量(ANTH emission)と WRF から出力された気象データ(CClimate)の 3 つが必要である。この CClimate の中に水蒸気量(Water Vapor)も含まれている。なお、本研究では上でも述べたように、気温上昇が与える O_3 への純粋な影響を考察することを目的としているため、REASv3.2 から得られる人為起源排出量は過去実験の期間である 2001-05(present)のものを固定で使用する。

アンサンブル実験における過去実験(Past)は、BVOC emission、ANTH emission、CClimate 全て present の期間を使用し、アンサンブル実験における 4K 上昇将来実験(Future)については BVOC emission、CClimate 共に将来実験の期間 2101-05 のものを使用している。そして BVOC 感度実験(Future(non BVOC))については CClimate は将来実験の期間を使用しているものの、BVOC emission については過去実験の期間のものを使用する。最後に水蒸気量感度実験(Future(non WV))では、BVOC emission、CClimate は将来実験の期間(2101-03)を使用するものの、CClimate 内に含まれる水蒸気量(WV)のみ過去実験の機関のものを使用する。

これらの 4 つの実験の出力結果をそれぞれ比較することで、 O_3 に対するさまざまな要因の影響についてそれぞれ評価を行うことができる。具体的には、Future と Past を比較することで全ての要因で変動した O_3 (All Impact)について、Future と Future(non BVOC)を比較することで O_3 に対する 4K 上昇した環境下での BVOC の影響(BVOC Impact)について、Future と Future(non WV)を比較することで O_3 に対する 4K 上昇した環境下での水蒸気の影響(WV Impact)について評価することができる。そして最後に、All Impact と(BVOC Impact+WV Impact)を比較することで、 O_3 に対する BVOC と水蒸気以外の影響についても評価できる。これらの結果を使用し、それぞれの影響について定量化を目指す。

Table 2.6 NHM-Chem 計算のために必要なインプット(上)と実験結果を使用して
評価できる影響について(下)

NHM-Chem計算のために必要なインプット

BVOC emission + *ANTH emission* + *CLimate*(+*Water Vapor*)

<i>Past</i>	$BVOC_{present} + ANTH_{present} + CL_{present} + WV_{present}$
<i>Future</i>	$BVOC_{Future} + ANTH_{present} + CL_{Future} + WV_{Future}$
<i>Future</i> (<i>non BVOC</i>)	$BVOC_{present} + ANTH_{present} + CL_{Future} + WV_{Future}$
<i>Future</i> (<i>non WV</i>)	$BVOC_{Future} + ANTH_{present} + CL_{Future} + WV_{present}$

All Impact (全ての要因で変動したO₃濃度): $Future - Past$

BVOC Impact (BVOCの影響で変動したO₃濃度): $Future - Future(non\ BVOC)$

WV Impact (水蒸気の影響で変動したO₃濃度): $Future - Future(non\ WV)$

Other Impact (BVOC,水蒸気以外の影響で変動したO₃濃度)

: $All\ Impact - (BVOC\ Impact + WV\ Impact)$

2.2 観測データ(EANET)

前節で説明を行ったモデル等で計算された、出力結果の妥当性の評価のために、EANET (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia) のモニタリングデータを使用し、比較を行なう。なお、EANET のガイドライン、ドキュメント、マニュアルなどについては、すべて <https://www.acap.asia> に示す。東アジアにおける酸性雨およびそれに関連する物質のモニタリングを実施している EANET は、2001 年に本格的に稼働し、現在 13 か国が参加し、湿性沈着、乾 性沈着、土壌・植生、陸水を対象としたモニタリングを実施している。具体的には、カンボジア、中国、インドネシア、日本、ラオス、マレーシア、モンゴル、ミャンマー、フィリピン、韓国、ロシア、タイ、ベトナムが参加しており、都市部(Urban)26 カ所、農村部(Rural)19 カ所、遠隔地(Remote)21 カ所の合計 66 カ所がモニタリングに選択されている。これらの EANET のモニタリング地点の詳細について、Figure 2.6 に示す。

日本の EANET 観測所では、ガス種(HNO_3 、 HCl 、 NH_3 、 SO_2)とエアロゾル種(SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 NH_4^+ 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Ca^{2+})の 1 週間(小笠原)もしくは 2 週間(その他の地点)の累積された濃度をフィルターパック法(FP 法)でモニターしている。また、自動測定器により、 SO_2 、 NO_x 、 O_3 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 等の濃度測定も行われている。これらの濃度データについては 1 時間の分解能で保存されている。

今回の実験では、EANET の観測点のうち、日本国内の Remote の地点 4 カ所(佐渡関、隠岐、橿原、辺戸)と、Urban(蟠竜)の地点 1 つをモデル評価のために選択した (Table 2.7)。期間は 2001-05 で、 O_3 の濃度を評価の指標とした。

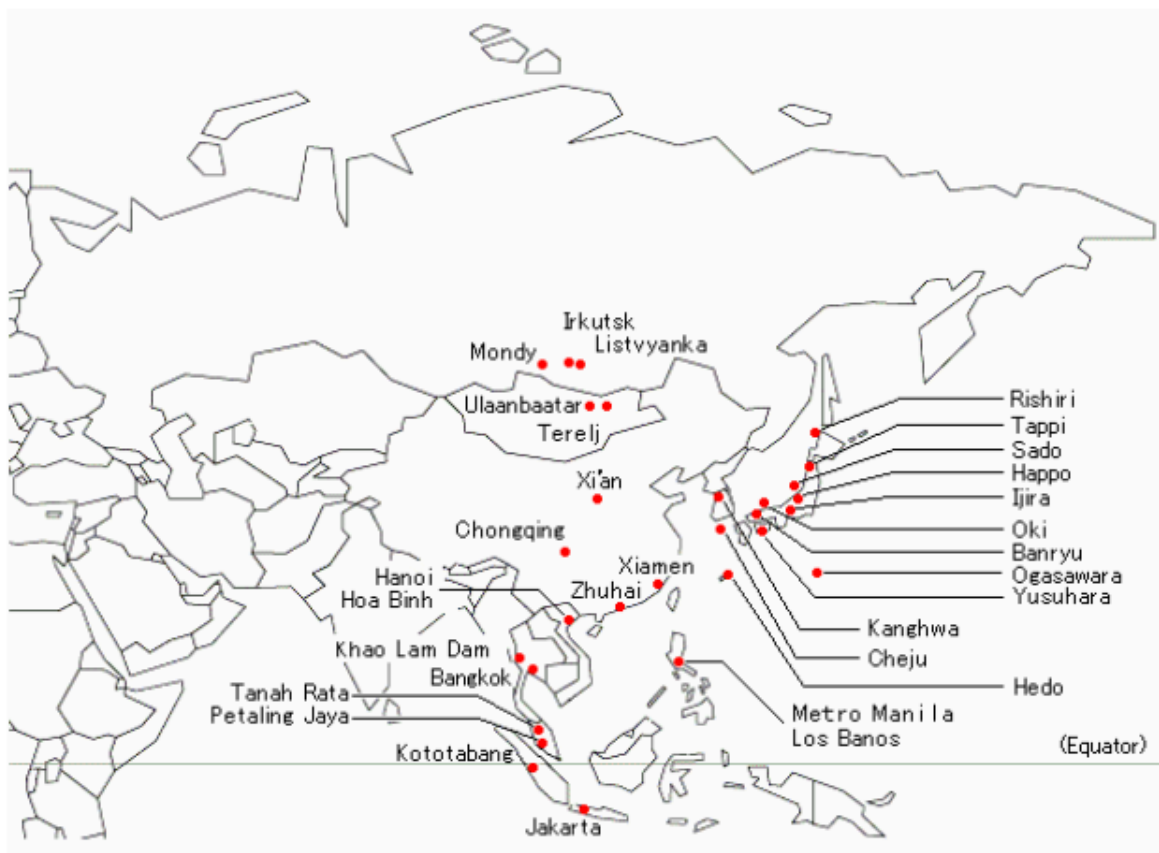


Figure 2.6 2000 年における EANET のモニタリングサイト
(<https://www.acap.asia>)

Table 2.7 本研究で使した国内 8 箇所の EANET 遠隔観測地点の位置情報(<https://www.acap.asia>)

	Longitude (E)	Latitude (N)	Characteristics of sites	Height above sea (m)
1 Sadosaki	138° 24'	38° 15'	Remote	134
2 Oki	133° 11'	36° 17'	Remote	90
3 Yusuhara	132° 56'	33° 23'	Remote	790
4 Hedo	128° 15'	26° 51'	Remote	60
5 Banryu	131° 48'	34° 41'	Urban	53

2.3 光化学オキシダントとその支配要因

本研究のオゾン（光化学オキシダント）は対流圏の光化学過程で生成される。気候変動によるオゾン濃度の変化を論じるためには、 O_3 とその生成・除去に関係する大気微量気体との関係性を知っておく必要がある。

2.3.1 光化学オキシダント

O_3 は、地表では人間の健康や生態系に悪影響を及ぼし、対流圏の中層や上層では正の放射強制力をもたらす温室効果ガスである。以下では、一般的な O_3 の化学的メカニズムについて、説明する。

まず対流圏では、 NO_2 の太陽光による分解（波長 424nm 以下）により、 $O(^3P)$ （基底電子状態の酸素原子）が生成される(1)。そして直ちに $O(^3P)$ 、 O_2 、第 3 体である M の 3 分子反応によって O_3 が生成される(2)。その後、 O_3 は NO と急速に反応して、 NO_2 を再生する (3)。この一連の流れである 3 本の反応式が、光化学 NO_x サイクルによる O_3 生成過程の主となるものである。



これらの 3 つの反応は、通常 2-3 分で光定常状態となる。Figure 2.7 は上記の化学反応による濃度変化の計算例であるが、およそ 2 分程度で光定常状態となり、 O_3 濃度は 50ppbv 程度に収まっている。しかし、大気中に炭化水素が存在する場合には、太陽光照射後の反応系は全く異なり、Figure 2.7 で示した平衡状態をはずれていくことになる。

炭化水素が存在する場合、まずは OH ラジカルと酸化反応し、続いて O_2 と三体反応を行うことにより過酸化ラジカル(ペルオキシラジカル) RO_2 が生成される。これらの反応は非常に早く進行するため、まとめて以下の(4)式のように書ける。



炭化水素が参加した O_2 は(5)のように NO と反応し、酸化ラジカル(オキシラジカル) RO となる。



また、 CO (6)、酸化ラジカル RO (7)の酸化反応によって、 HO_2 を生成する。



その後 HO_2 は(5)と同じく、 NO と反応し、 NO_2 を生成する。

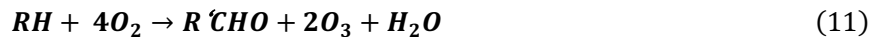


このように、炭化水素からの反応によって、 HO_2 と O_2 が存在すると、(4)と(8)によって NO を NO_2 に変換する経路が追加される。生成された NO_2 は光乖離反応を経て O_3 を生成する働きを持つ。なお CO や炭化水素の酸化には、 OH ラジカルが必要になってくるが、これは主に O_3 の光分解(9)と水蒸気との反応(10)で生成される。



また、(8)式の反応においても OH ラジカルは再生され、これらは(4)式で再び RH を酸化させる働きを持つ。

以上のメカニズムにより、対流圏 O_3 の生成は、 NO_x の存在下で HO_x を触媒とする CO と炭化水素（より広い意味では VOC （揮発性有機化合物））の連鎖的な光化学的酸化によって行われる。上記の反応式を足し合わせると、



と表現され、一分子の RH の酸化から最終的に二分子の O_3 が生成することがわかる。これが、光化学大気汚染による O_3 の高濃度発生の機構である。炭化水素が大気中に存在する場合の化学反応による濃度変化の計算例を Figure 2.8 に示す。Figure 2.7 の時と比べ、 O_3 濃度がかなり増加していることがわかる。

なお、この連鎖は、 OH による NO_2 の酸化(12)と HO_2 の自己反応(13)によって起こる HO_x ラジカルの消失によって終了する。



ここで生成された H_2O_2 と HNO_3 は、水への溶解度が高いため、主に湿性沈着によって除去される。

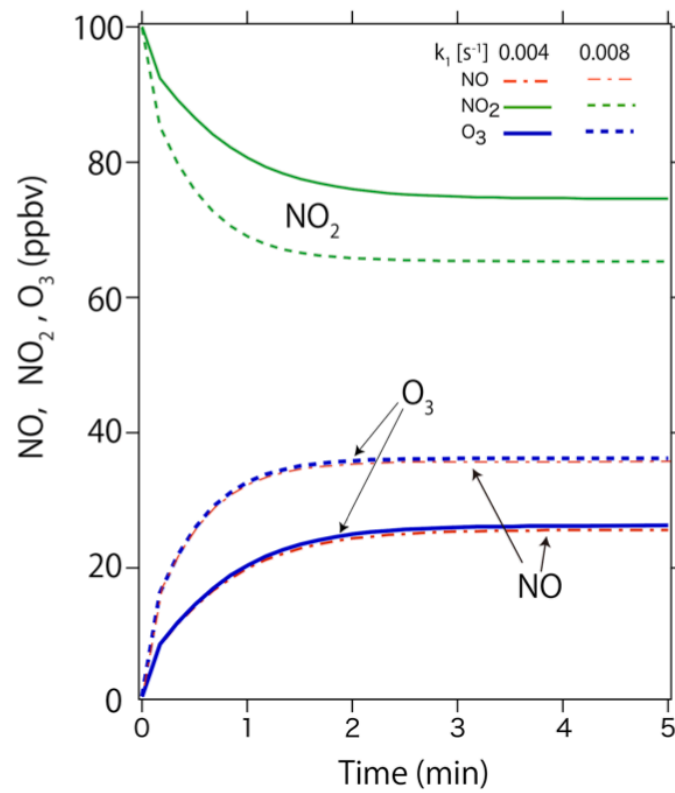


Figure 2.7 NO-NO₂-OLE 系の光化学反応による O₃ の生成(大気環境モデリング,森北出版(2021))

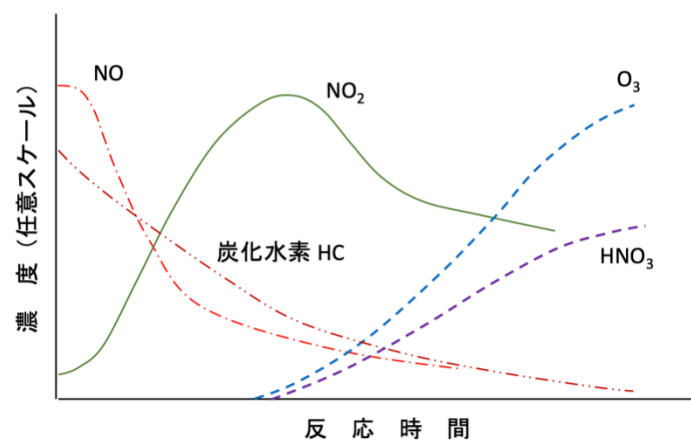


Figure 2.8 典型的な光化学反応における濃度変化(大気環境モデリング,森北出版(2021))

2.3.2 窒素酸化物 NO_x

前節で述べたように、O₃と炭化水素、NO_xには複雑な関係があることがわかっている。しかし、国内の測定局における NMHC(炭化水素)と NO_xについては Figure 1.7, 1.8 より、近年緩やかではあるが減少傾向にあることがわかる。このように前駆物質の濃度が現象しているのにも関わらず、光化学オキシダントの濃度が増加傾向のまま推移している一因として、オゾン化学は強い非線形性を持っていることが挙げられる。Figure 2.9 に、最大の O₃ 濃度と NO_x 排出量、VOC 排出量の関係についての模式図を示す(Inoue et al., 2010)。例えば、対象領域が Figure 2.9 における PointA のように NO_x 濃度が高い都市域のような地点だった場合、反応式の終了部分は式(12)となり、O₃の生成量は VOC 濃度に応じて直線的に増加するが、NO_x 濃度には影響されない「VOC-sensitive 領域」と呼ばれる特性を持つ。一方 PointB のような NO_x の濃度が低い農村域のような地点だった場合、反応式の終了部分は式(13)となり、O₃の生成量は NO_x 濃度を削減すれば減少するが、VOC の影響は受けない「NO_x-sensitive 領域」と呼ばれる特性を持つ。これらの非線形な反応を考慮しつつ、それぞれの対象領域がどの特性を持つか考えながら研究を進めていく必要がある。

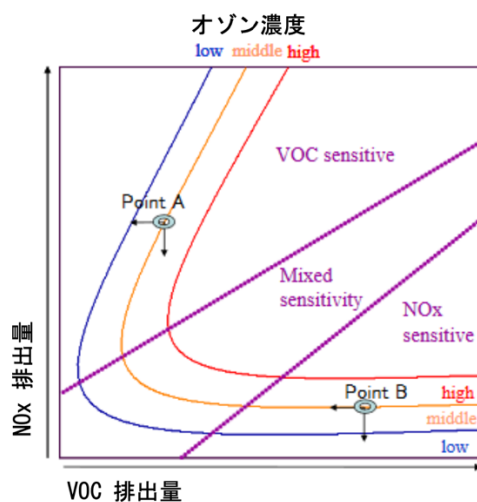


Figure 2.9 NO_x,VOC 排出量に対する最大 O₃ 濃度の感度の模式図
(Inoue et al., 2010)

また、NO と O₃ には、NO タイトレーション効果と呼ばれる反応も存在する。これは以下の(14)の反応により



O₃ 濃度を減少させる働きを持ち、主に NO の多い都市域などで発生しやすい現象である。なお、O₃ 濃度は、休日に増加することが知られているが、これは前駆物質である NO_x と VOC のうち、NO_x を排出する自動車などからの排出量が、平日に比べて少なくなることで、(14)の NO タイトレーション効果が抑制され、生成された O₃ が蓄積しやすい状態になっているためである。このことを「週末効果」と呼ぶ(Ministry of the environment, 2014)。

2.3.3 植物起源の VOC(BVOC)

前節などで述べたように、VOC は O₃ の反応において重要な前駆物質であり、その多くは陸域の生態系から放出されている。BVOC の放出量については、植物の種類によって異なり、また気象条件によってもかなり影響を受ける。光合成の性質上、気温は BVOC の放出量をコントロールする重要な要因の一つである。生物起源のイソプレンとモノテルペンの放出量は、気温の上昇に伴い指数関数的に増加することが、野外や実験室での観測で示されており、今回使用する MEGAN にも実装されている。この気温と BVOC 排出量の指数的な依存性が、NO_x レベルが高い都市域において、気温と O₃ の正の相関の主要因ではないかといくつかの研究で考察されている(Lu et al., 2016)。

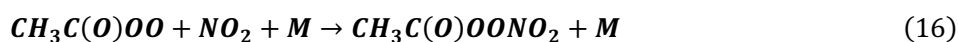
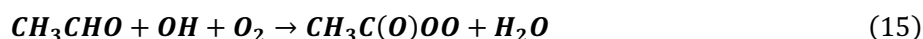
Heald et al., (2008)は、MEGAN を用いて気候変動に起因する 2000-2100 年の BVOC の放出量を計算した。シナリオとしては、100 年後に約 2.8°C 上昇する A1B シナリオを使用した。結果として、イソプレンの放出量が 22%、モノテルペン放出量が 19%、全 BVOC の放出量が 22%の増加を見せた。この増大は主に気温の増加によるもので、他の要因である日射や雲量、土壌水分の効果は小さいとしている。しかし、気温が上がれば上がるほど、BVOC 放出量は増加するわけでもなく、細胞の活動に悪影響を及ぼすような極端な高温状態(例えば 40°C 以上)では抑制されることが知られている(Guenther et al., (1991))。また、イソプレンの増加は酸化窒素の分配にも影響を与え、より多くの PAN を生成する可能性がある。そのため、下の PAN の節で詳しく述べているが、結果として PAN を長距離輸送し、風下の遠隔地で O₃ を生成する可能性がある(Fiore et al., (2011))。このようにかなり複雑なメカニズムを持つ BVOC だが、気温と O₃ の関係について定量化を目指すには重要な要因の一つである。

2.3.4 OH ラジカル

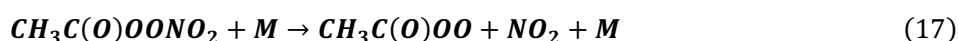
大気中の水蒸気(HO_x 源)もまた O₃ の光化学反応に不可欠な要因である。対流圏 O₃ に対するその影響は、NO_x の節で述べた VOC-sensitive などの化学的なレジームに敏感である。NO_x の濃度が低い農村域(いわゆる VOC-sensitive 領域)では、(10)で表される反応式を通して、オゾン生成反応に必要な O₃ 原子の消費が促進され、O₃ 濃度が減少する。OH ラジカルは(4)-(8)式の反応を通じて、CO や炭化水素を酸化させ、O₃ の生成を活性化する一方で、NO₂ を硝酸 HNO₃ に変化させて、O₃ サイクルを終了させる(12)式のような働きもあるため、O₃ と水蒸気の関係はより複雑になる。Doherty et al., (2013)は水蒸気が19%増加すると、地表平均 O₃ の濃度が世界平均で1-2ppbv、熱帯で3ppbv 減少することを示した。一方米国では、Dawson et al., (2007)によると、絶対湿度が20%減少すると、全国平均の地表 O₃ 濃度が0.5ppbv 減少することを示した。このようにこちらもあり難しいメカニズムを持つ。

2.3.5 ペルオキシアセチルナイトレート(PAN)

PAN は炭化水素が豊富な環境下において、NO_x が存在する中、アセトアルデヒドが酸化することによって生成される(15)(16)。



そして、7km 以下の対流圏下層領域では、主に熱分解(17)によって除去される。



PAN の重要な特徴として、その寿命の温度依存性がある。(16)による PAN の分解率は気温が低下することで劇的に低下するため、PAN の寿命は295K での30分から240K での数ヶ月にまで及ぶ。この特徴によって、気温が PAN の化学反応を通して O₃ の生成と輸送に影響を与えることになる。PAN の形成は、NO_x とペルオキシラジカルの両方のシンクとして機能するため、発生源付近の O₃ の生成量を低下させる。その後冷たい気温の対流圏中を長距離輸送され、最終的に熱分解されて NO_x を放出し、その結果、運ばれてきた遠隔地で O₃ の生成を促進することになる。これまでの研究では、PAN が NO_x を運ぶ役割を果たし、東アジアなどの汚染地域から遠隔地に NO_x を運び、そこで O₃ を生成することが明らかになっている(Zhang et al., (2008))。将来の気温増加に伴う PAN の熱分解の増加も、Table 1.4 で示したように、気温上昇によって O₃ 濃度を増加させる可能性のある要因として考えられるが、この関係は超高温(例えば312K 以上(Steiner et al., (2010)))では遥かに弱くなる可能性がある。また、将来の気温上昇は、PAN の熱分解をより強くし、汚染地域では O₃ が増加するものの、遠隔地では減少するこ

とになると考えられる。しかし遠隔地では BVOC の節で述べたように、気温上昇による BVOC 放出量の増加による PAN の増加で補われる働きももつ。

第3章 結果と考察

本章では EANET の自動測定器によって得られた観測データと、CPF を指標とし、本研究で使用する d4PDF-Chem の出力結果の精度検証の結果について述べる。また d4PDF-Chem を用いたアンサンブル実験を行い、将来気温が 4 K 上昇した環境下において、どのように O_3 が変化するのか、またその原因についての考察を述べていく。最後に感度実験を行い、BVOC と水蒸気がそれぞれ O_3 に与える影響の定量化を行い、気温上昇がどのような経路で O_3 濃度に影響を与えるのかについて考察する。

3.1 観測値を使用した精度検証

NHM-Chem の出力結果の妥当性の評価のために、EANET のモニタリングデータを使用し、比較を行った。データを使用した地点は前章で述べた通りだが、今回は、越境汚染の影響を受けやすいと考えられる地点 3 カ所(隠岐、佐渡、辺戸)と、内陸部に位置する地点 2 カ所(栲原、蟠竜)に分けて順番に評価を行った。期間は 2001-05 で、 O_3 の濃度を評価の指標とし、年変動グラフ、日変動グラフ、季節別グラフ、確率密度関数(PDF)を確認しながら観測値と過去実験の結果を比較した。

3.1.1 越境汚染の影響を受ける地点

まずは、越境汚染の影響を受けやすい日本海側や沖縄などに位置する 3 地点について結果を述べる。Figure3.1~3.4 は、島根県隠岐の年変動、日変動、季節別グラフ、PDF の結果である。青の線は過去実験のモデル出力結果、緑の線は観測値である(参考までに将来実験のモデル出力結果を赤線で示す)。エラーバーとシェードはそれぞれ、d4PDF および観測値の標準偏差を示している。PDF の右側には、それぞれの実験の平均値と、環境基準値(60ppbv)を超える確率を示している。

結果として、年変動、日変動、季節別グラフはどれも過去実験が観測値の標準偏差内に収まる結果となった。日変動グラフで見ると、かなり観測値と一致しているような概形を示したが、年変動・季節別グラフでは、夏季に過大傾向を、冬季に過少傾向を示していることがわかった。また、後に見せるその他の地点でも、同様の夏季の過大傾向が見られた。領域化学輸送モデル CMAQ を使用した日本域での O_3 のシミュレーション結果(Itahashi et al., (2013)等)や、東アジアを対象にさまざまな化学輸送モデル性能の比較評価を行っている国際比較プロジェクト第 3 期 (Model Intercomparison Study in Asia, MICS-AsiaIII)の結果(Li et al., (2019)等)などでも、同様の夏季の過大傾向がさまざまなモデルで見られた。この課題傾向の原因として、海洋に囲まれている島国である日本独自のプロセスから発生しているものとの指摘もある。d4PDF-Chem の結果にも同様の傾向があらわれているが、d4PDF-Chem の値は観測値の標準偏差内に位置し、前述のモデル研究結果とも遜色ないことから、許容範囲内であると判断し検証を進めていくこととする。Figure 3.4 の PDF グラフについては、かなり精度も高く、観測値の標

準偏差内に収まり、ピーク濃度の位置も的確に表している結果となった。

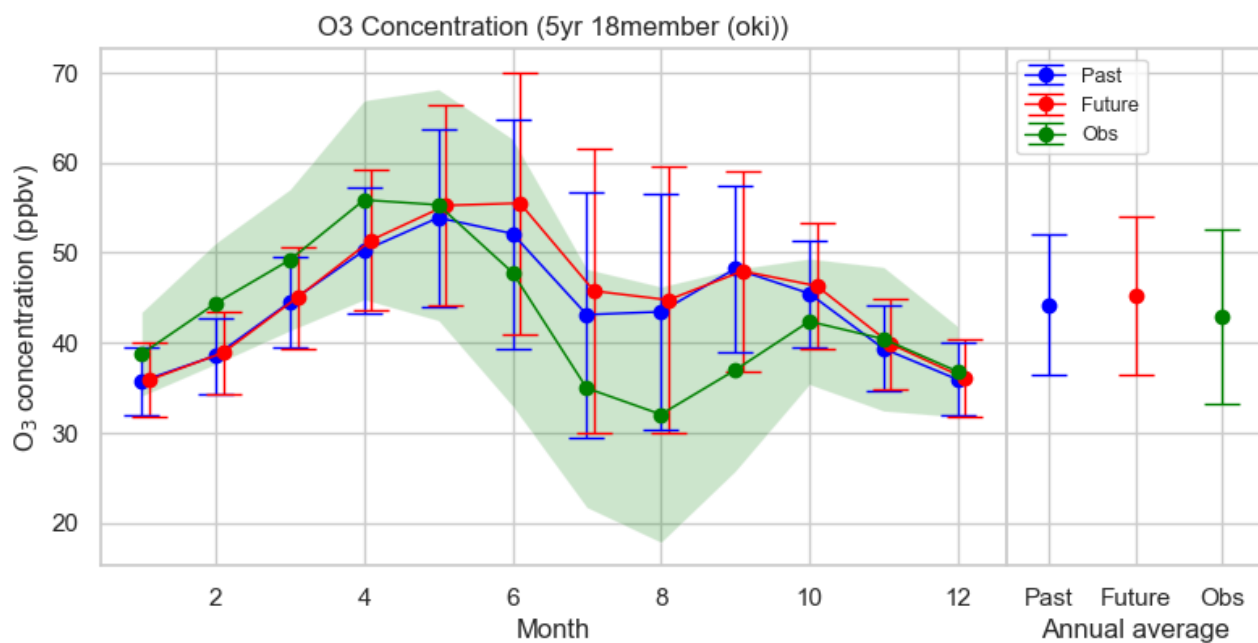


Figure 3.1 隠岐の年変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値、青：過去実験、(赤：将来実験))(右：全期間の平均)

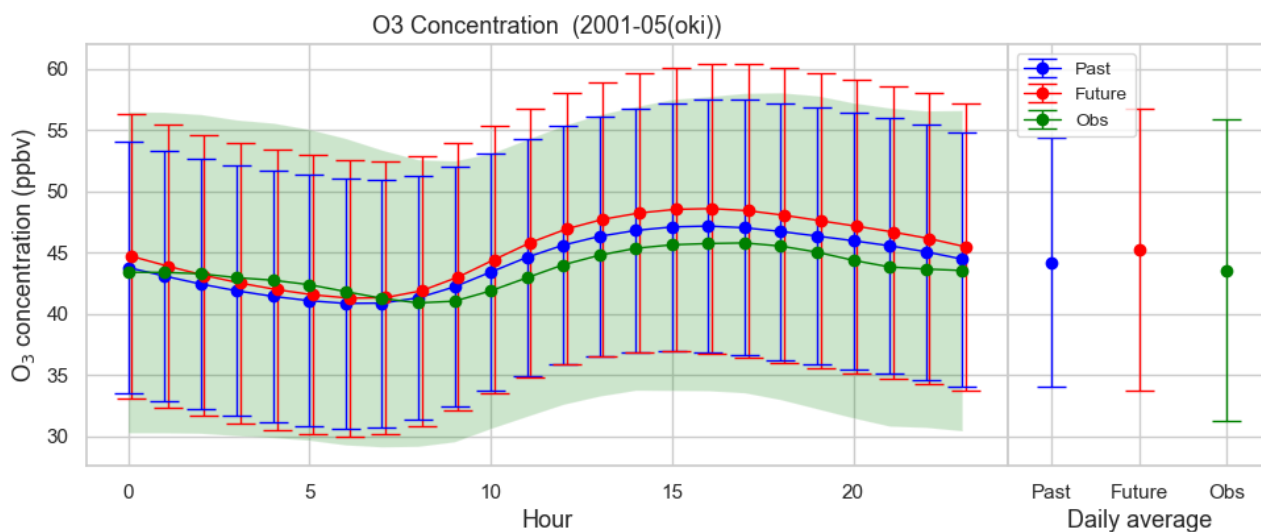
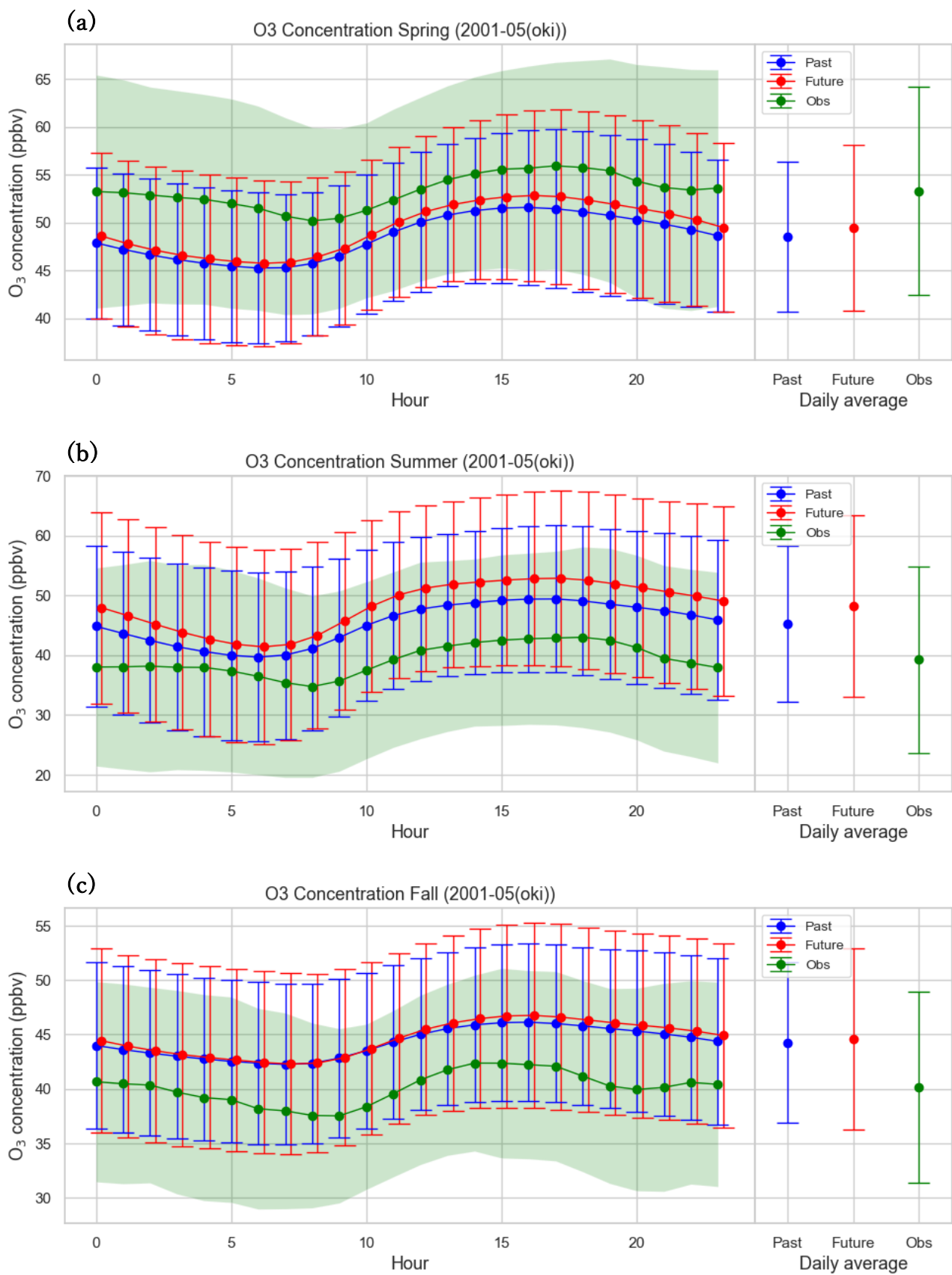


Figure 3.2 隠岐の日変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値、青：過去実験、(赤：将来実験))(右：全期間の平均)



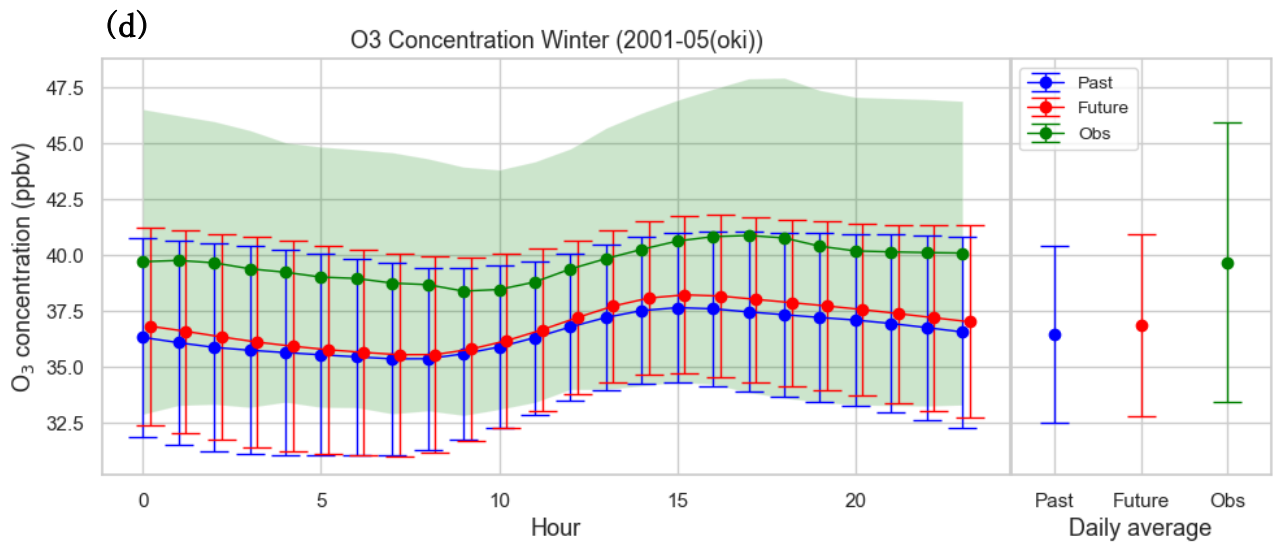


Figure 3.3 隠岐の季節別の日変動グラフ [ppbv]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)
 (a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季

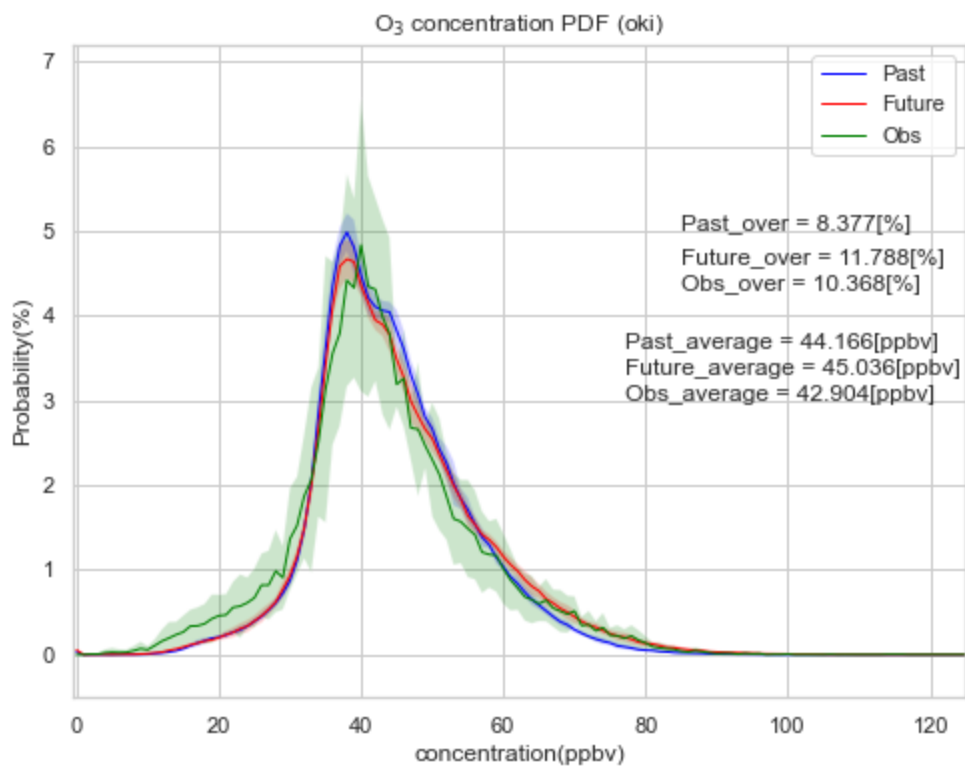


Figure 3.4 隠岐の確率密度関数(PDF) [横軸,ppbv][縦軸,%]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))
 右の数字はそれぞれの実験の環境基準値を超えた割合[%],平均値[ppbv]を示す。

続いて、新潟県佐渡の結果について述べる。Figure 3.5~3.8 は、先ほどと同様の年変動、日変動、季節別グラフ、PDF による出力結果である。こちらは辺戸の結果と同じく夏に過大評価を示しているものの、年間を通じて全体的にかなり過小評価をしている傾向にあった。だが同様に年変動、日変動、季節別グラフはどれも過去実験が観測値の標準偏差内に収まる結果となった。PDF グラフについては、ピーク位置に少し過小評価は見られたものの1つのピークという概形はしっかり捉えている。

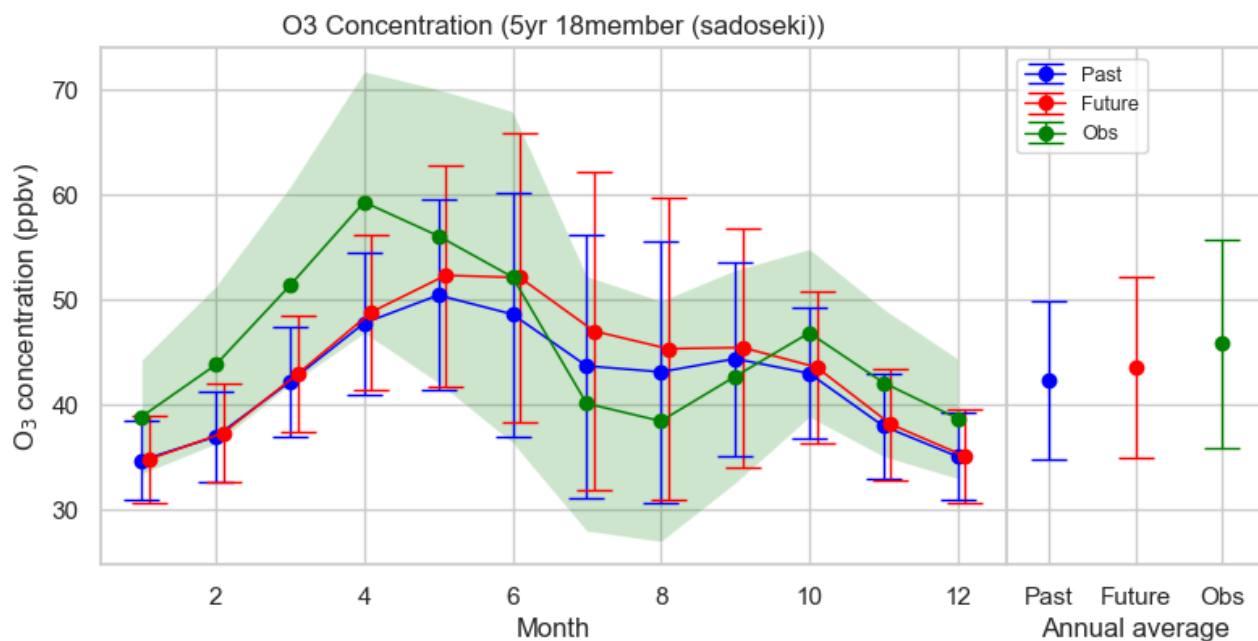


Figure 3.5 佐渡の年変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)

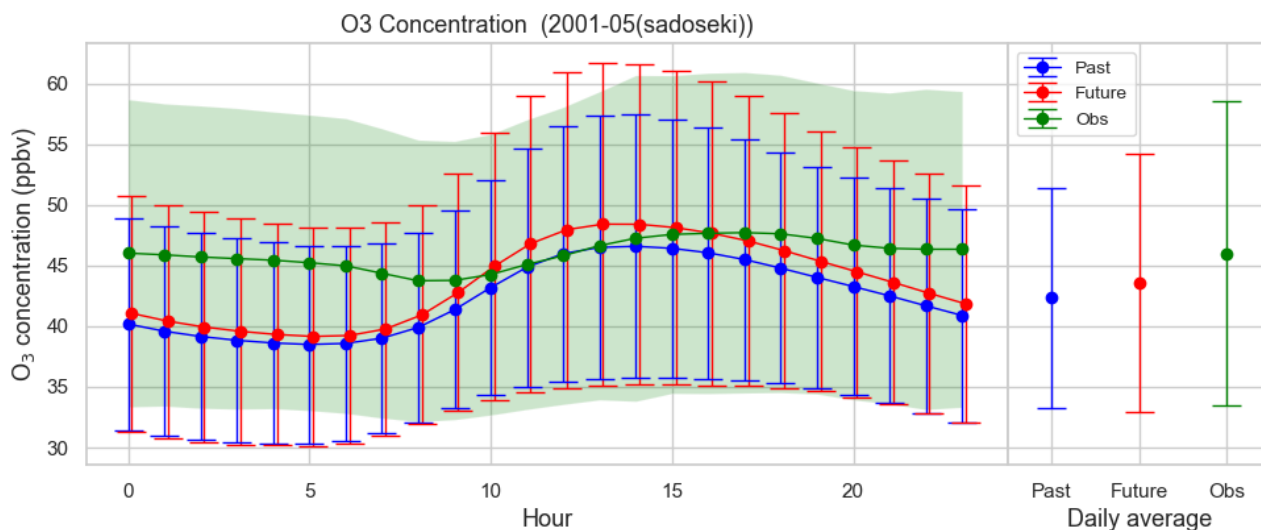
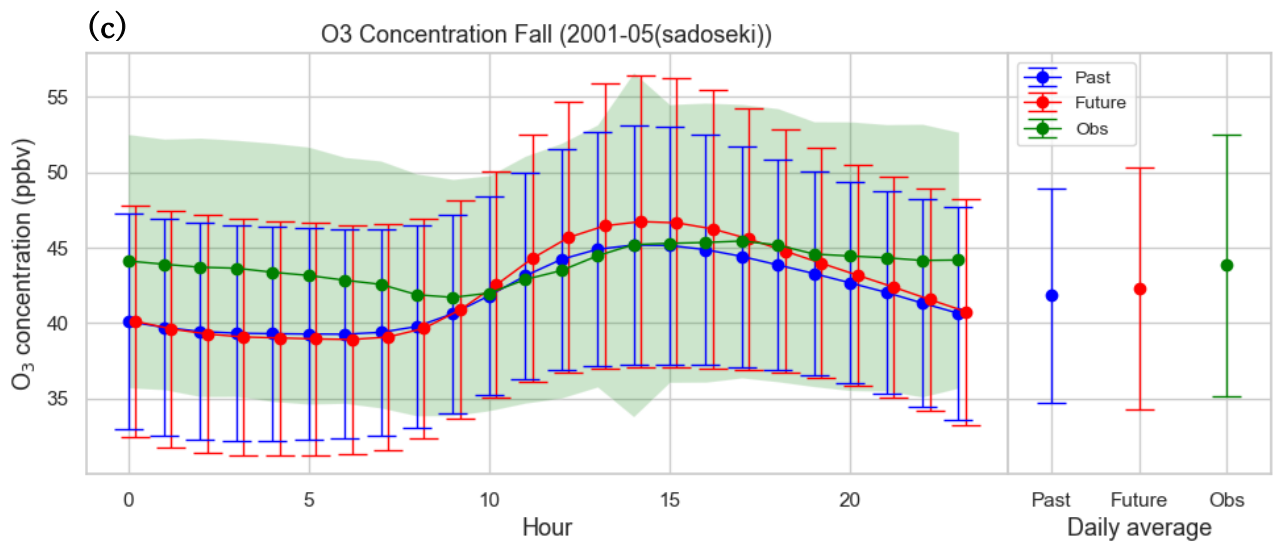
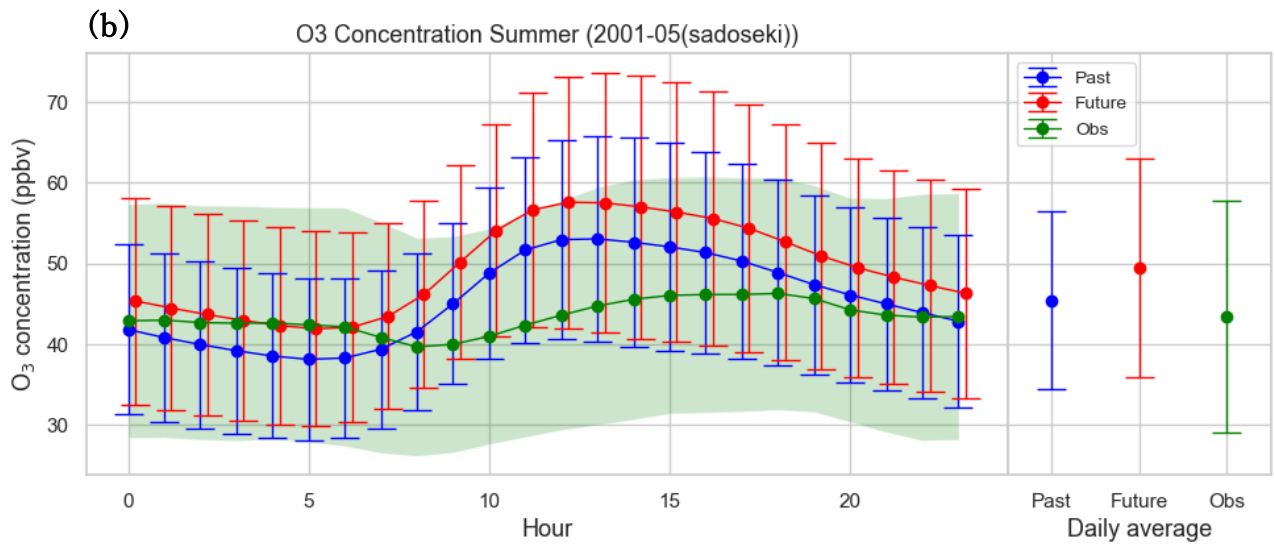
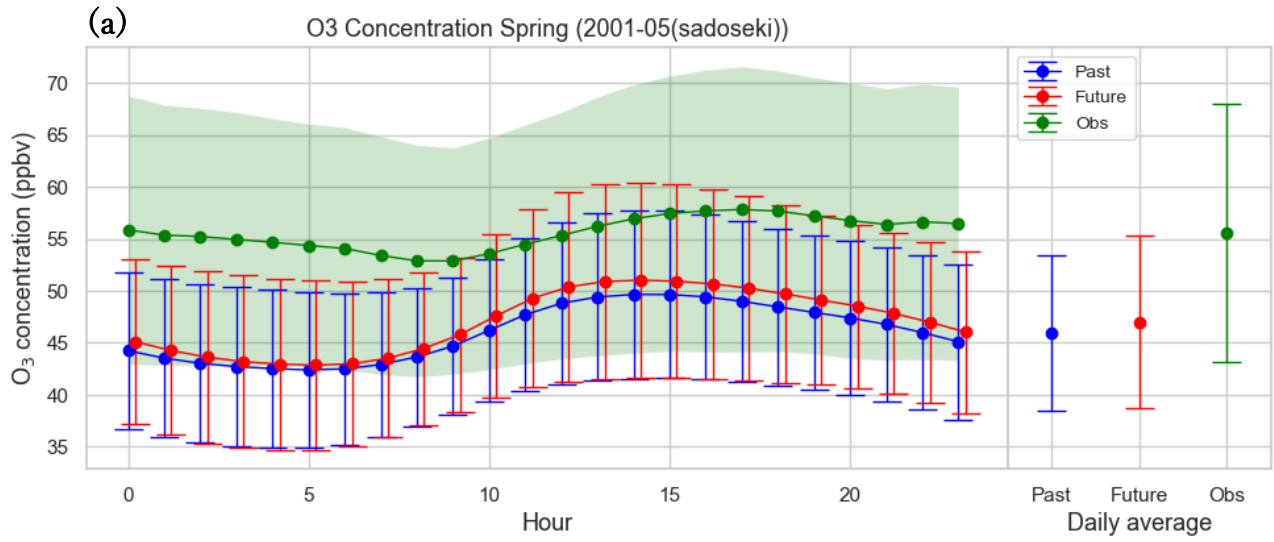


Figure 3.6 佐渡の日変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)



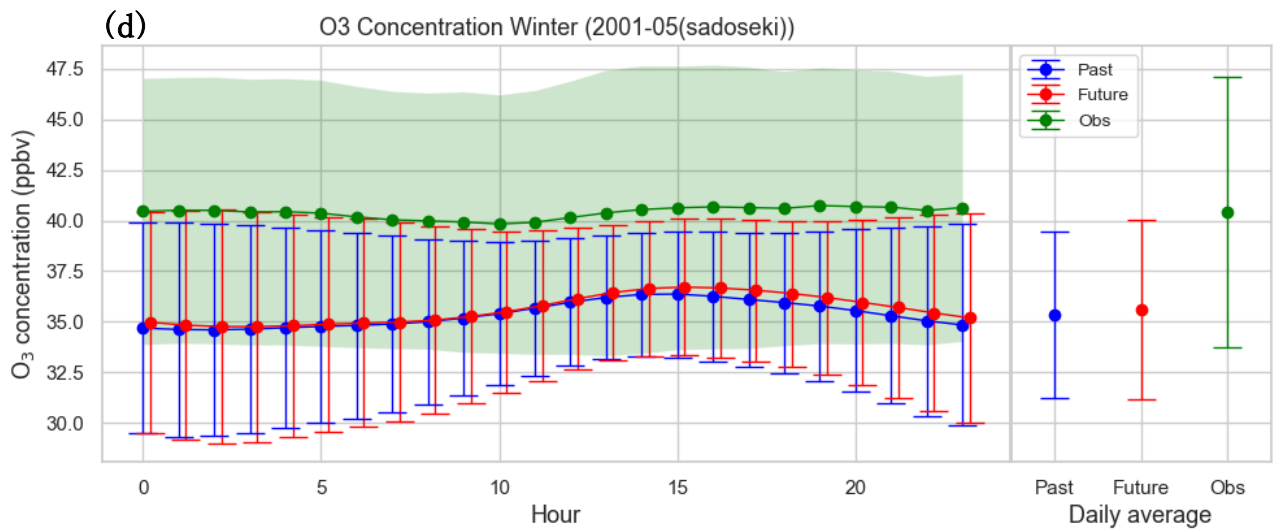


Figure 3.7 佐渡の季節別の日変動グラフ [ppbv]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)
 (a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季

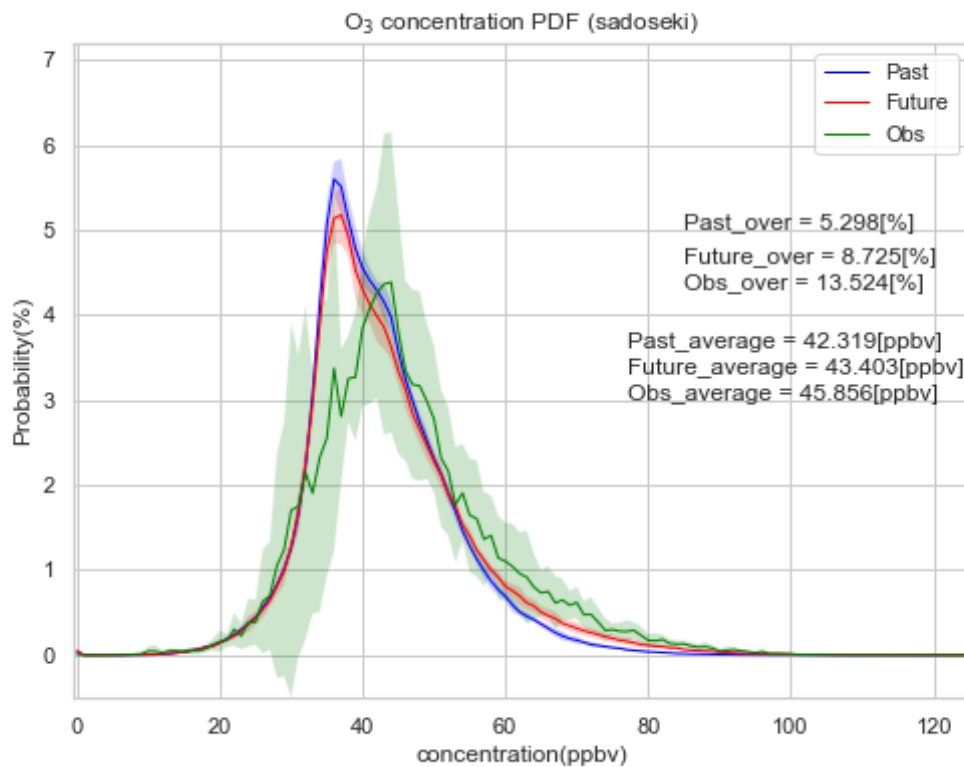


Figure 3.8 佐渡の確率密度関数(PDF) [横軸,ppbv][縦軸,%]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))
 右の数字はそれぞれの実験の環境基準値を超えた割合[%],平均値[ppbv]を示す

最後に、唯一南端に位置している沖縄県辺戸の結果を Figure 3.9~3.12 に示す。Figure 3.9 の年変動グラフを見ると、夏に過大傾向を示している今までの2地点と同様の結果だが、Figure 3.10 の日変動グラフを見ると、かなり日内での変動幅が少ない地点だとわかる。しかし観測値も同様の傾向を示しているため、こちら問題なしと捉えて進めていく。

PDF グラフを見ると、観測値と過去実験どちらも2山の傾向を示した結果となった。この地点は、日本本土からは物質が飛んで来るのが難しい地点な上、周辺に大きい発生源なども存在しないため、中国などからの越境汚染由来の物質の影響がかなり大きい。それを踏まえて考察すると、この PDF は2つの波の重ね合わせのような形になっているため、高い濃度の山が越境汚染由来、低い濃度の山がバックグラウンド由来のものであると考えることができる。これを確かめるために季節別の PDF を出力したところ(Figure 3.13 (a)~(d))、季節別で綺麗に山を分離することができた。夏に低濃度の山、冬に高濃度の山が現れており、予想通り冬に越境汚染の影響が大きい地点であることがわかった。また、d4PDF-Chem が越境汚染季節変動をしっかりと表現できていることが確認できた。

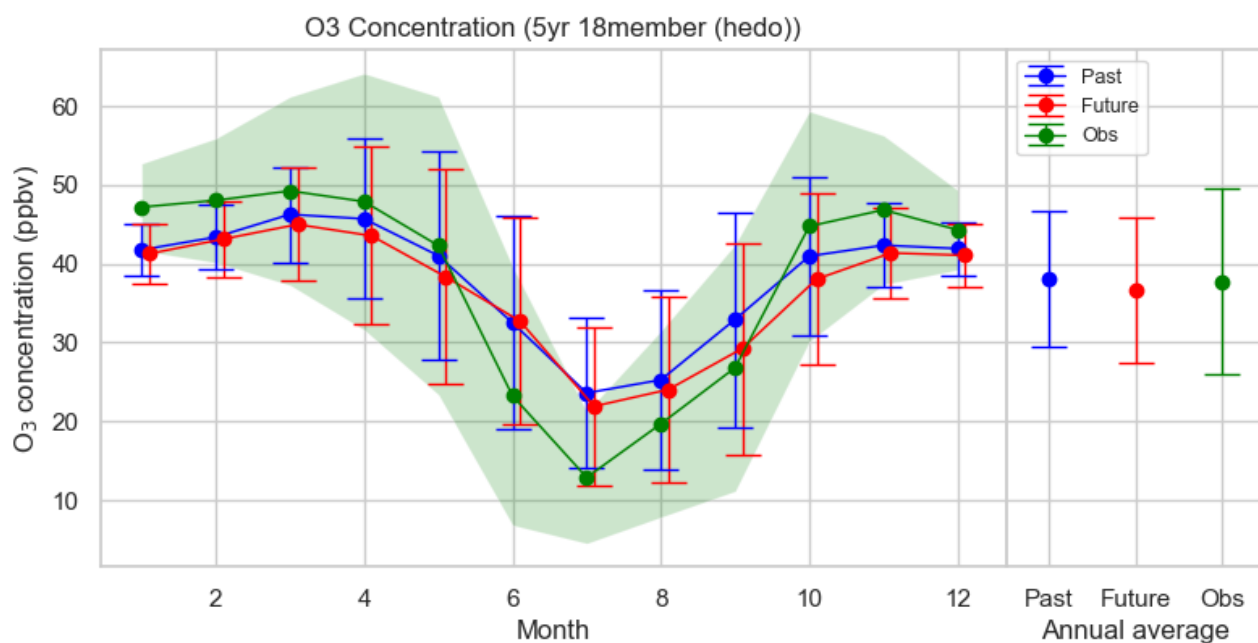


Figure 3.9 辺戸の年変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)

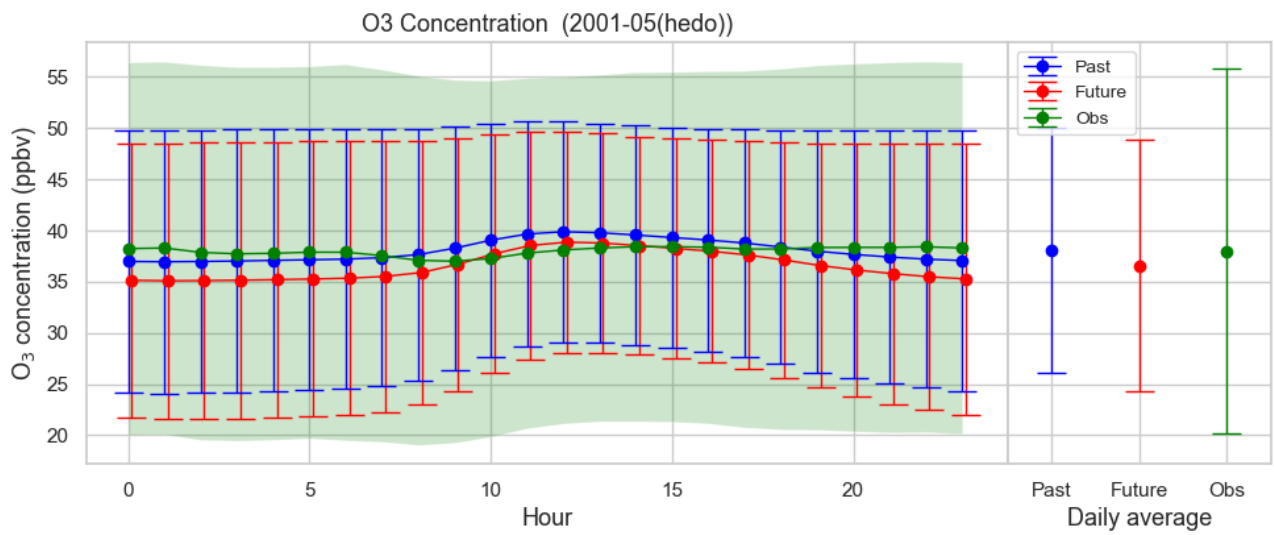
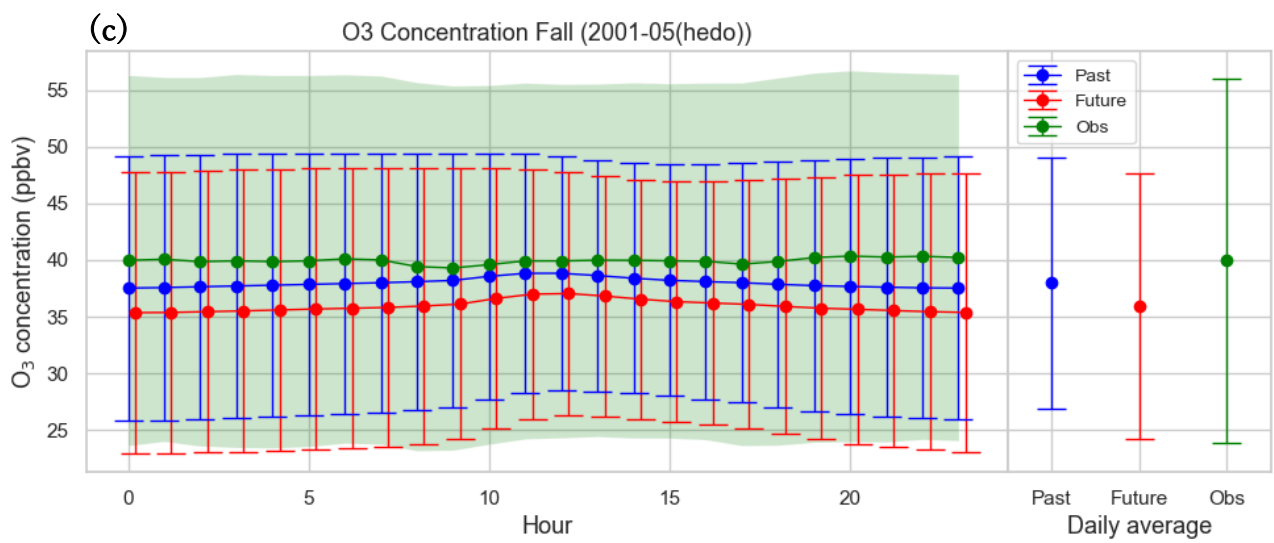
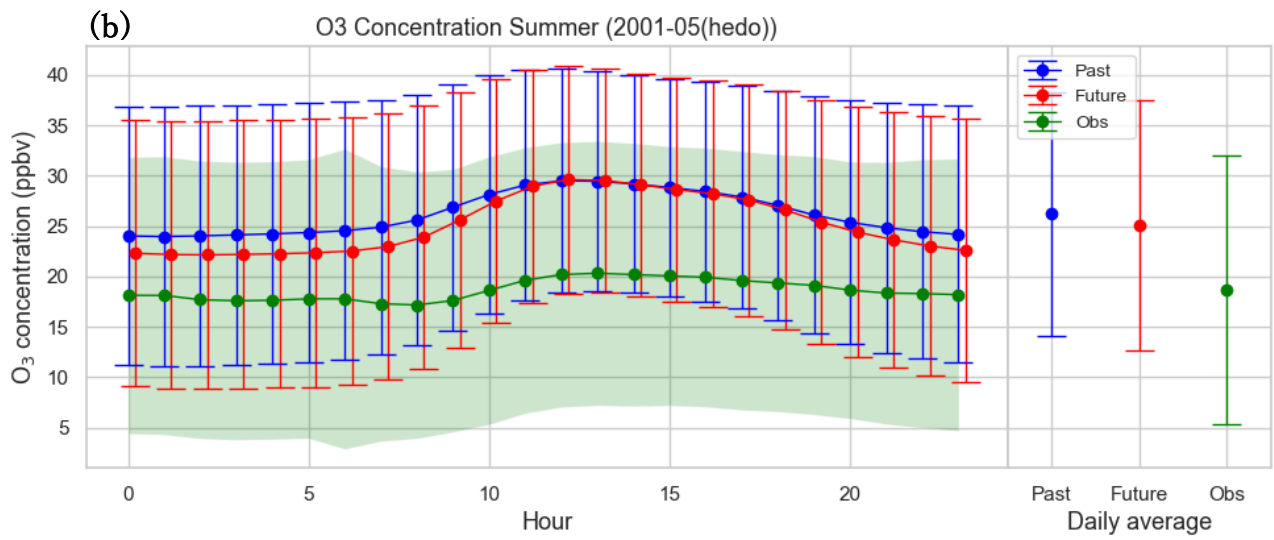
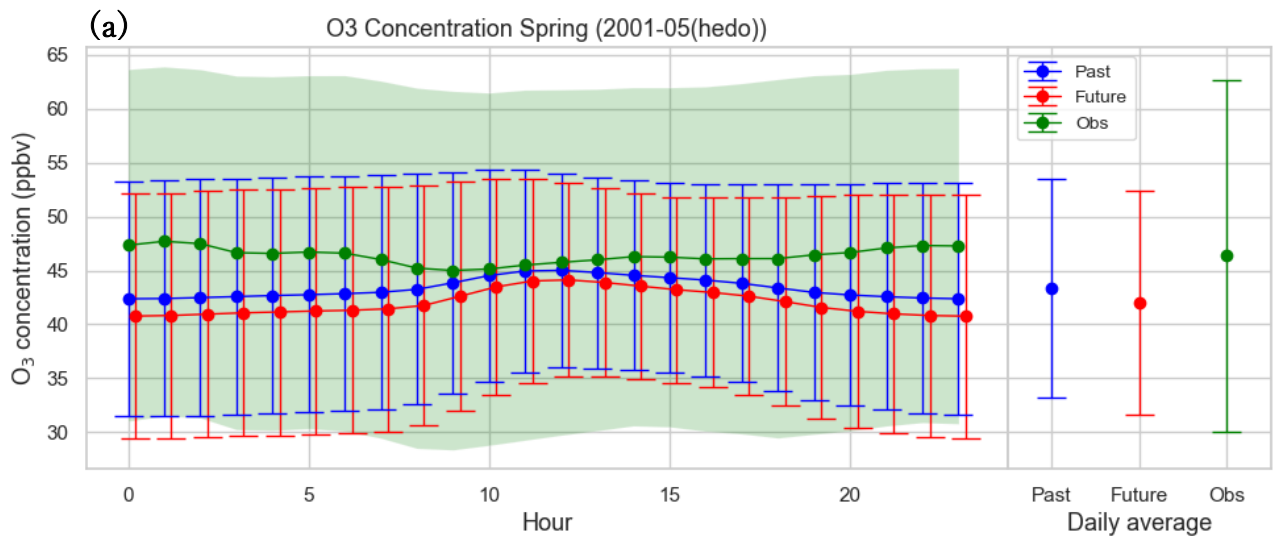


Figure 3.10 辺戸の日変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)



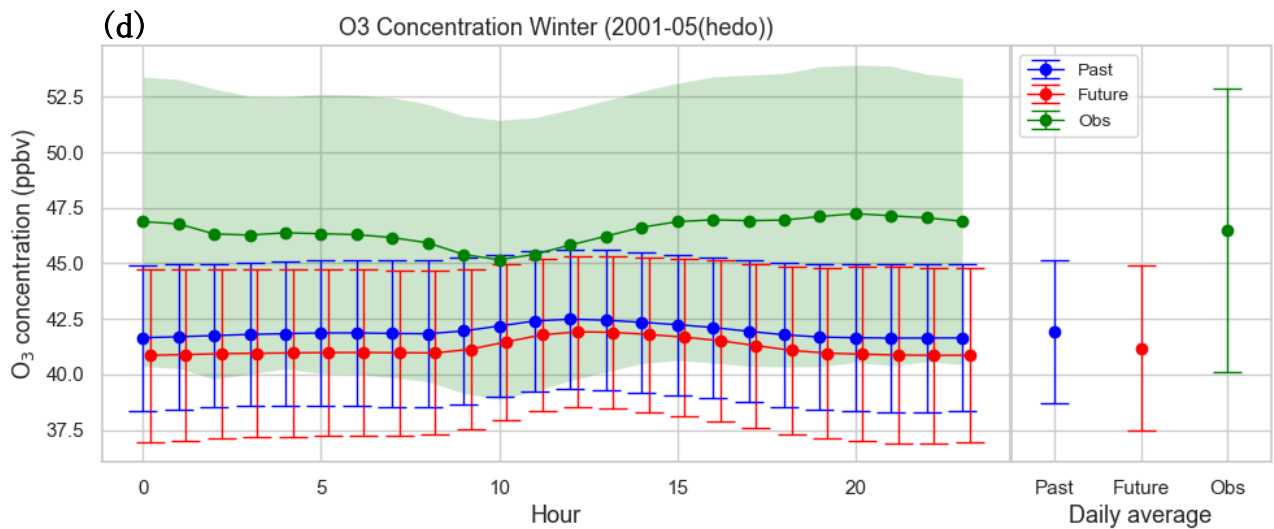


Figure 3.11 辺戸の季節別の日変動グラフ [ppbv]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)
 (a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季

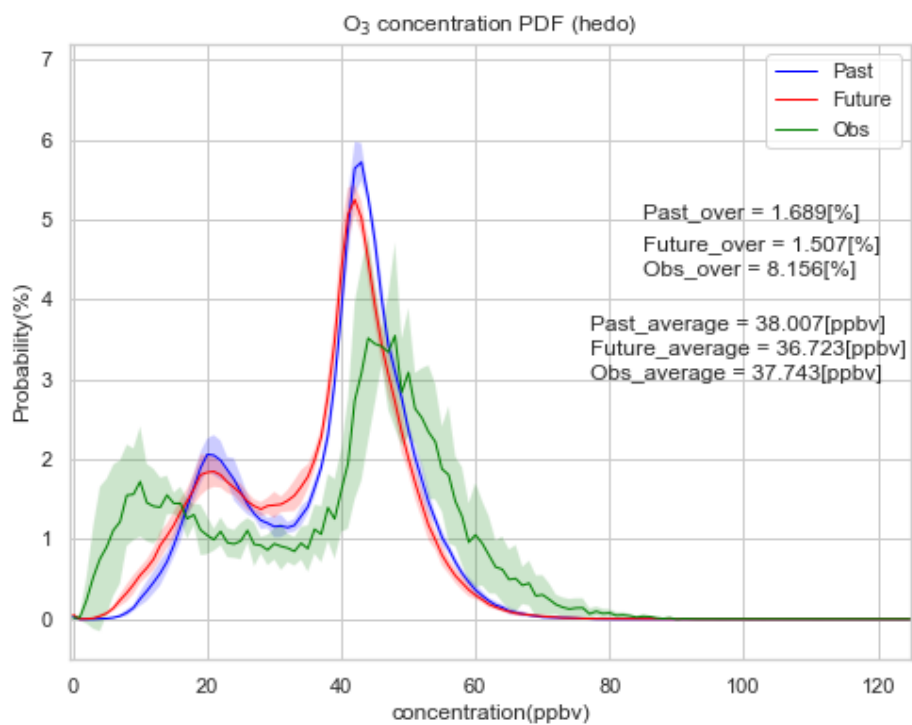
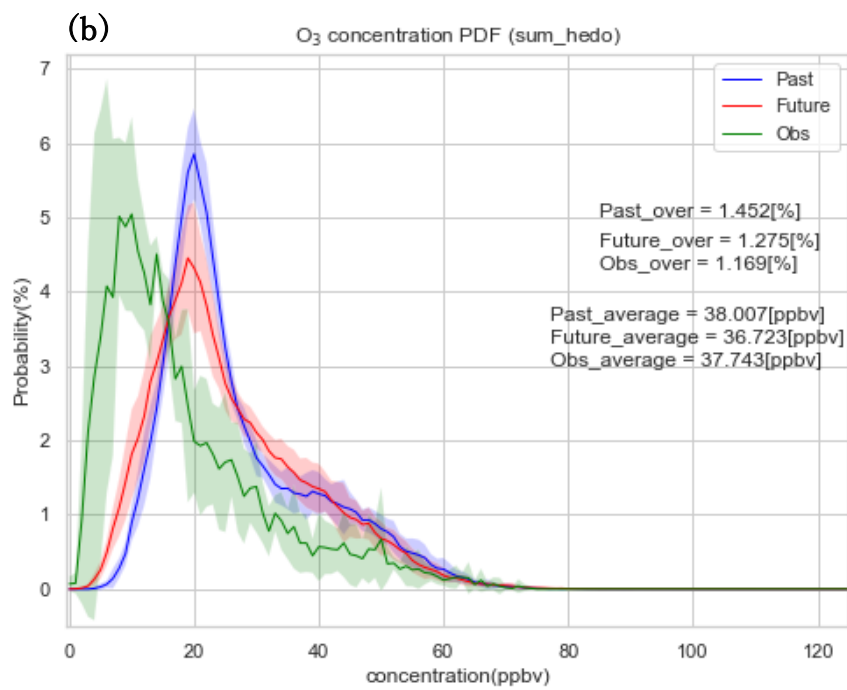
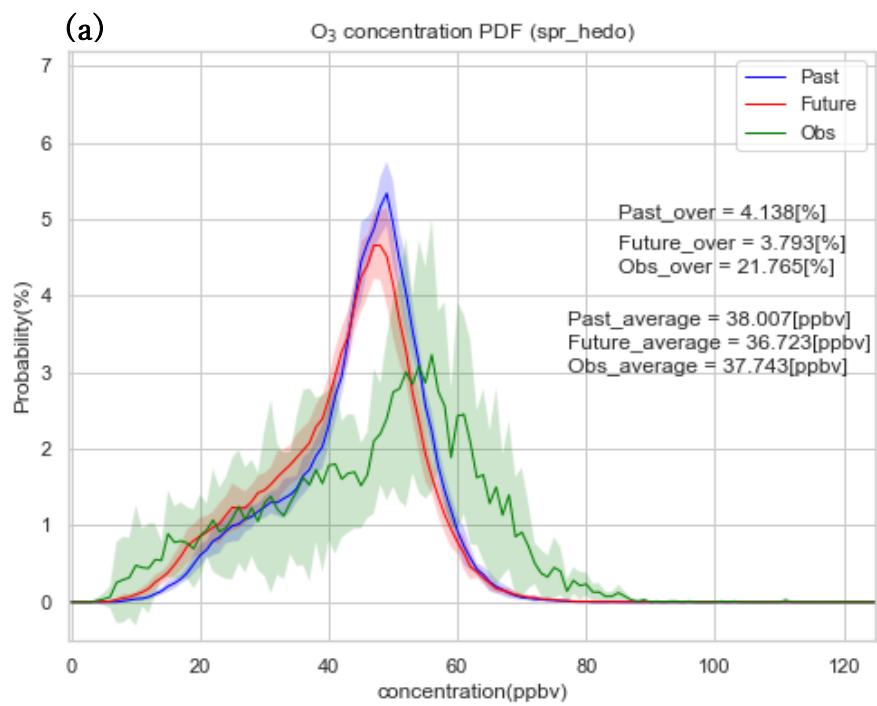


Figure 3.12 辺戸の確率密度関数(PDF) [横軸,ppbv][縦軸,%]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))
 右の数字はそれぞれの実験の環境基準値を超えた割合[%],平均値[ppbv]を示す



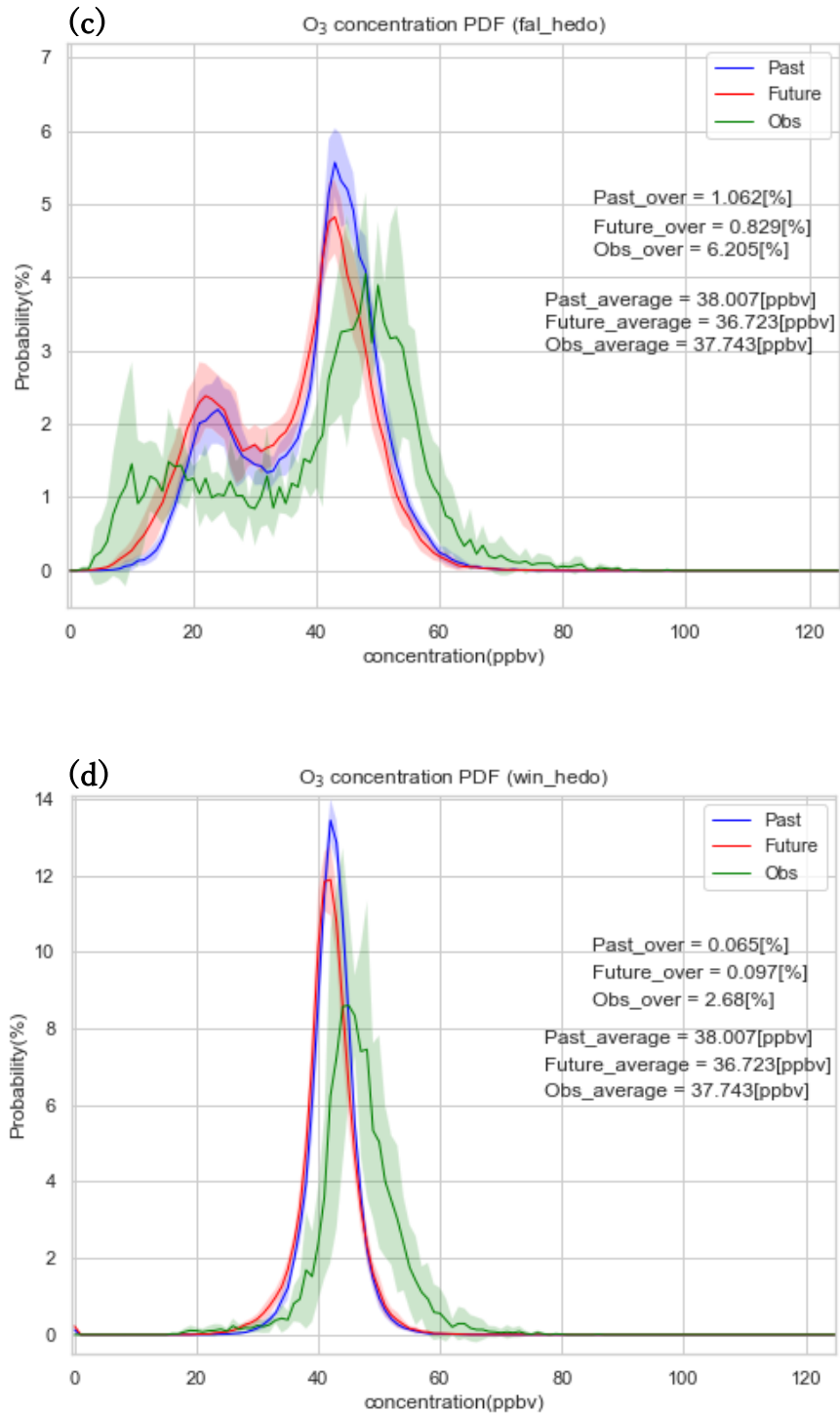


Figure 3.13 辺戸の季節別の確率密度関数(PDF)[横軸,ppbv][縦軸,%]
 (a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))
 右の数字はそれぞれの実験の環境基準値を超えた割合[%],平均値[ppbv]を示す

3.1.2 内陸部

続いて、比較的内陸部に位置する梶原と蟠竜の2地点の結果について検証を行った。Figure 3.14~3.17 に高知県梶原、Figure 3.18~3.21 に島根県蟠竜の結果を示す。年変動グラフを見ると、内陸部もこれまでの結果と同様に、やはり夏の過大傾向は確認される。しかし特徴的なのは、PDF の観測値を見るとわかりやすいが、これまでの地点と比べ、低濃度部分の発生頻度が高くなっていることが挙げられる。この原因としては、ローカルな NO が夜間や朝方に式(14)の化学反応を起こし、O₃ 濃度を減少させていることが考えられる。しかし、日変動グラフや PDF を見るとわかるとおり、モデルがそういった反応部分を再現できておらず、午前中と夜に特に過大評価を示している。

この原因として、まず1つ目に、モデルの解像度が $\Delta x=45\text{km}$ と少し低く、発生源の不均一性を再現できていないことが挙げられる。蟠竜を例に挙げると、この地点は近くに国道9号線が存在しており、本来はNO_x がかなり存在するのだが、 $\Delta x=45\text{km}$ で表現すると、かなり薄い濃度で導出されてしまう。そのため、実際は消費される O₃ がそのまま残ってしまい、高濃度のまま存在していると考えられる。そして2つ目の理由に、細かい地形の起伏による気流の再現が難しいことが挙げられる。梶原については標高がおおよそ800mほどの地点で、周囲を山に囲まれている。そのためこういった粗いメッシュ系では完全に再現できていない可能性がある。

以上の理由から、モデルがうまく観測値を再現できていないのだろうと考えた。事実、日変動グラフを見ると、特に午前中や夜に過大傾向を示しており、NO が少ないために O₃ の消費部分をうまく再現できていないと推察される。

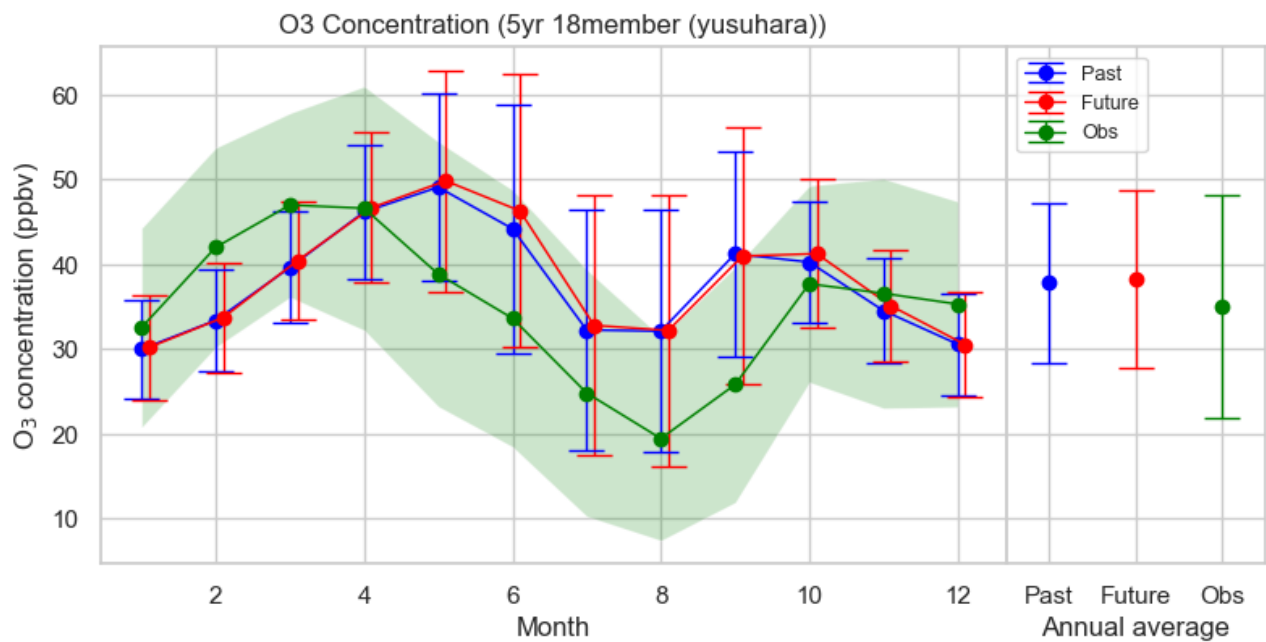


Figure 3.14 梶原の年変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)

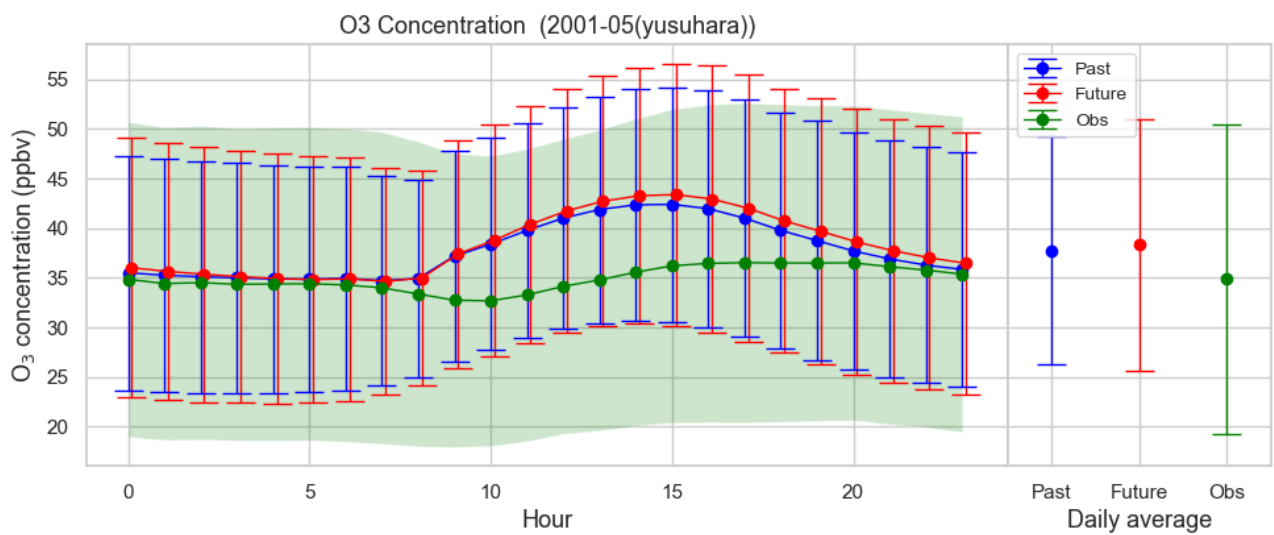
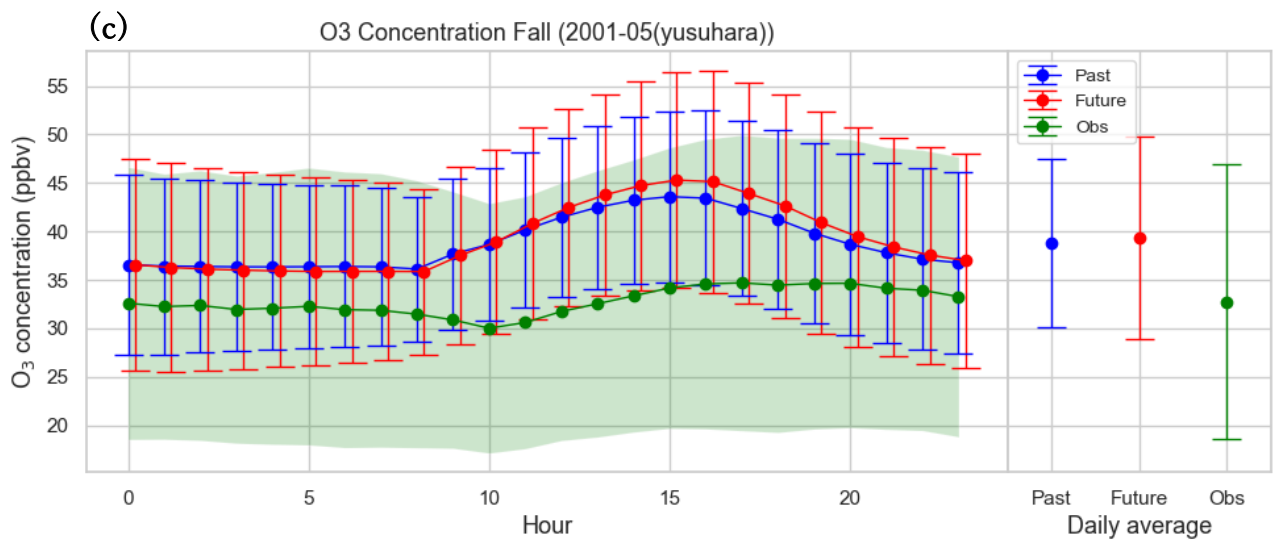
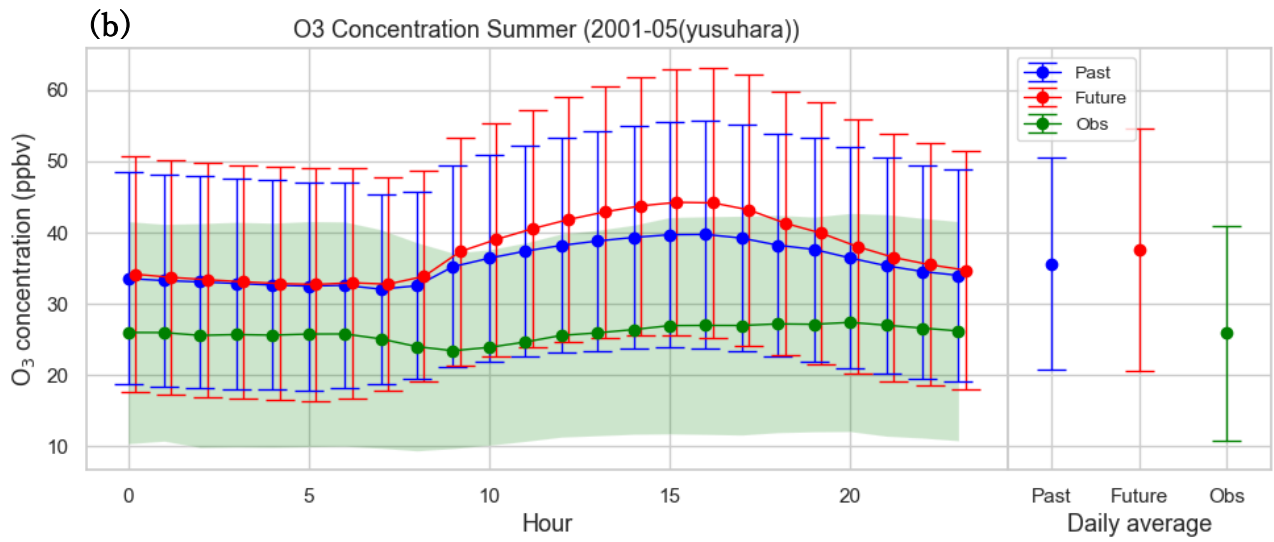
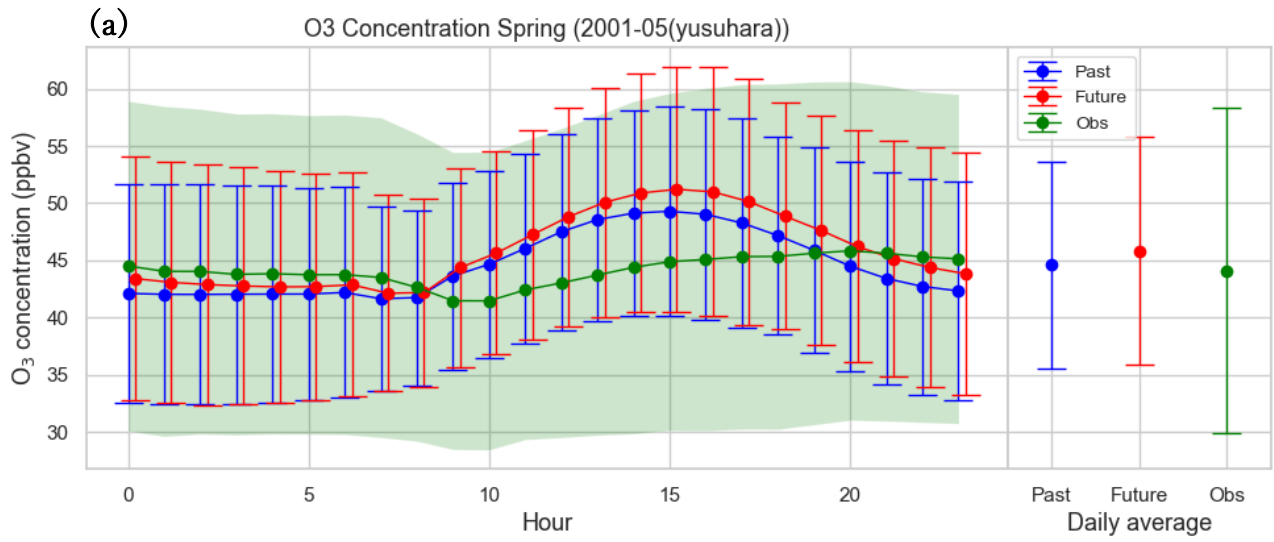


Figure 3.15 梶原の日変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)



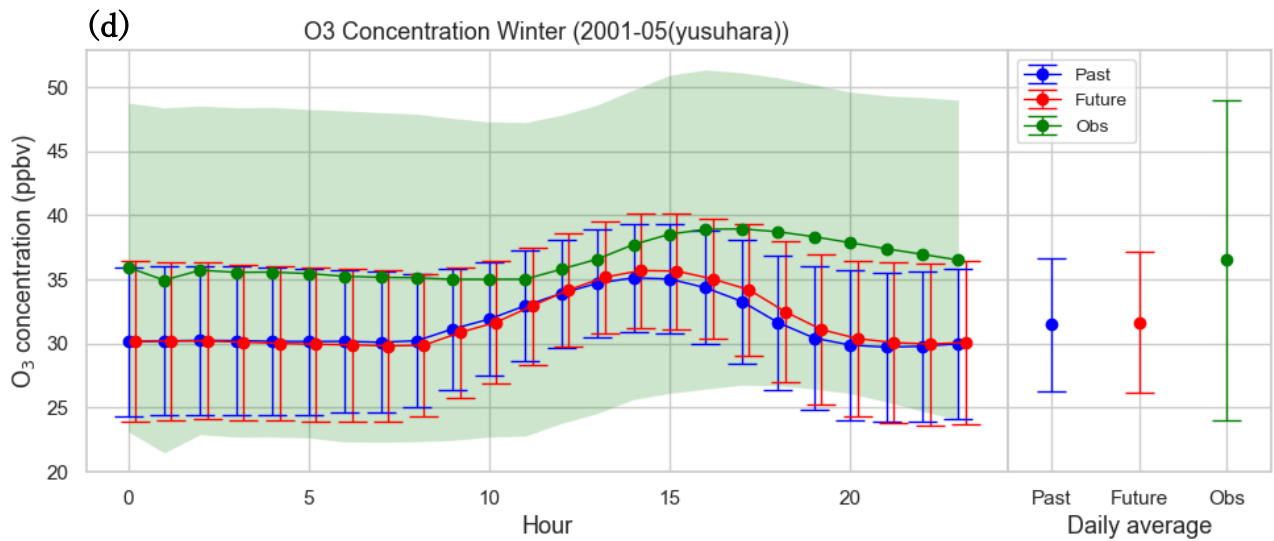


Figure 3.16 梶原の季節別の日変動グラフ [ppbv]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)
 (a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季

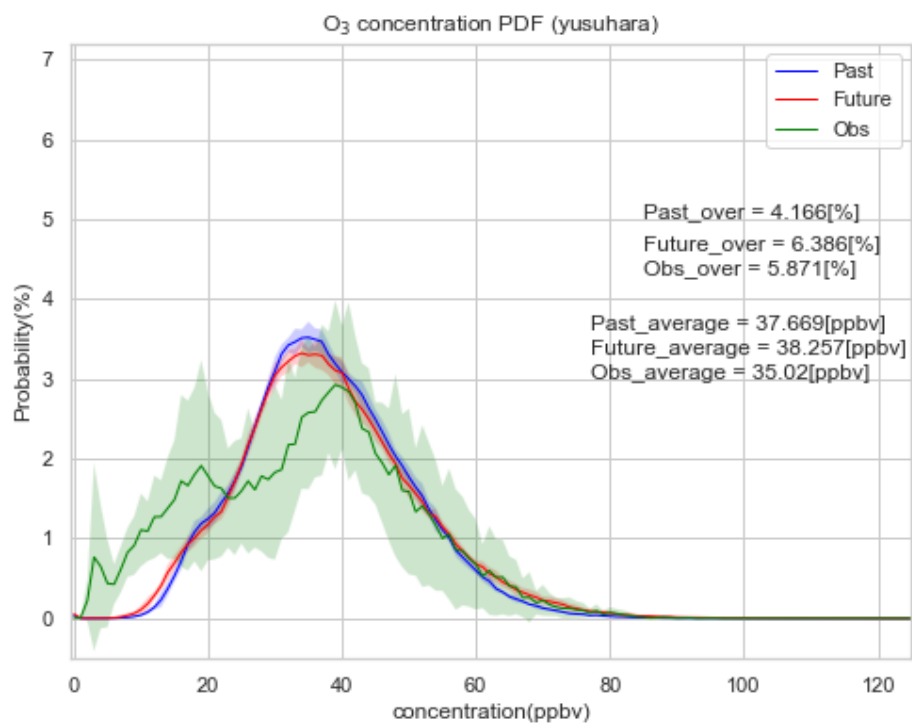


Figure 3.17 梶原の確率密度関数(PDF) [横軸,ppbv][縦軸,%]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))
 右の数字はそれぞれの実験の環境基準値を超えた割合[%],平均値[ppbv]を示す

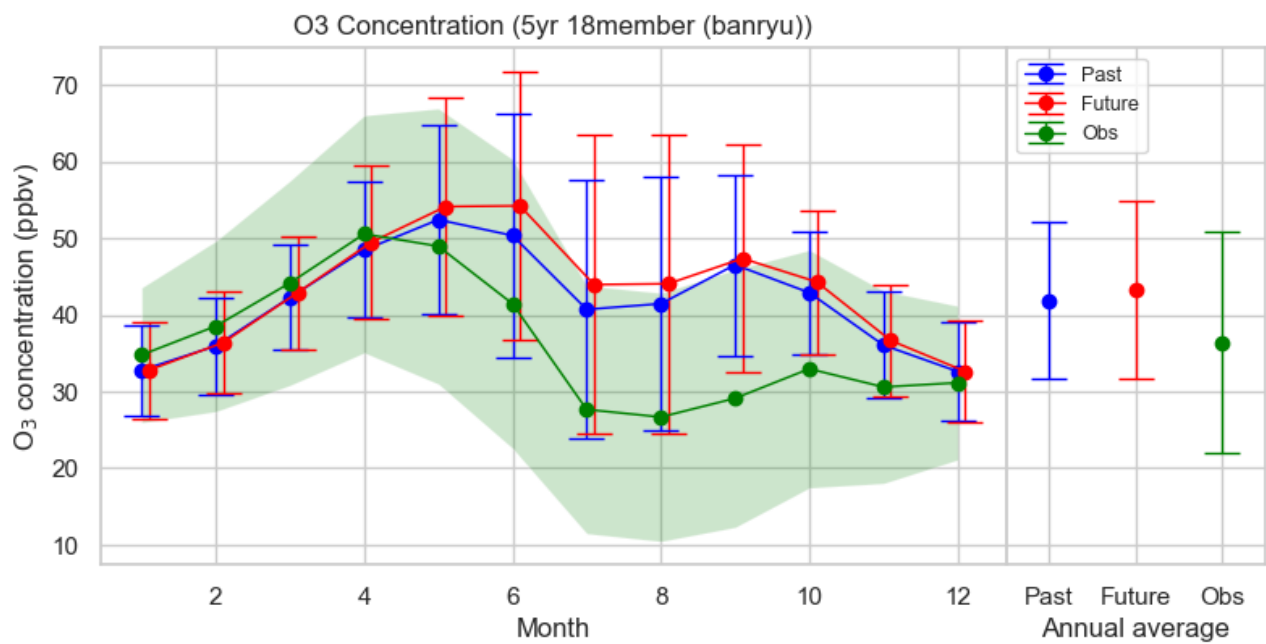


Figure 3.18 蟠竜の年変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)

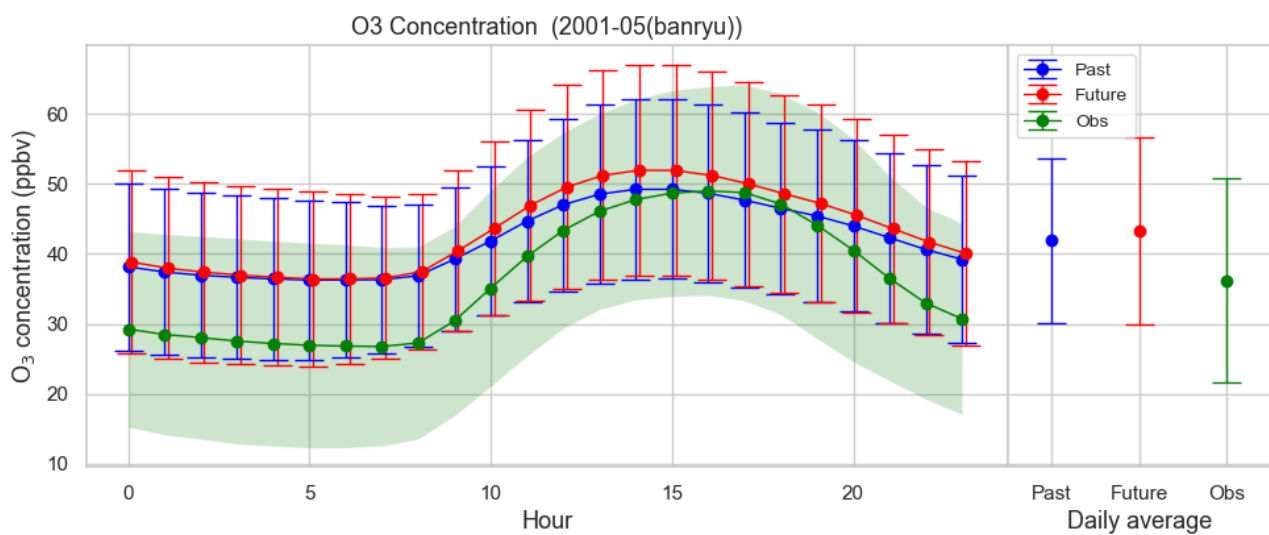
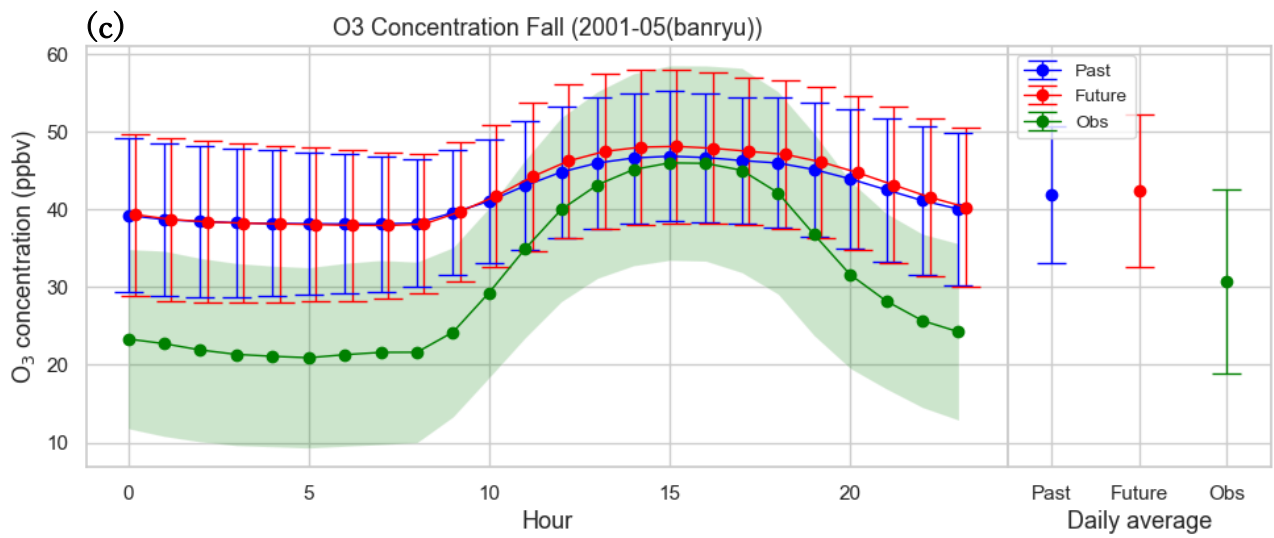
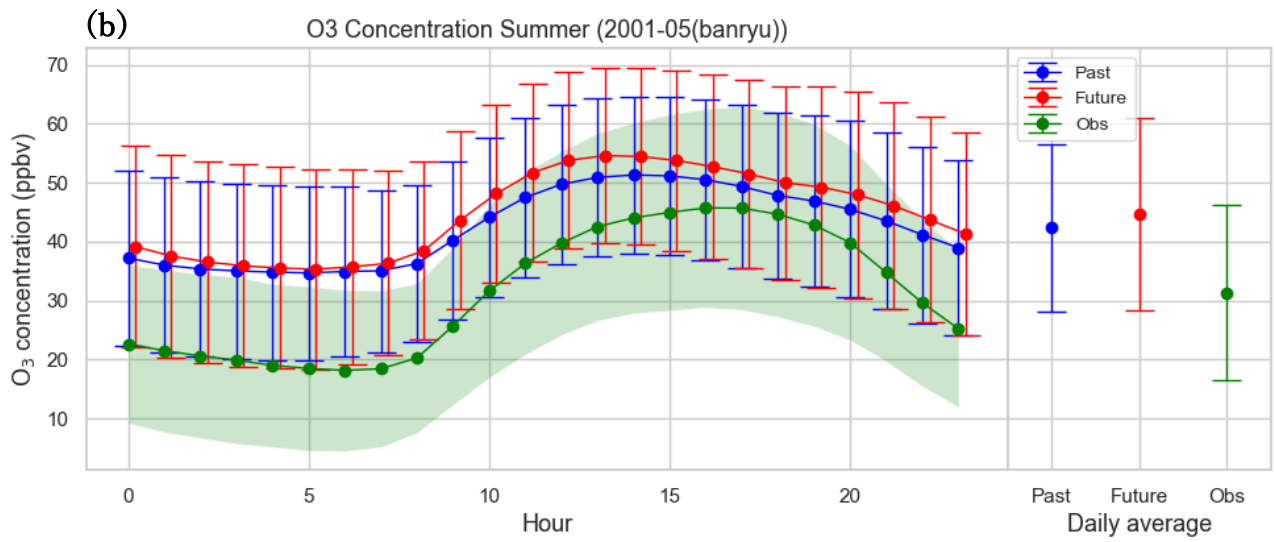
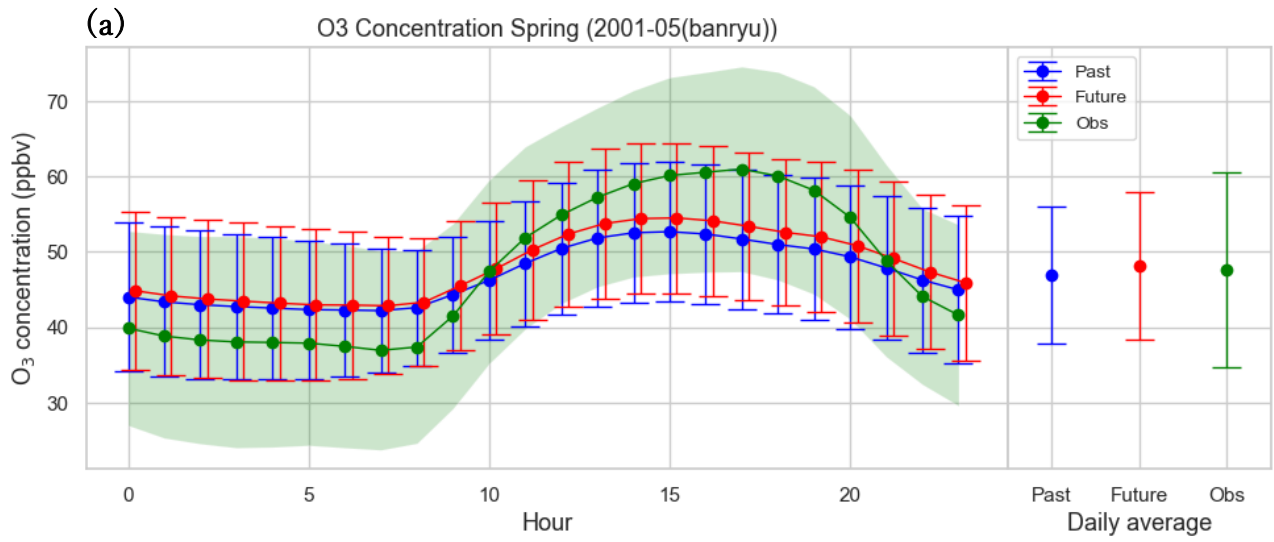


Figure 3.19 蟠竜の日変動グラフ[ppbv]
(緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)



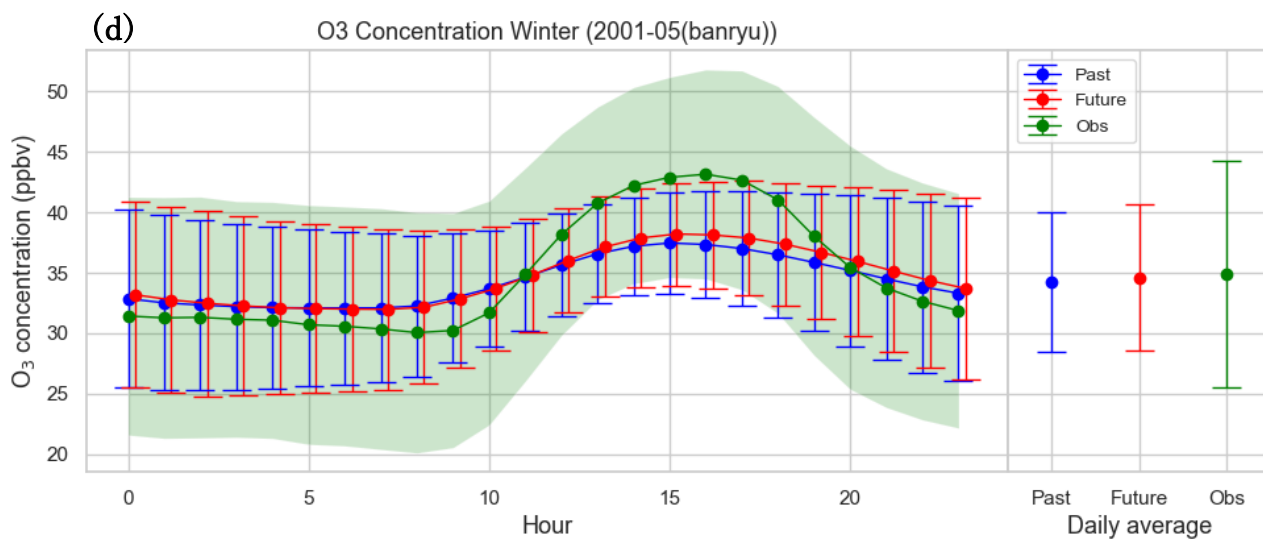


Figure 3.20 蟠竜の季節別の日変動グラフ [ppbv]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))(右：全期間の平均)
 (a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季

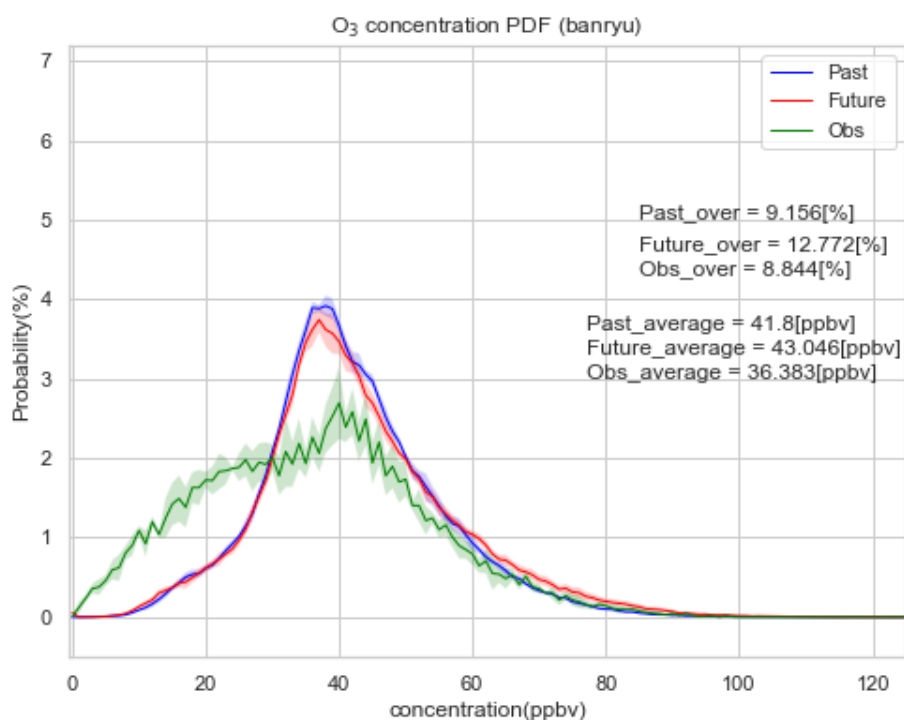


Figure 3.21 蟠竜の確率密度関数(PDF) [横軸,ppbv][縦軸,%]
 (緑：観測値, 青：過去実験, (赤：将来実験))
 右の数字はそれぞれの実験の環境基準値を超えた割合[%],平均値[ppbv]を示す

3.2 O₃への気候応答の検証

続いて、CPF を使用した O₃ への気候応答の検証を行った。Yoshikado(2021)では、関東の夏季 O₃ 高濃度発生域である埼玉の観測値を使用し、O₃ 濃度の気温依存性について考察を行った。Figure3.22 にその研究での、関東圏の 7-8 月の日最高気温と O₃ 濃度の散布図を示す。このように気温と O₃ には相関があり、この節では、こういった関係性を d4PDF-Chem が表現できているのか検証を行う。Figure3.23 に本研究での過去実験結果から作成した埼玉県大宮の日最高気温と O₃ 濃度の散布図を示す。黄色線に囲まれた部分が、Figure3.22 と同じ 20-40°C の範囲である。結果として、Figure3.22 (Yoshikado, 2021) および、Figure3.23 (本研究)ともに日最高気温と O₃ 濃度間の決定係数 R² はそれぞれ 0.517 と 0.565 となり、どちらも強い正の相関があることがわかる。加えて、Yoshikado(2021)では Figure3.24 に示すように、晴天時に限定すると 33°C 以上から気温と O₃ 濃度の正の相関が顕著になることを述べている。Figure 3.23 の本研究の出力結果も、傾きが急峻になる位置は 20°C 付近と少し異なるものの、こういった特徴を捉えていることがわかる。

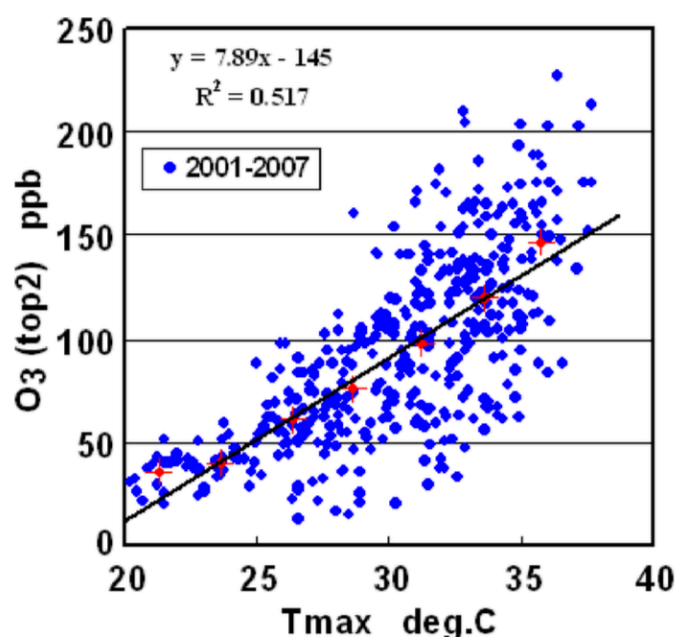


Figure 3.22 日最大気温と日最大 O₃ 濃度の散布図 (埼玉県, 2001~2007, 7-8 月)
日最高気温は浦和の気温毎時値, 日最高 O₃ 濃度は県内上位 2 地点の最高値の平均(top2)を用いた。
(Yoshikado, 2021 より引用)

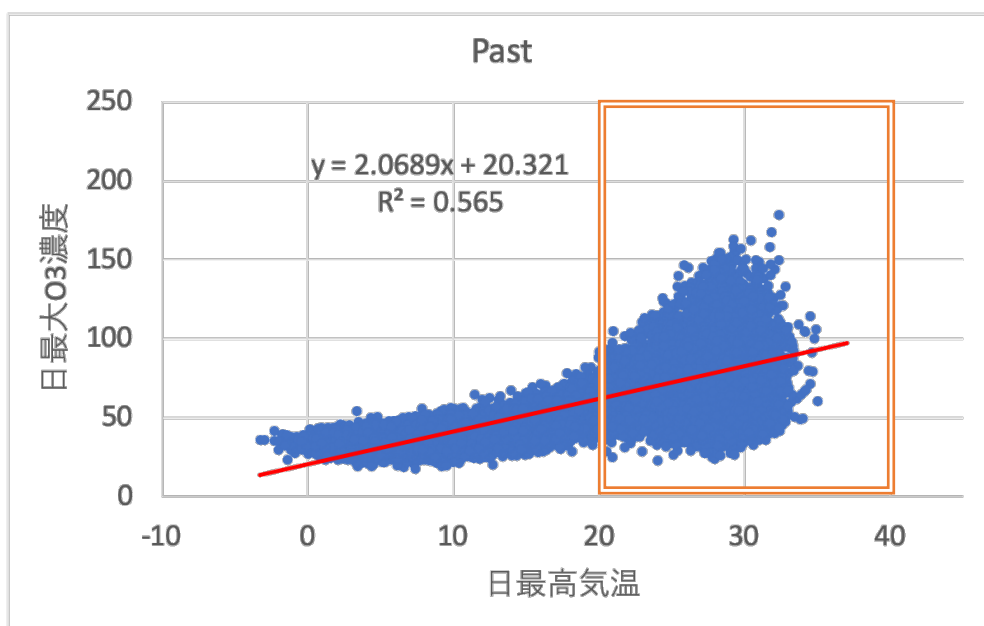


Figure 3.23 過去実験結果から作成した埼玉県大宮の日最高気温と O₃ 濃度の散布図
黄色線：Figure 3.22 と同じ 20-40°Cの範囲

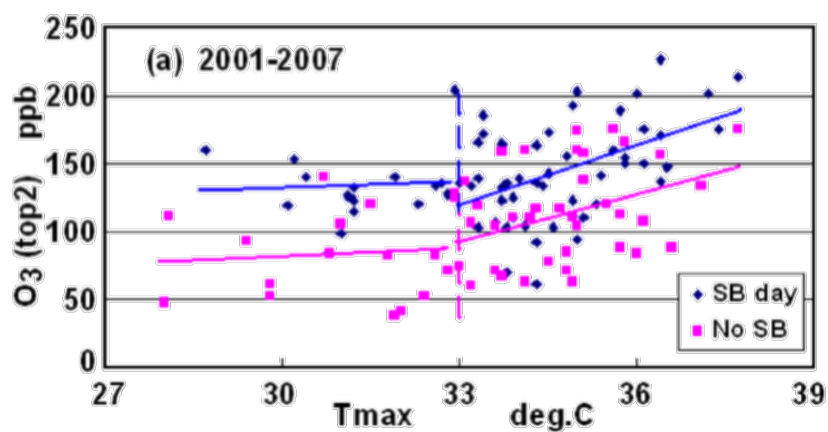


Figure 3.24 日最大気温と日最大 O₃ 濃度の散布図（埼玉県, 2001~2007, 7-8 月, 晴天日に限定）
日最高気温は浦和の気温毎時値, 日最高 O₃ 濃度は県内上位 2 地点の最高値の平均(top2)を用いた。
SB day = 海風発達日, NO SB = 非海風日
(Yoshikado, 2021 より引用)

検証は以上のような結果となった。今回の検証で、一般的な指標である標準偏差や RMSE などあまり使用しなかった理由としては、このシミュレーションはそもそも現実の気象場のナッジングを行っておらず、観測値と一対一で合わせることを目的としていない計算であるためである。d4PDF のような大量のアンサンブルデータを使用した理由としては、不確実性を定量的に求めること、さまざまな現象がどれくらいの頻度で発生するのかの評価、というところにある。そのため、「いつ何が起きる」という部分を評価する研究ではないため、このような指標は使用していない。そういったことから、各地点の傾向や、季節変化、PDF の概形などがある程度一致していれば、この計算は担保されていると考えても良いと考える。今回の実験では、年平均や日変動グラフなどはほとんどの地点で標準偏差内に収まった結果となった上、PDF もピーク山の個数や概形の特徴をしっかりと再現していた。加えて、NHM-Chem は MICS-AsiaIII (Itahashi et al., (2020)) 等のモデル相互比較に参加しており、他のいくつかのモデルと比較評価が行われているが、他モデルと比べて遜色のない結果であった。こういったことから、このモデルは「これからの実験に使用して問題ない精度を保持している」と結論づけ、精度検証を終了とする。

3.3 気温上昇に伴う O₃ の変動

この節では、過去実験と 4 K 上昇した環境下での将来実験の二種類で導出された、O₃ 濃度、日最高濃度、環境基準値(60ppbv)、注意報発令基準値(120ppbv)を超過した日数を比較・評価を行い、気温上昇が O₃ に与える影響の解析を行う。表記してある濃度値や濃度変化量、変化率の幅は、d4PDF-Chem のアンサンブル計算によって得られたものである。また、アンサンブルスプレッドは、アンサンブル計算間で求めた標準偏差を表す。

3.3.1 O₃ 濃度

2001-05 年の 1h 間隔の過去実験での O₃ 濃度のデータ 18 メンバーの平均値、2101-05 の将来実験の O₃ 濃度のデータ 18 メンバーの平均値を使用して、考察を行う。Figure 3.25 に(a)過去実験における O₃ 濃度の平均値、(b)将来実験における O₃ 濃度の平均値、(c)気温上昇に伴う(すなわち、将来実験-過去実験)濃度変化量(ppbv)、(d)気温上昇に伴う濃度変化率(%)をそれぞれ示す。

まず、O₃ 濃度の平均値は(a)過去実験、(b)将来実験ともに関東や関西、中京、太平洋ベルトなど都市域で低い値を示した。これは NO の多い地点で発生する NO タイトレーションの効果によって、平均値が下がっているためである(次節の日最高濃度の項では、逆に都市域周辺が常に極大値を示す地点となっている)。一方、気温上昇によって、北海道北東部を除き、全国的に O₃ 濃度の増加傾向が見られた(c,d)。すべてのアンサンブルメンバーが、過去実験のアンサンブル平均に対し高い O₃ 濃度を示し、O₃ 濃度の減少を予測したメンバーはなかった。特に、東京や名古屋、大阪などの大都市圏で増加が顕著であった。関東圏を例にあげると、人為起源排出量は固定であるにもかかわらず、O₃ 濃度は年平均値で 2~2.5ppbv(8~10%)増加した。中京や関西においても、O₃ 濃度は年平均値で 1.5~2.0ppbv(6~8%)ほど増加した。

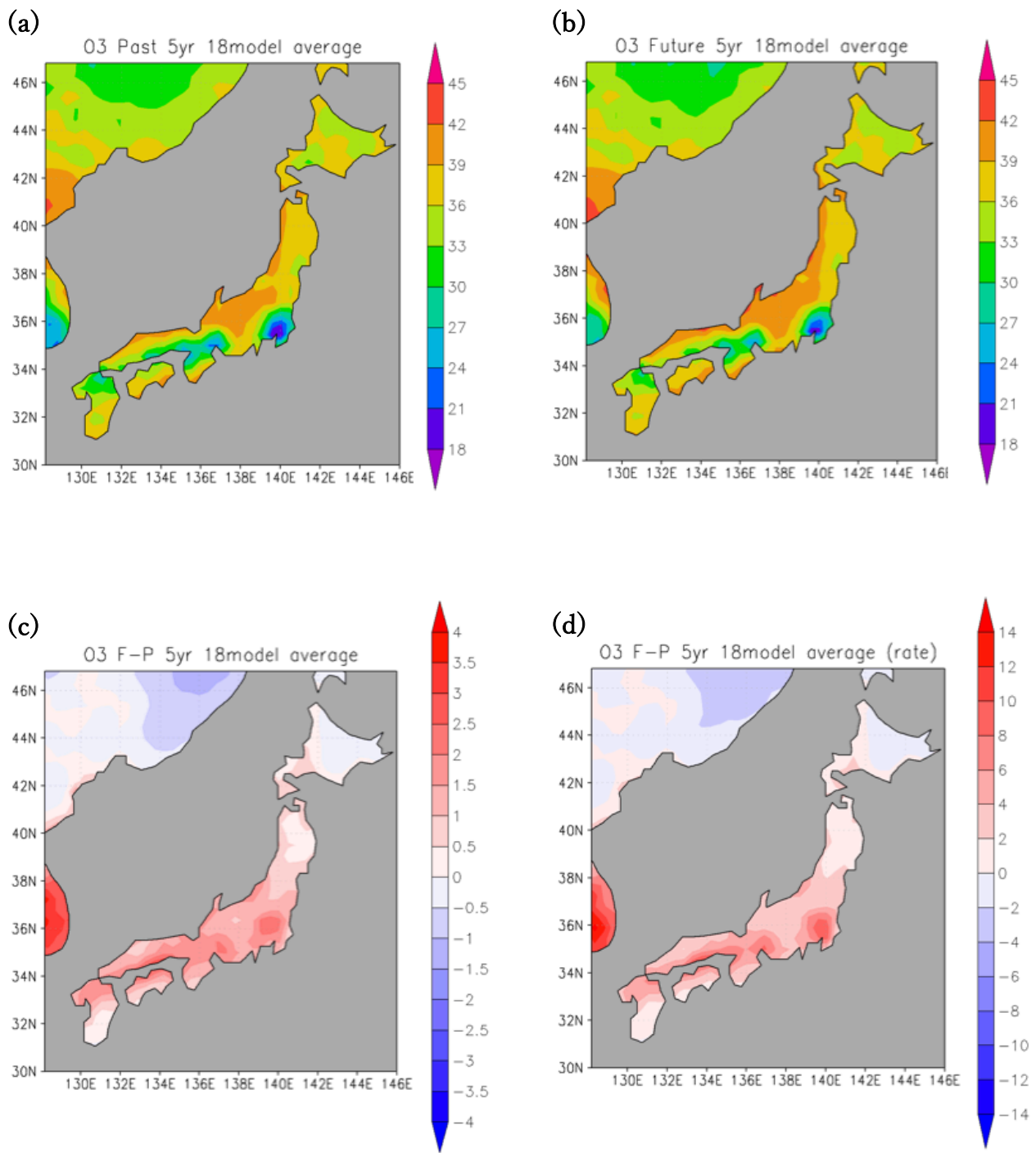


Figure 3.25 O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

続いて、O₃濃度の分布や気温上昇の影響の季節による違いを調べるために、同じデータを使用した季節別の O₃濃度の変動について示す。Figure 3.26 (a)~(d)にそれぞれ春の過去実験における O₃濃度の平均値、将来実験における O₃濃度の平均値、過去実験から将来実験にかけての変化量(ppbv)と変化率(%)について示す。別の季節についてはそれぞれ、夏 (Figure 3.27)、秋 (Figure 3.28)、冬 (Figure 3.29)に示す。まず、過去・将来実験の O₃濃度の平均値を見ると、どの季節も共通で都市域が低くなっている。これは先程の理由と同様に、NO タイトレーションによる減少から、平均値が引き下げられているのが原因である。そのため、日本海側の濃度分布が比較的高い傾向にあるように見てとれるが、都市域のタイトレーションによる低濃度と比較して、見かけ上そう見えているだけである。

過去実験から将来実験にかけての変化量、変化率に注目する。こちらでも基本的に都市域を中心に増加傾向が確認されたが、冬のみ全国的に減少傾向が見られた。具体的には、東京を例にあげると、春が 1.5-2.0ppbv(4.0-6.0%)の増加、夏が 6.0~8.0ppbv(18.0~21.0%)の増加、秋が 2.0~2.5ppbv(8.0~10.0%)の増加、そして冬が 0.6~0.8ppbv(4.0~6.0%)の減少となり、夏季におけるオゾン濃度の増加が顕著となった。

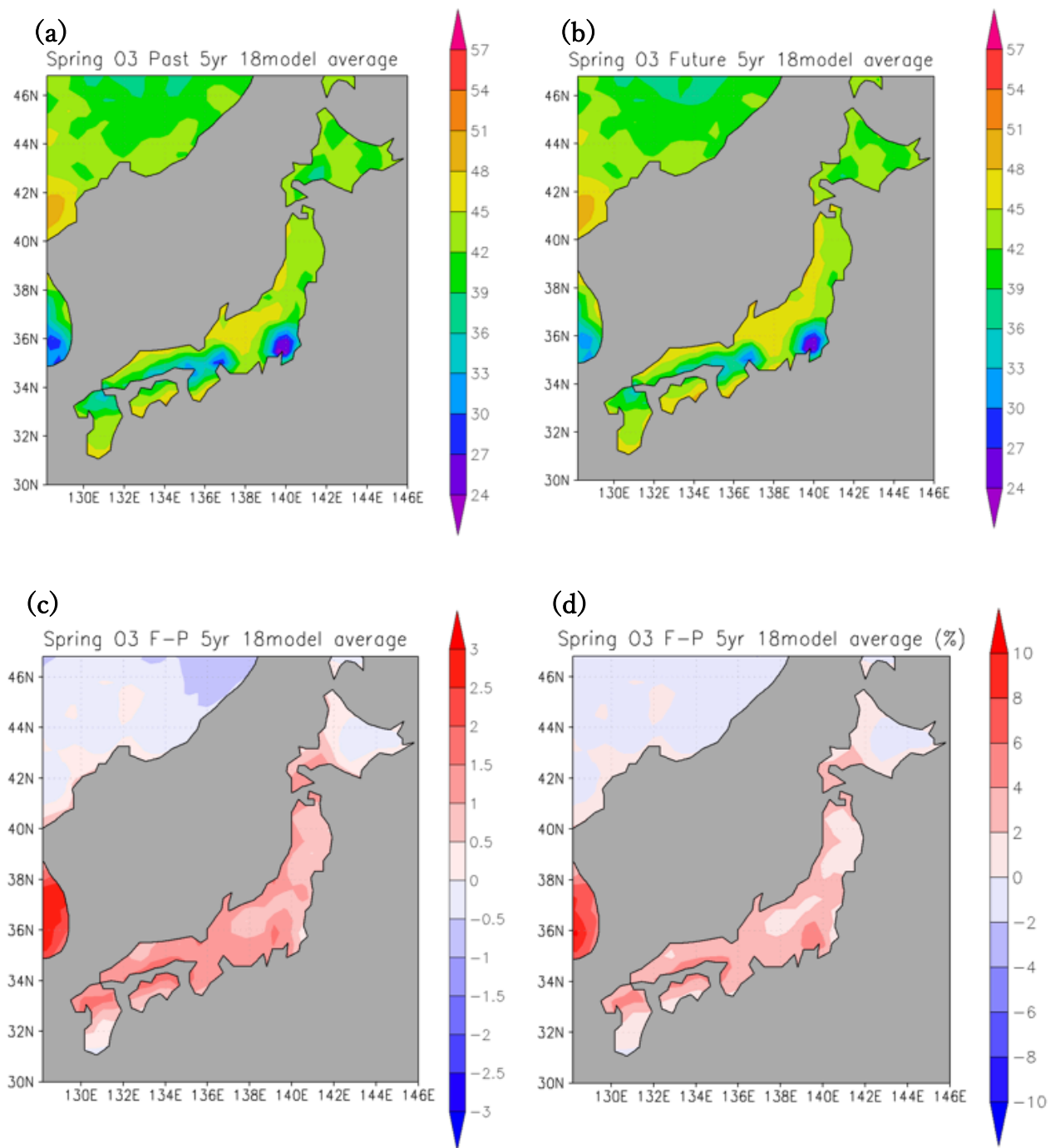


Figure 3.26 春季の O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

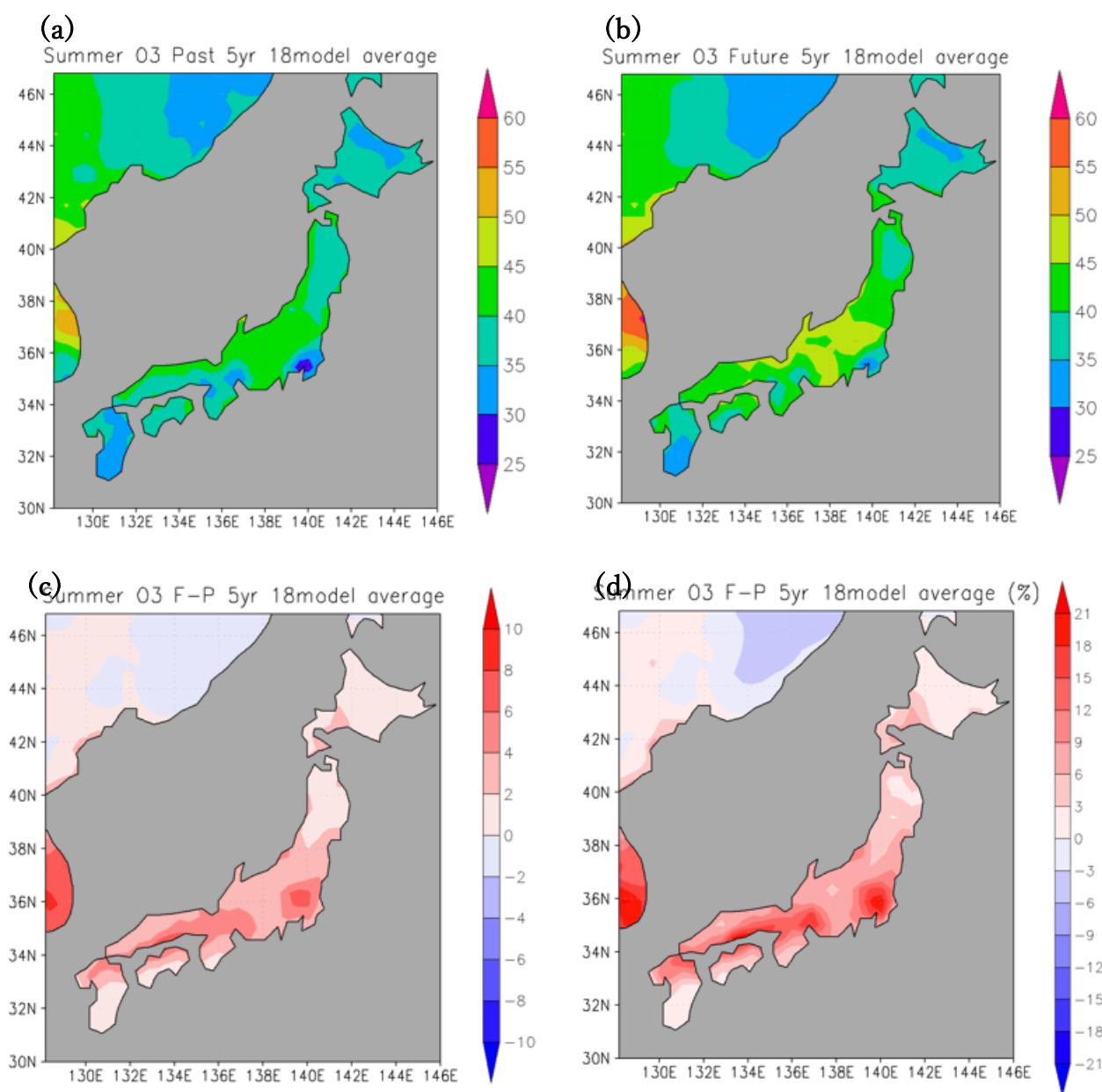


Figure 3.27 夏季の O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

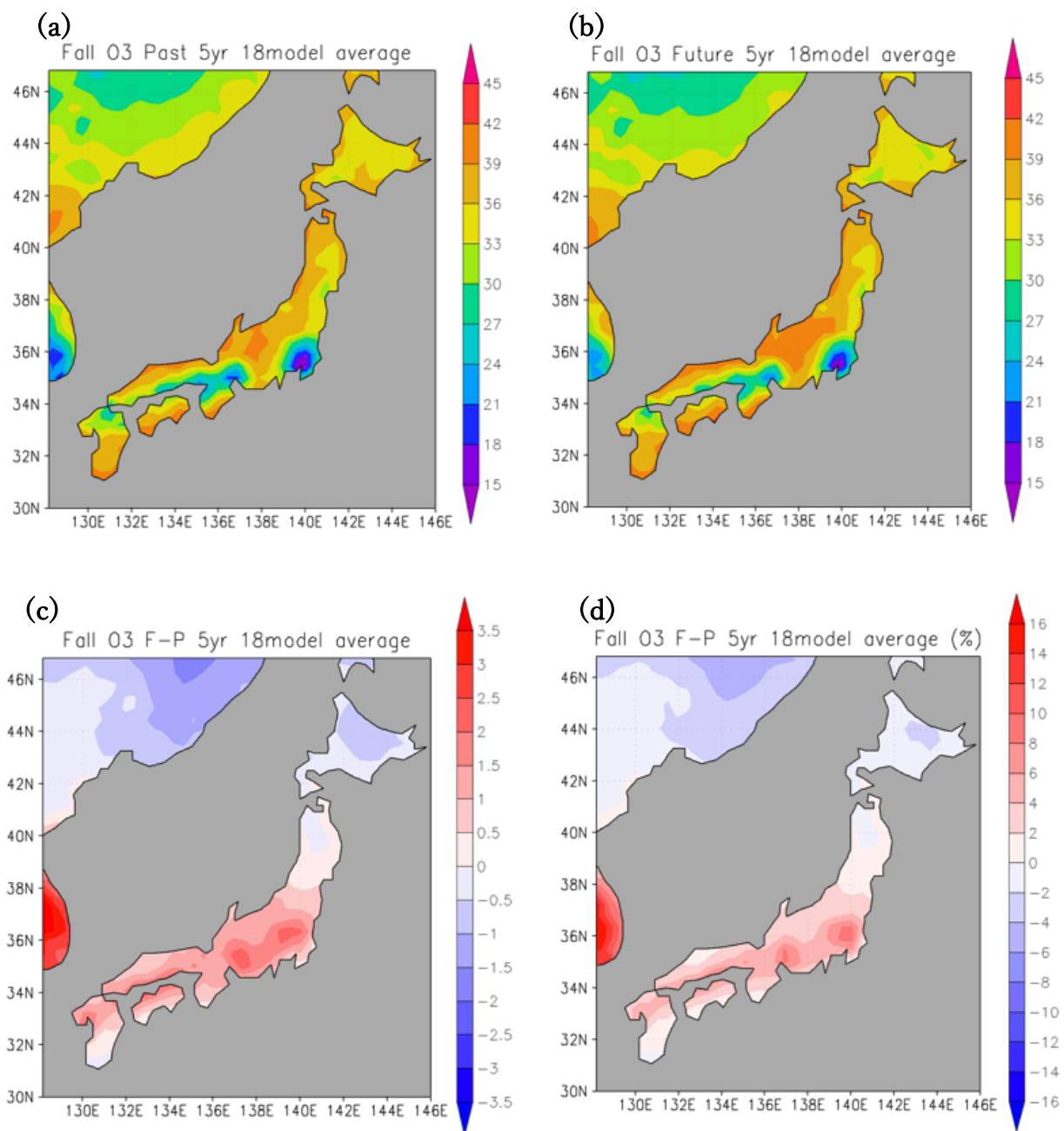


Figure 3.28 秋季の O_3 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

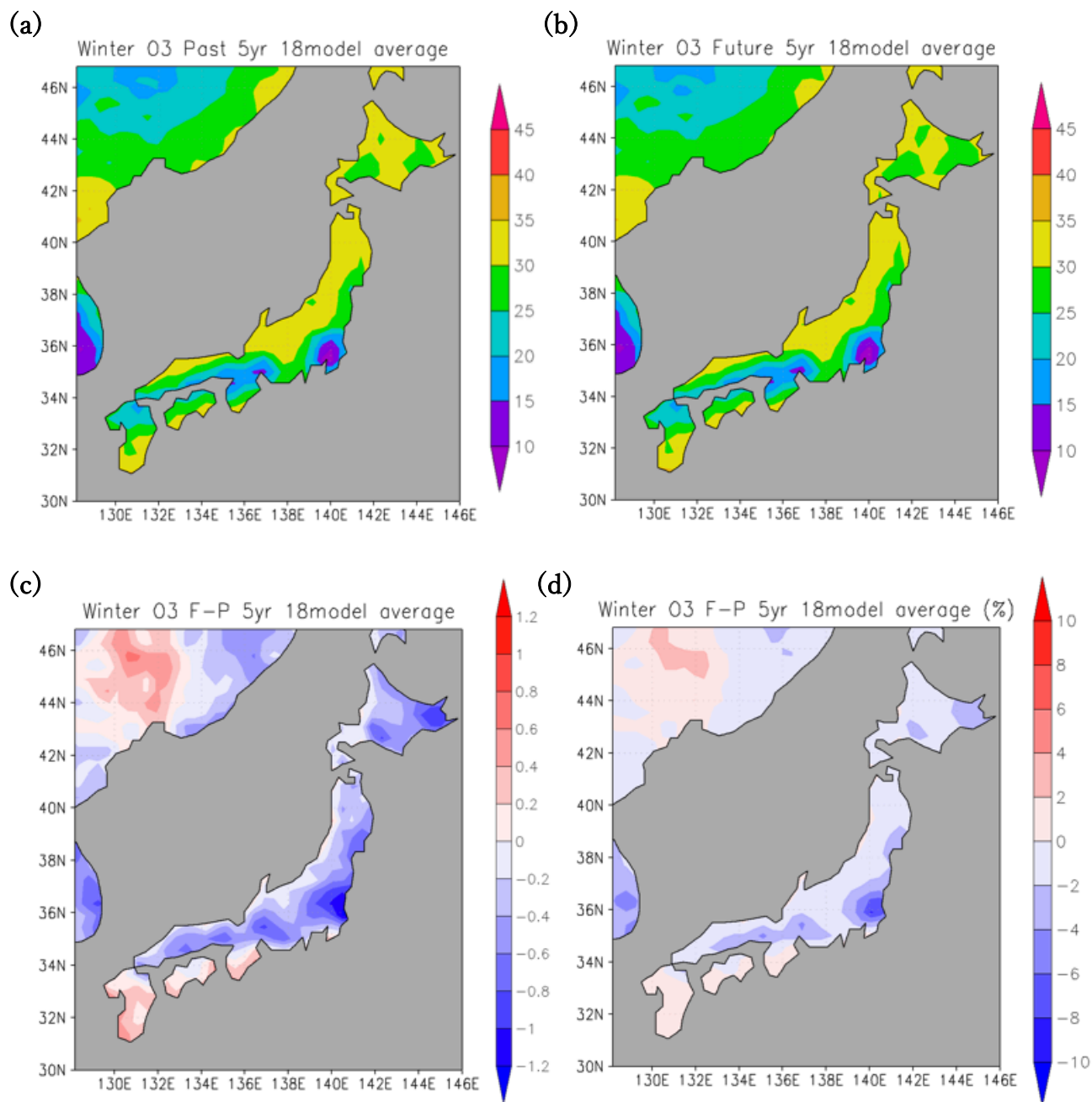


Figure 3.29 冬季の O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

3.3.2 日最高 O₃ 濃度

次に、日最高 O₃ 濃度について調べる。3.1 節で示したとおり、O₃ 濃度には日内変動が見られ、日中と夜間の濃度差が大きい。そのため、健康影響等を評価する際には、1 日の中での最高濃度について調べる必要がある（例えば、Figure 1.3）。Figure 3.30 (a)に過去実験における O₃ の日最高濃度の平均値、(b)に将来実験における O₃ の日最高濃度の平均値、(c)に気温上昇に伴う日最高濃度の変化量(ppbv)、(d)に変化率(%)をそれぞれ示す。Table 3.1 には、日本国内の抜粋した各地点の変化量の平均とアンサンブルスプレッド(ppbv)を、Table 3.2 には各地点の日最高気温の過去実験、将来実験の平均値(K)、変化量の平均とアンサンブルスプレッド(K)を示している。

まず、日最高濃度の平均値に注目する。日最高濃度の平均値では、前節の全日平均値と異なり、都市域周辺で高い値が見られた。Table 3.1 と Table 3.2 に示される通り、特に埼玉などの高い日最高気温が観測されやすい地点などでの極大が見られ、こちらからも気温と O₃ 濃度の相関が見て取れた。また、地域差がはっきりと見られることが確認された。都市域に位置する埼玉の変化量は +6.789(±1.362)ppbv であったのに対し、地方に位置する秋田は日最高気温の上昇が埼玉に匹敵するにもかかわらず +1.330(±0.383)ppbv の増加しか見られなかった。後の章で詳しく考察を行うが、秋田などの地方は NO_x-sensitive 領域、埼玉などの都市域は VOC-sensitive 領域にあり、オゾンの生成環境が大きく異なることが考えられる。季節別での考察(Figure3.31~3.34)としては、春、夏、秋については都市部を中心に増加が顕著なのが確認されたが、冬は前節の平均濃度の結果と同様な減少傾向が全国的に見られた。加えて冬には、日本海沿岸と西日本においてのみ増加傾向が確認された。都市域の O₃ 濃度の増加に関しては、夏季が他の季節に比べ突出していた。

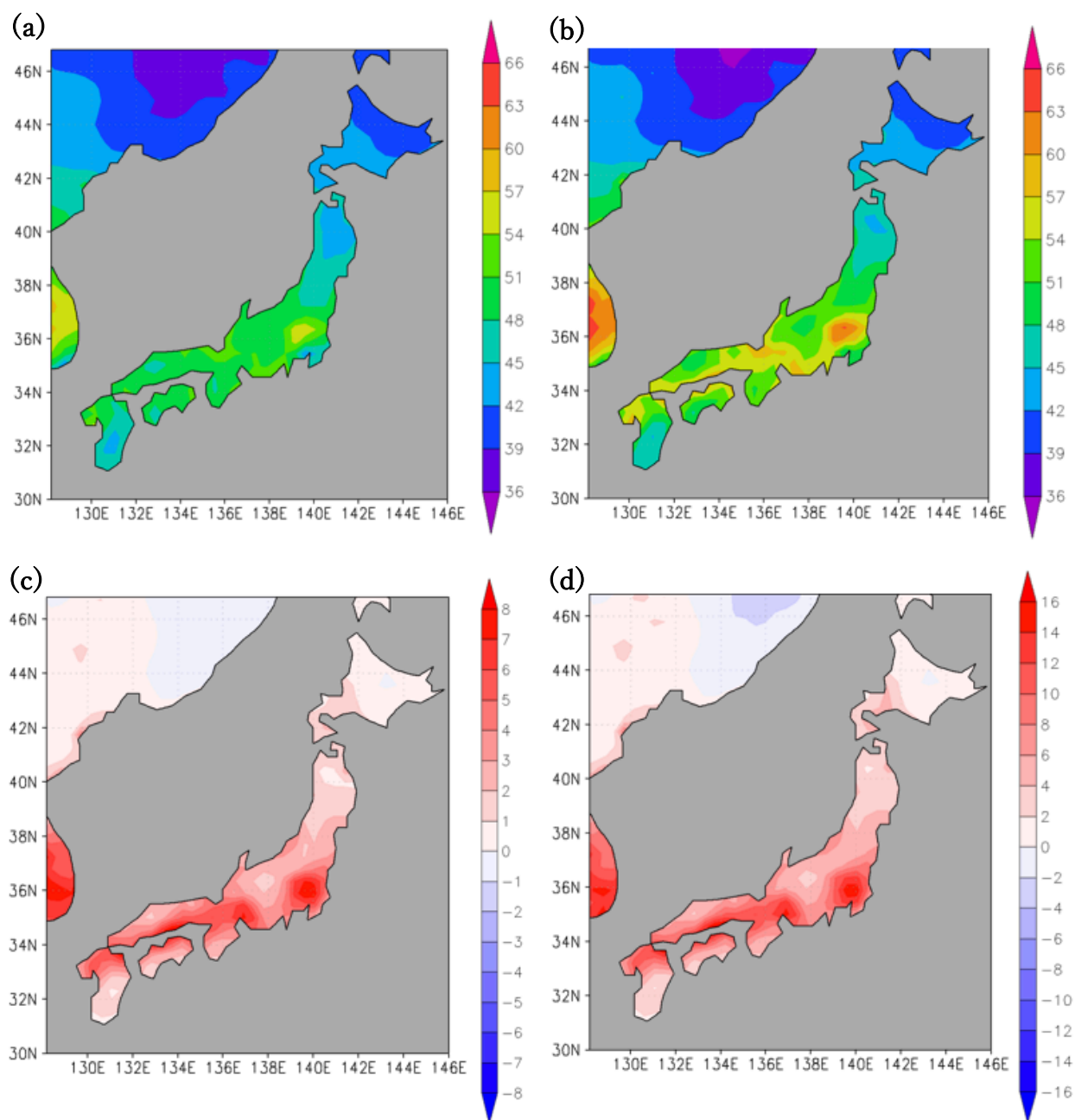


Figure 3.30 日最高 O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]

(c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

Table 3.1 日本国内各地点の日最高 O₃ 濃度変化量とアンサンブルスプレッド [ppbv]

対象地点名	変化量(±アンサンブルスプレッド) (ppbv)
東京	+4.668(±1.215)
埼玉	+6.789(±1.362)
大阪	+4.498(±1.166)
福岡	+5.419(±1.076)
秋田	+1.330(±0.383)
金沢	+4.011(±0.722)

Table 3.2 日本国内各地点の日最高気温平均値(過去実験,将来実験)と変化量とアンサンブルスプレッド (K)

対象地点名	過去実験平均値 (K)	将来実験平均値 (K)	変化量(±アンサンブル スプレッド) (K)
東京	290.886	294.519	+3.633(±0.347)
埼玉	290.322	294.178	+3.856(±0.357)
大阪	290.495	294.101	+3.606(±0.358)
福岡	290.330	293.898	+3.568(±0.305)
秋田	285.366	289.221	+3.855(±0.405)
金沢	288.100	291.723	+3.623(±0.365)

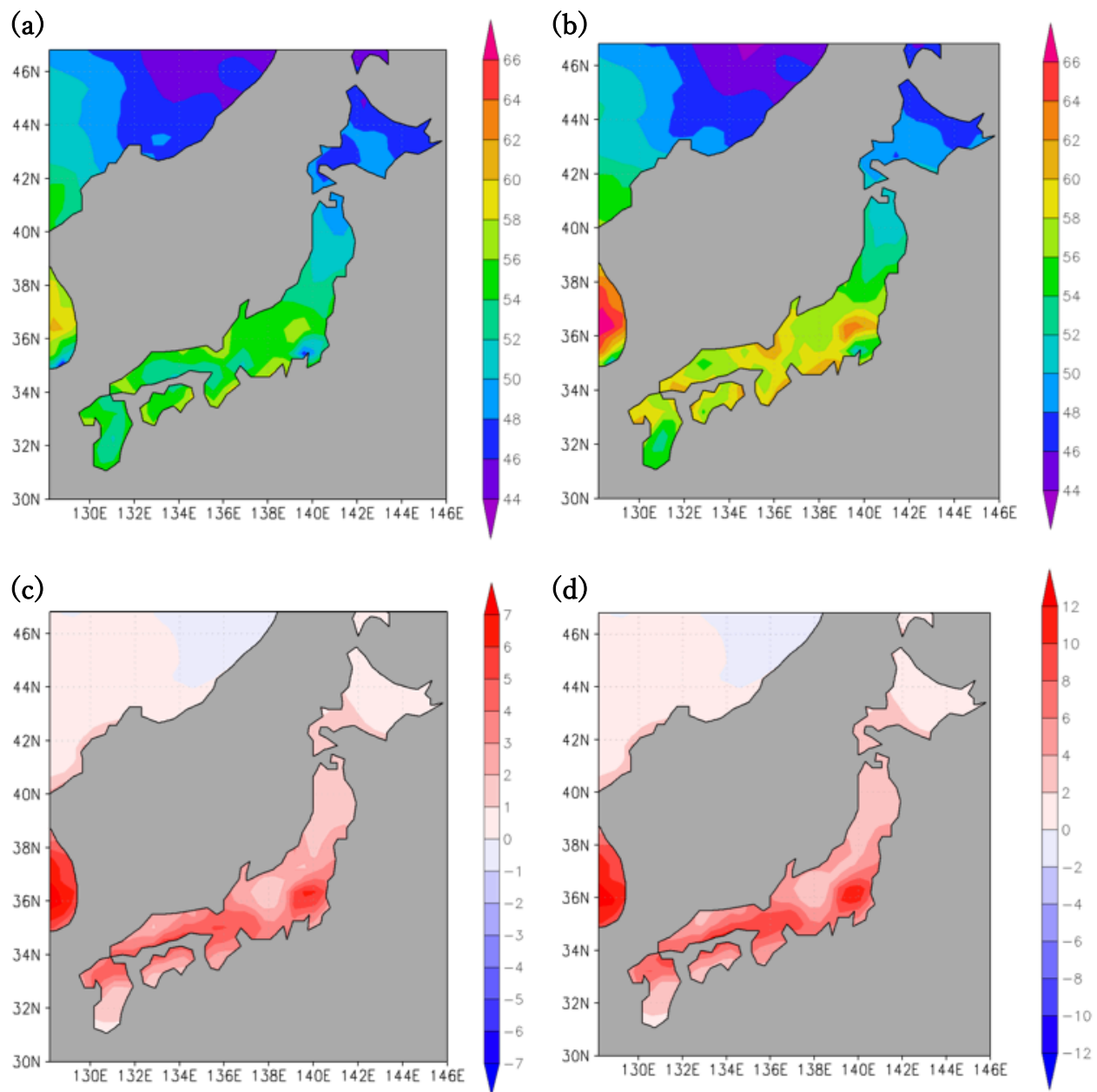


Figure 3.31 春季の日最高 O_3 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]

(c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

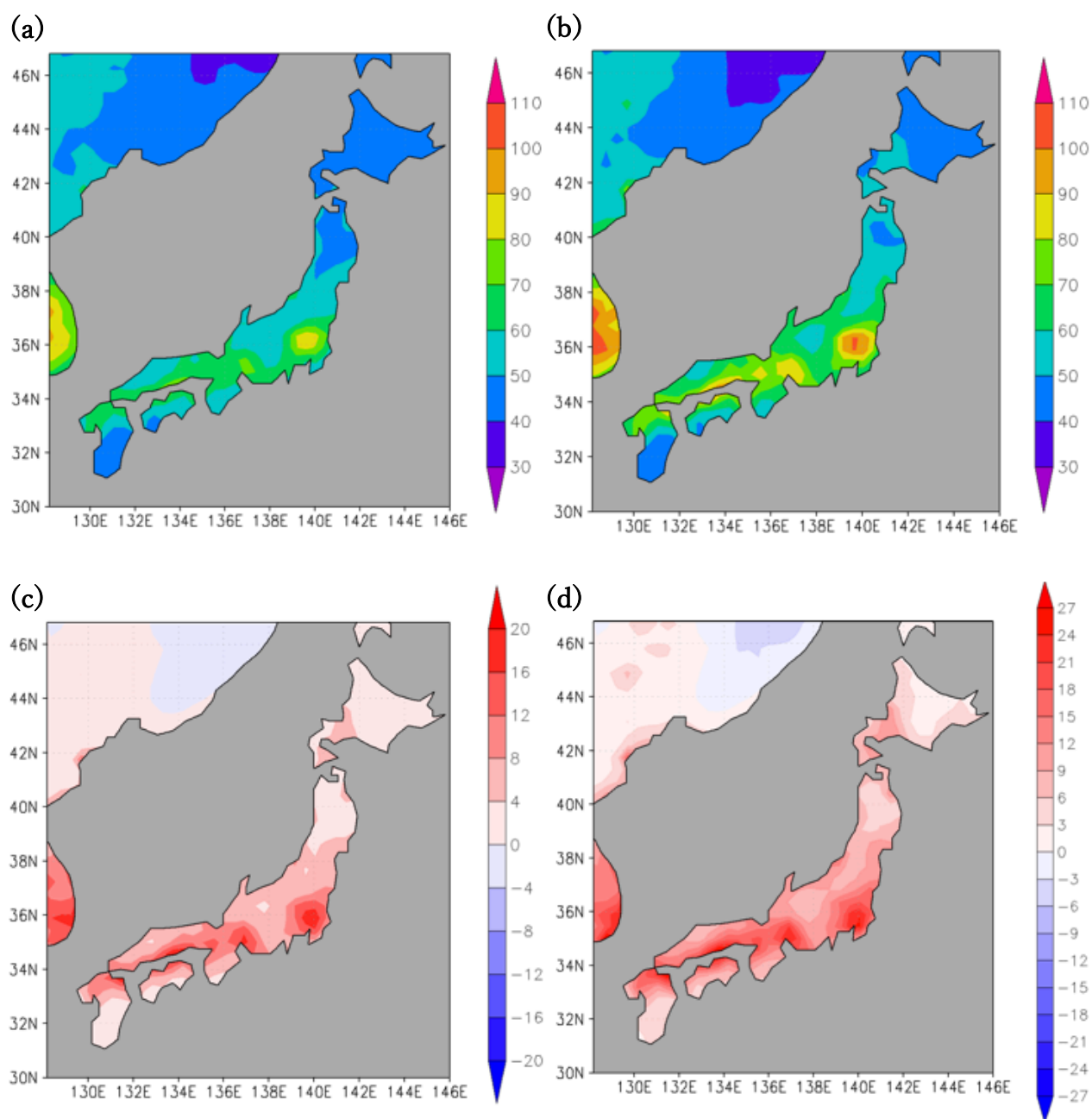


Figure 3.32 夏季の日最高 O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]

(c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

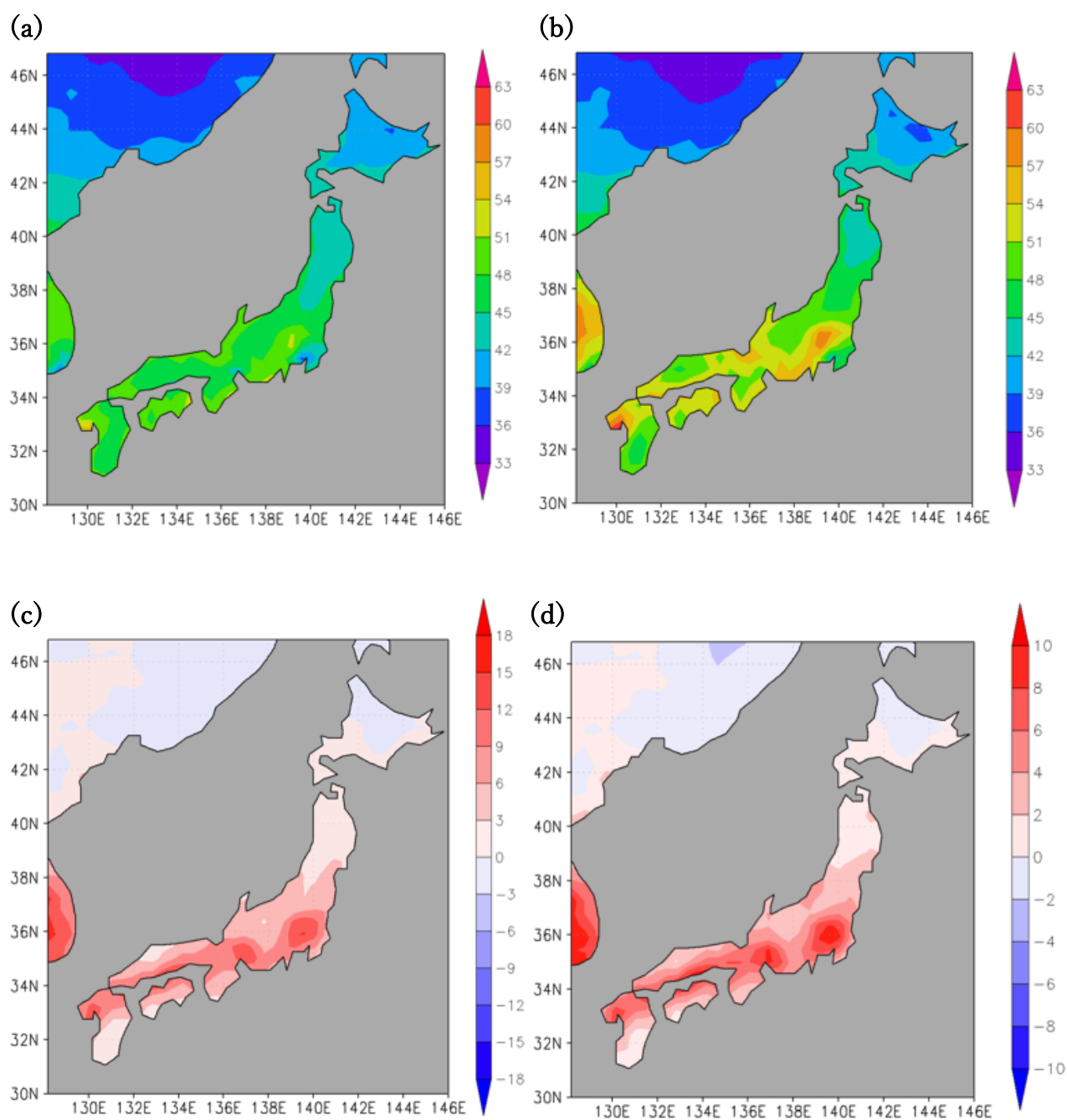


Figure 3.33 秋季の日最高 O₃ 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

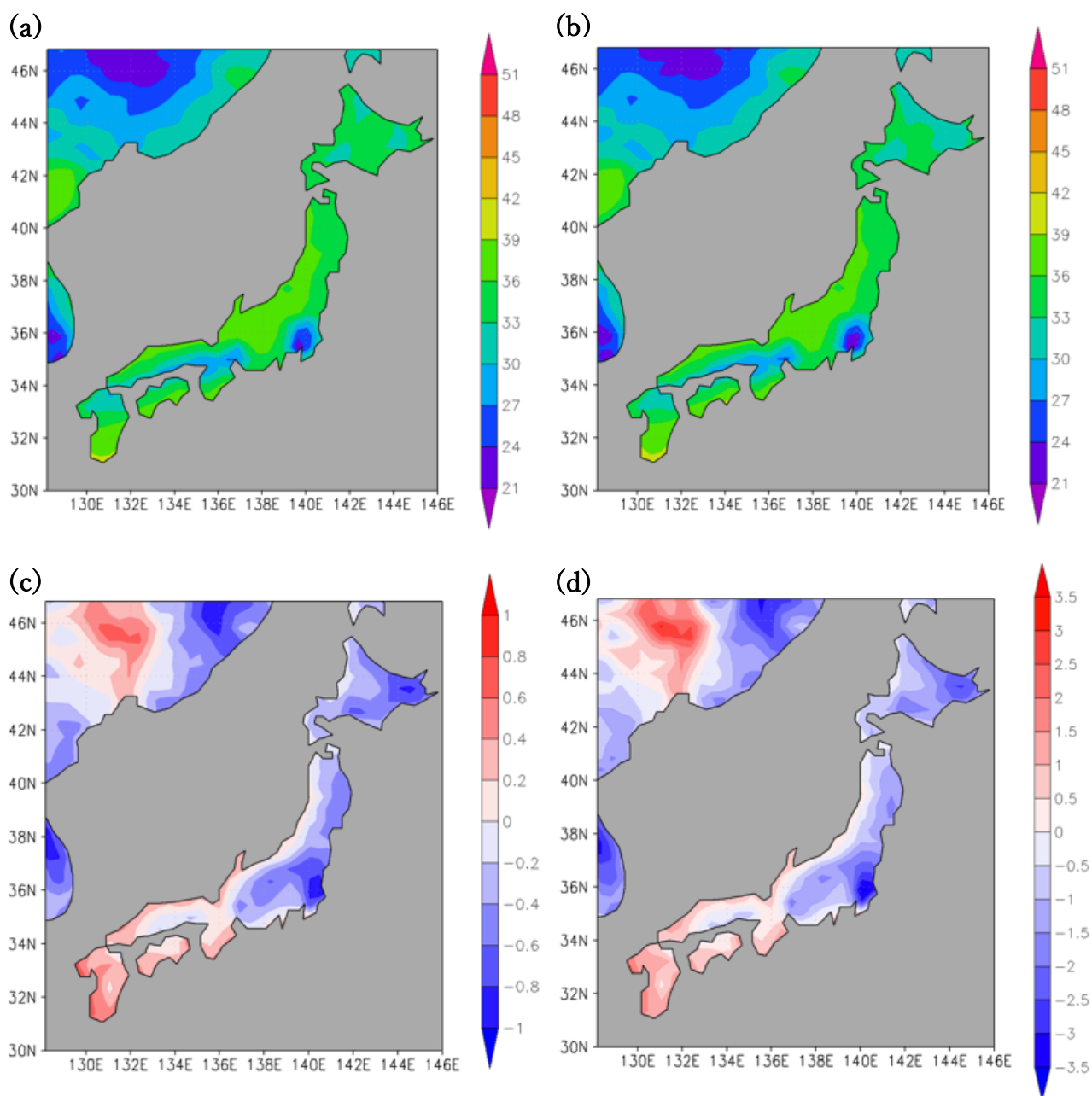


Figure 3.34 冬季の日最高 O_3 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値[ppbv], (b)将来実験 18 メンバー平均値[ppbv]

(c)過去実験から将来実験への変化量[ppbv], (d)変化率[%]

3.3.3 環境基準値・注意報発令基準値を超過した日数

次に環境基準値(60ppbv)と注意報発令基準値(120ppbv)を超過した年間日数についての結果を述べる。Figure 3.35 (a)に過去実験における O₃ に対する環境基準値を超過した年間日数の平均値、(b)に将来実験における O₃ に対する環境基準値を超過した年間日数の平均値、(c)に気温上昇に伴う変化量(day)、(d)に変化率(%)をそれぞれ示す。同様の注意報発令基準値を超過した日数についての図を Figure 3.36 に示している。また、Table 3.3 と 3.4 に、日本国内の抜粋した各地点の、環境基準値を超過した日数と注意報発令日数の変化量の平均値とアンサンブルスプレッド(day)を示す。

環境基準値を超過した日数分布(Figure 3.35)については、前節までの結果と同様に都市域周辺で多い傾向となった。また、北海道などの気温の低い地点も同様に少ない傾向が確認されたが、こちらは主な排出源が少ないことが影響していると考えられる。変化量としては北海道の北東部を除き、全域でかなりの増加を見せた。変化量、変化率の図からわかるとおり、前節までの変化の傾向と違い、比較的都市域中心というよりも、全国的に一律で変化していることが確認された。補足だが、変化率で見ると北海道はかなり増加しているように見えるが、そもそもの環境基準を超過した日数が少ないため、見かけ上多く見えているだけである。各都市における環境基準を超過した日数は、東京などの都市域では 30.044(±6.507)day 増加していたのに対し、地方に位置する秋田は+13.356(±3.880)ほどの増加しか見られなかった。一律に変化しているように見えるものの、やはり前節までと同様に地域特性が反映された結果となった。

続いて注意報発令日数(Figure 3.36)について述べる。注意報発令日数の多い地域は明らかに関東や関西などの都市域に集中している。これは、Figure 1.5 および 1.6 で示した観測による注意報発令日数の分布ともよく一致する。変化量としては、埼玉で 8.156 日から 24.211 日へ、+16.056 (±4.040)day とかなりの増加傾向を示したものの、秋田では 0.000(±0.000)day といった変化のない結果となり、こちらも地域特性が反映されていることがわかる。本実験では、人為起源排出量を固定し、気温のみを 4K 上昇させただけの実験であるにもかかわらず、埼玉などの人口の多い都市域では注意報レベルの濃度が出現する日数が 3 倍程度に増え、年間 10 日を超える地域も関東のみならず、中京・関西に広がるという結果が予測された。

以上をまとめると、気温の上昇に伴い O₃ 濃度の日最高濃度は全国的に増加する。特に、都市域など既に高濃度な地域の夏季において O₃ 濃度の増加は顕著であった。その結果、大気汚染物質の人為起源排出量が増加しない環境であっても、環境基準(60ppb)を超過したり注意報レベル(0.12ppb 以上)の濃度が出現する日数は増加する。注意報発令日数は埼玉を中心とした関東地方で約 3 倍に増加し、年間 10 日を超える地域も関東のみならず、中京・関西にも出現する可能性がある。

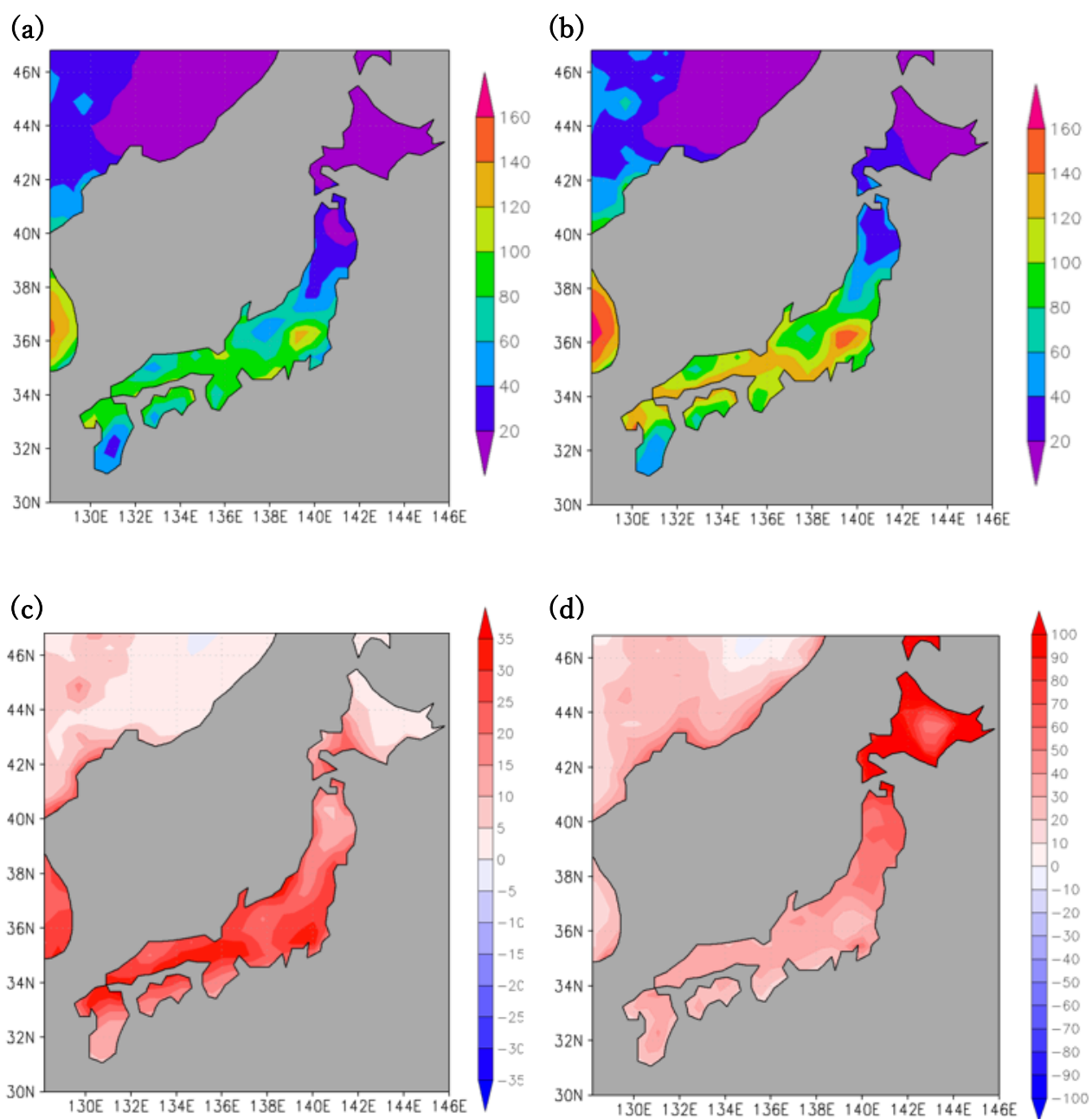


Figure 3.35 環境基準値(60ppbv)を超過した年間日数
 (a)過去実験 18 メンバー平均値[day], (b)将来実験 18 メンバー平均値[day]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[day], (d)変化率[%]

Table 3.3 日本国内各地点の環境基準値(60ppbv)を超過した
年間日数とアンサンブルスプレッド [day]

対象地点名	変化量(±アンサンブルスプレッド) (day)
東京	+30.044(±6.507)
埼玉	+29.244(±5.978)
大阪	+25.522(±6.210)
福岡	+31.878(±5.321)
秋田	+13.356(±3.880)
金沢	+32.489(±5.788)

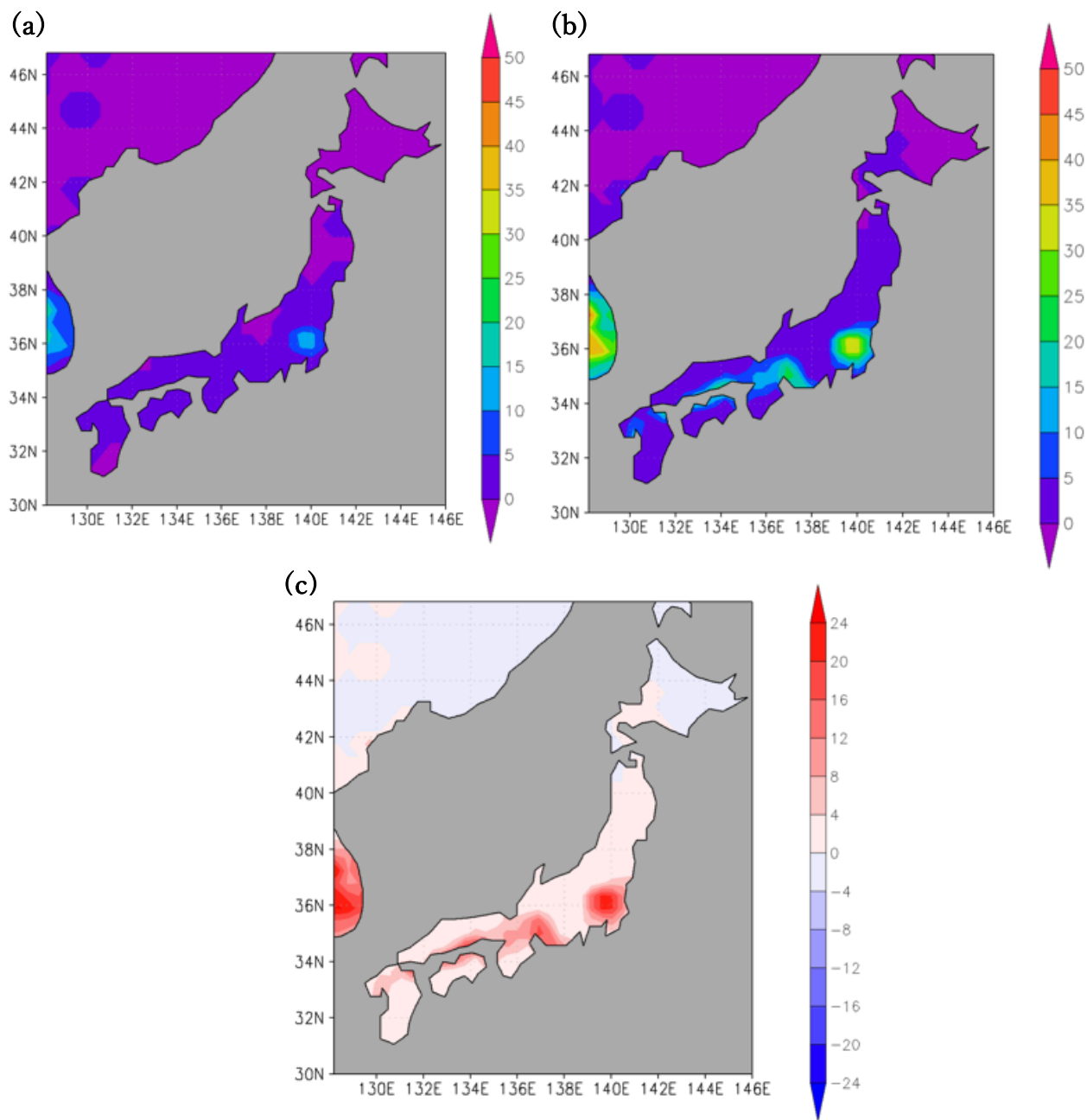


Figure 3.36 注意報発令基準値(120ppbv)を超過した年間日数
 (a)過去実験 18 メンバー平均値[day], (b)将来実験 18 メンバー平均値[day]
 (c)過去実験から将来実験への変化量[day]

Table 3.4 日本国内各地点の注意報発令基準値(120ppbv)を超過した
年間日数とアンサンブルスプレッド[day]

対象地点名	変化量(±アンサンブルスプレッド) (day)
東京	+4.900(±1.875)
埼玉	+16.056(±4.040)
大阪	+4.267(±1.602)
福岡	+4.178(±1.602)
秋田	+0.000(±0.000)
金沢	+1.478(±0.514)

3.4 O₃濃度変化の要因に関する考察

3.3 節の結果からわかる通り、気温の 4K 上昇により、O₃ 平均濃度や日最高濃度、注意報発令日数などは全国的に顕著に増加することが確認された。この節では、なぜ O₃ は増加傾向にあるのか、メカニズムや原因の考察を進める。EPA は 2006 年に、気温と O₃ 濃度の間に正の相関関係がある要因について、Table 1.4 に示されているような 7 つを提案した。その中から、本研究の実験環境において可能性のあるものを抜粋し、いくつかを結合させて Table 3.5 に示した。これらの要因について、順番に考察を行う。

なお、Table 1.4 の”④高温時に人為起源の炭化水素や NO_x の排出が増加するため”については、本研究の研究目的から外れるため考察の候補から除外した。また”⑥高温時の空気の循環の変化”については、成層圏 O₃ の対流圏への移流の影響も含まれるが、本実験では成層圏化学計算を行っておらず、上部境界を MRI-CCM2 の結果で与えているため、過去・将来実験どちらも成層圏 O₃、つまり上部境界の O₃ 濃度は変化しない。そのため、本研究では考察対象から除外した。

Table 3.5 本研究実験環境において O₃ 濃度を増加させる可能性として考えられる要因

O ₃ 濃度を増加させる物として考えられる要因
① 高温時に BVOC の放出が増加するため
② 越境汚染・移流の変化
③ 高温時に水蒸気量が増加し、OH ラジカルの生成が促進されるため
④ 高温時の気象条件下で光乖離が促進されるため
⑤高温時に PANs の熱分解が促進され、NO _x が放出されるため

3.4.1 BVOC

前節までの結果から、NO_x の豊富な都市域周辺で特に O₃ の増加が確認されている。Itahashi et al., (2016)によると、Figure 3.37 に示されるように、年間を通じて都市域周辺では VOC-sensitive の状態にあることがわかっている。2.3.2 節で説明したように VOC-Sensitive とは、VOC の濃度が変化すれば O₃ の濃度が大きく変化するような状態である。これらのことから、都市域周辺では VOC の関わるメカニズムが特に重要なのではないかと考えた。本節では、気温が上昇することで、植物由来の VOC である BVOC の放出量が増加するため、O₃ サイクル反応が促進され、O₃ 濃度が増加した可能性について、考察する。

まず代表的な BVOC であるイソプレンとモノテルペンの放出量に注目する。Figure 3.38 と 3.39 の (a)に過去実験のイソプレンとモノテルペンの放出量の平均値、(b)に将来実験の平均値、(c)に過去実験から将来実験にかけての変化量($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$)、(d)に変化率(%)をそれぞれ示す。

放出量の分布を見ると、どこ周辺を中心にというよりは、全国的に満遍なく放出されていることが見て取れる。また、気温が低い北海道などの方が、気温の高い九州などと比べ、比較的少ない放出量であることもわかった。続いて変化量・変化率について考察する前に、Figure 3.40 にこのモデルに使用された葉面積指数(LAI)の 5 年間平均値の図を示す。LAI とは、その地点の上部にあるすべての葉面積を積算した値を単位土地面積あたりに換算した値であり、例として LAI=2 は、1m²の地面の上にある葉の合計が 2m²であることを示している。こちらの図と Figure 3.38,3.39 (c)の変化量を見比べると、特にモノテルペンの方がわかりやすいが、LAI が高い地点(=植生の多い地点)で BVOC が顕著に増加していることがわかる。このことから、気温が上昇し植物が活性化することで、これら BVOC の放出量が増加したと考えられる。

続いて変化率について注目する。Figure 3.38,3.39 (d)を見ると、こちらもどこ周辺を中心にというよりは、ほとんどの地点で同じ割合だけ満遍なく増加していることが確認された。なお、このモデルでは BVOC の放出量については 2.1.2 で説明したように MEGAN を使用している。MEGAN では、WRF から出力された気象データから、気温と太陽放射の時間値を代入して計算を行なっている。Figure 3.41 に過去実験から将来実験にかけての気温の増加量を示すが、全国的にほぼ一律で約 3~5K ほど増加させている。このように、全球平均気温を 4K 上昇させたデータを本実験では MEGAN に代入しているため、全国的に満遍なく同じ割合で増加するのは整合性が合う。

具体的にイソプレンは 50-60%、モノテルペンは 40-50%というかなり大きい放出量の増加となった。Heald et al., (2008)では、A1B シナリオ(約 2.8°C 上昇)を使用して MEGAN を用い、2100 年までの BVOC 放出量を推計したところ、全米でイソプレン放出量の 28%増加、モノテルペン放出量の 19%増加が確認された。この結果は気温増加によるものが主であり、日射、雲量、土壌水分などの他の影響は約 5%に収まることがわかっている。また Chatani(2019)は、イソプレンについて、葉温 T を 30°C、24 時間平均気温 T_{24} と 240 時間平均気温 T_{240} を 25°C という環境での放出量を 1 とすると、 $T=40^\circ\text{C}$ では放出量は 2 倍以上に増加、モノテルペンについて、 $T=30^\circ\text{C}$ 環境での放出量を 1 とすると、 $T=40^\circ\text{C}$ では放出量

は 5.5 倍以上に増加することを報告している。このように、BVOC の放出量に対して気温が極めて大きな影響を有することが知られている。そういったことを踏まえて、この 4K の気温上昇から引き起こされる BVOC のかなりの増加は妥当であると判断した。

なおこういった傾向を踏まえて、以下の 3.5 節において感度実験を行った結果から、BVOC の O_3 に与える影響について、具体的な定量化を行う。

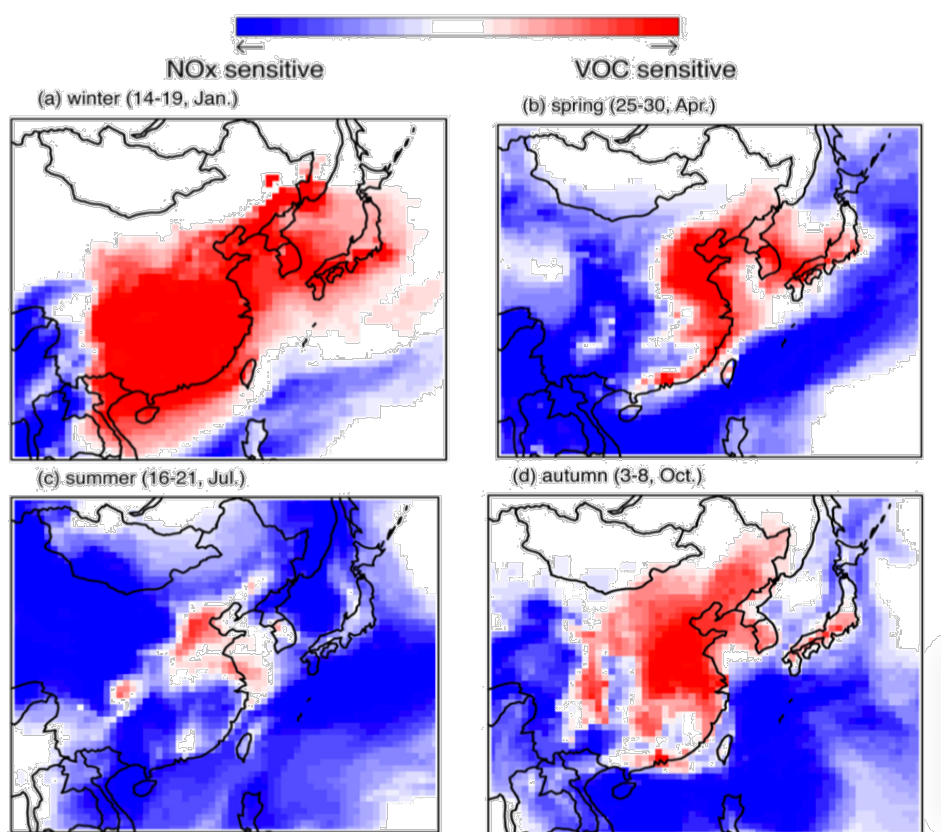


Figure 3.37 特定の汚染ピーク時の O_3 -sensitive 領域の空間分布
(a)冬, (b)春, (c)夏, (d)秋
(Itahashi et al., (2013)より引用)

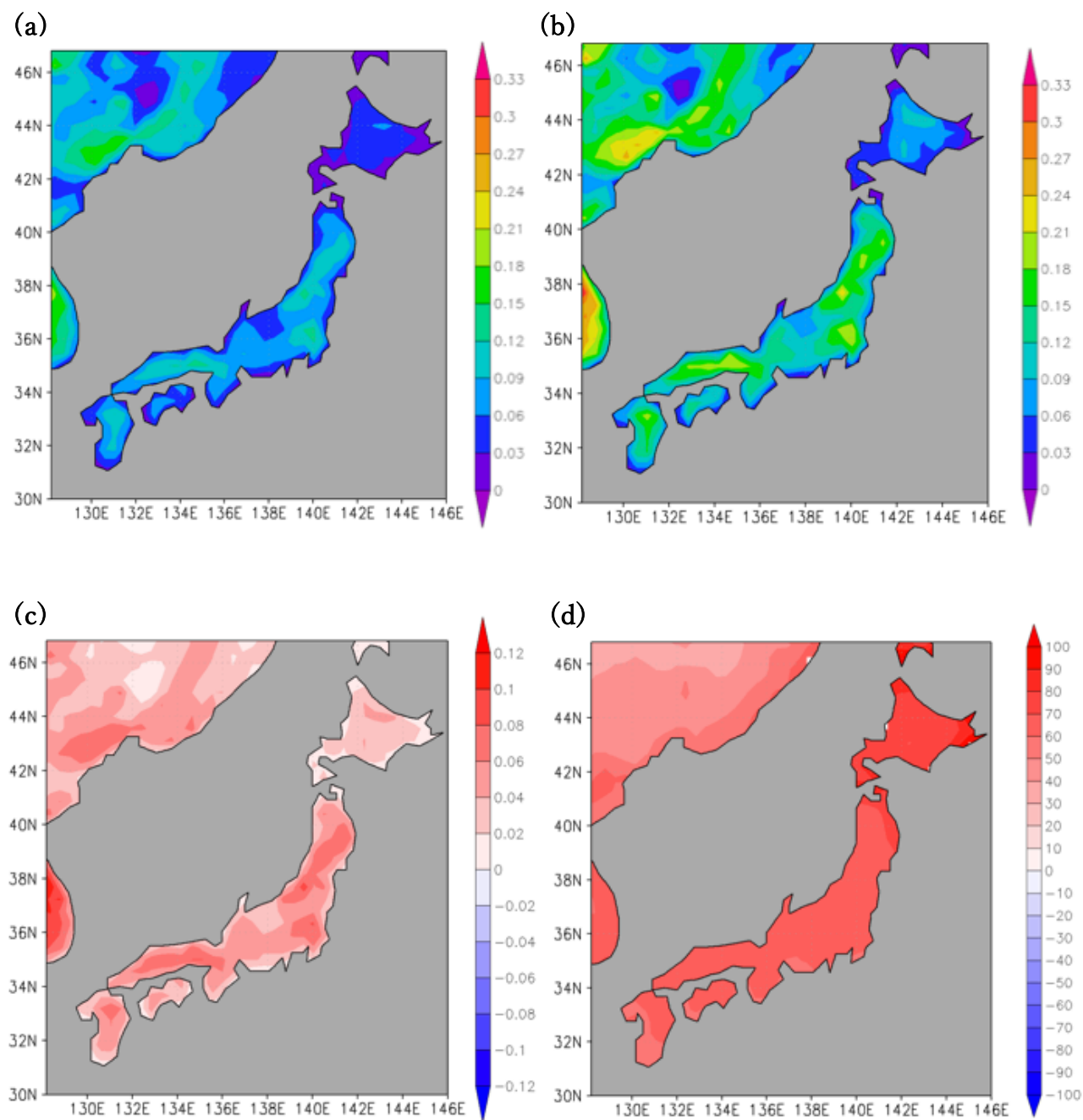


Figure 3.38 イソプレン放出量

(a)過去実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$], (b)将来実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$]
 (c)過去実験から将来実験への変化量 [$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$], (d)変化率 [%]

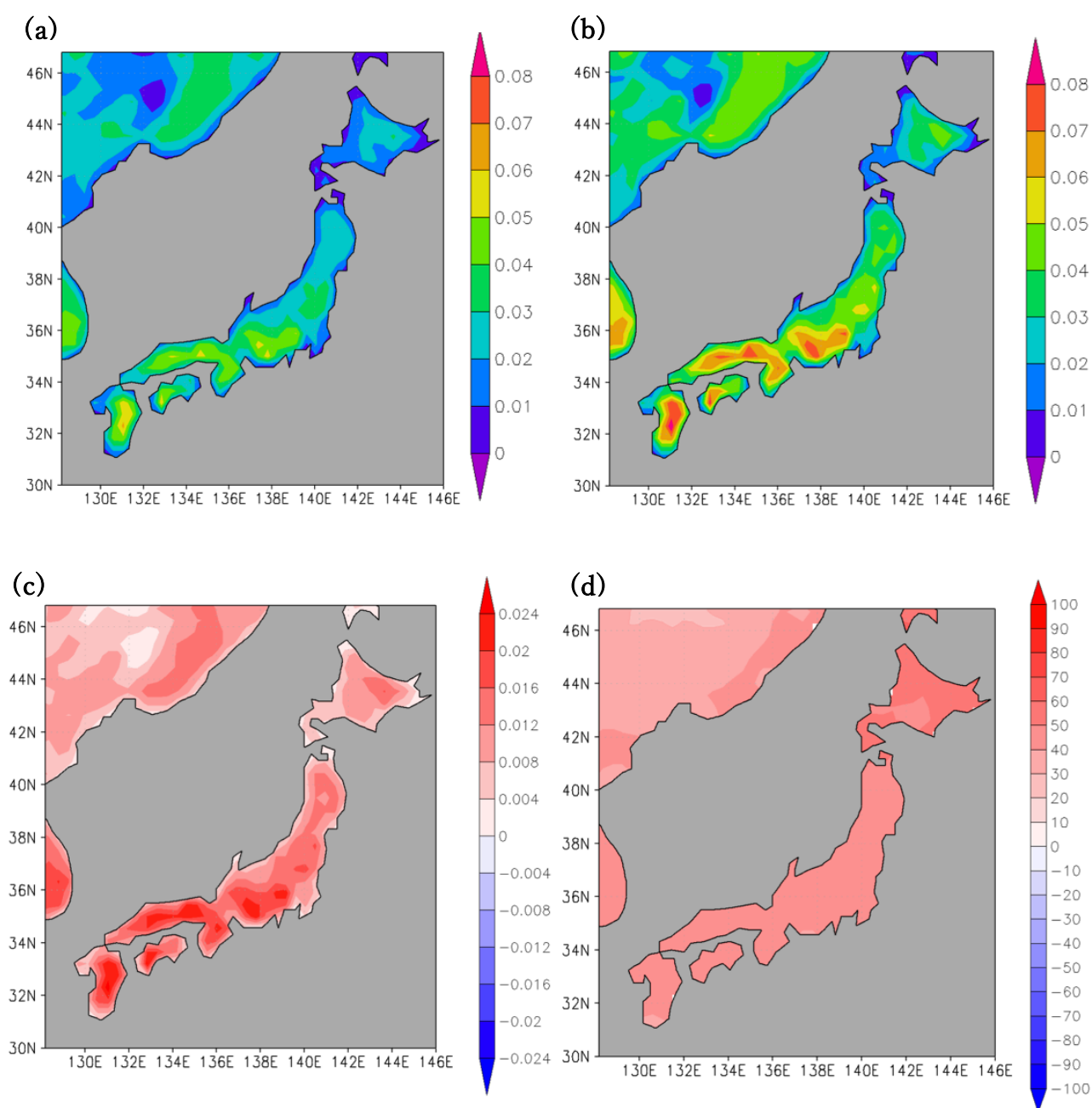


Figure 3.39 モノテルペン放出量

(a)過去実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$], (b)将来実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$]

(c)過去実験から将来実験への変化量[$\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{s}$], (d)変化率[%]

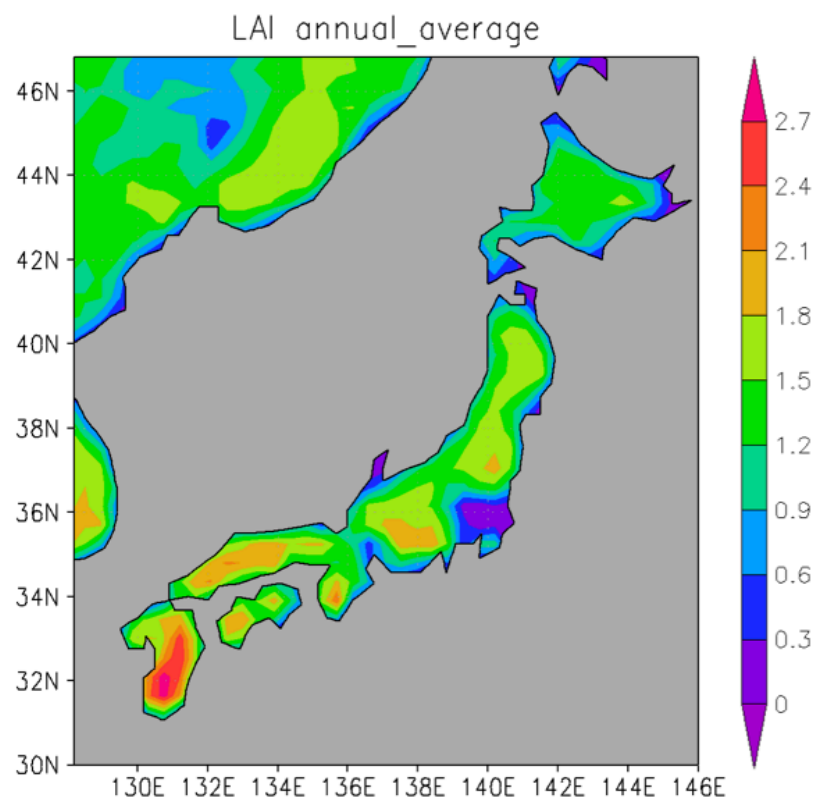


Figure 3.40 葉面積指数(LAI)の5年間平均値 [m^2/m^2]

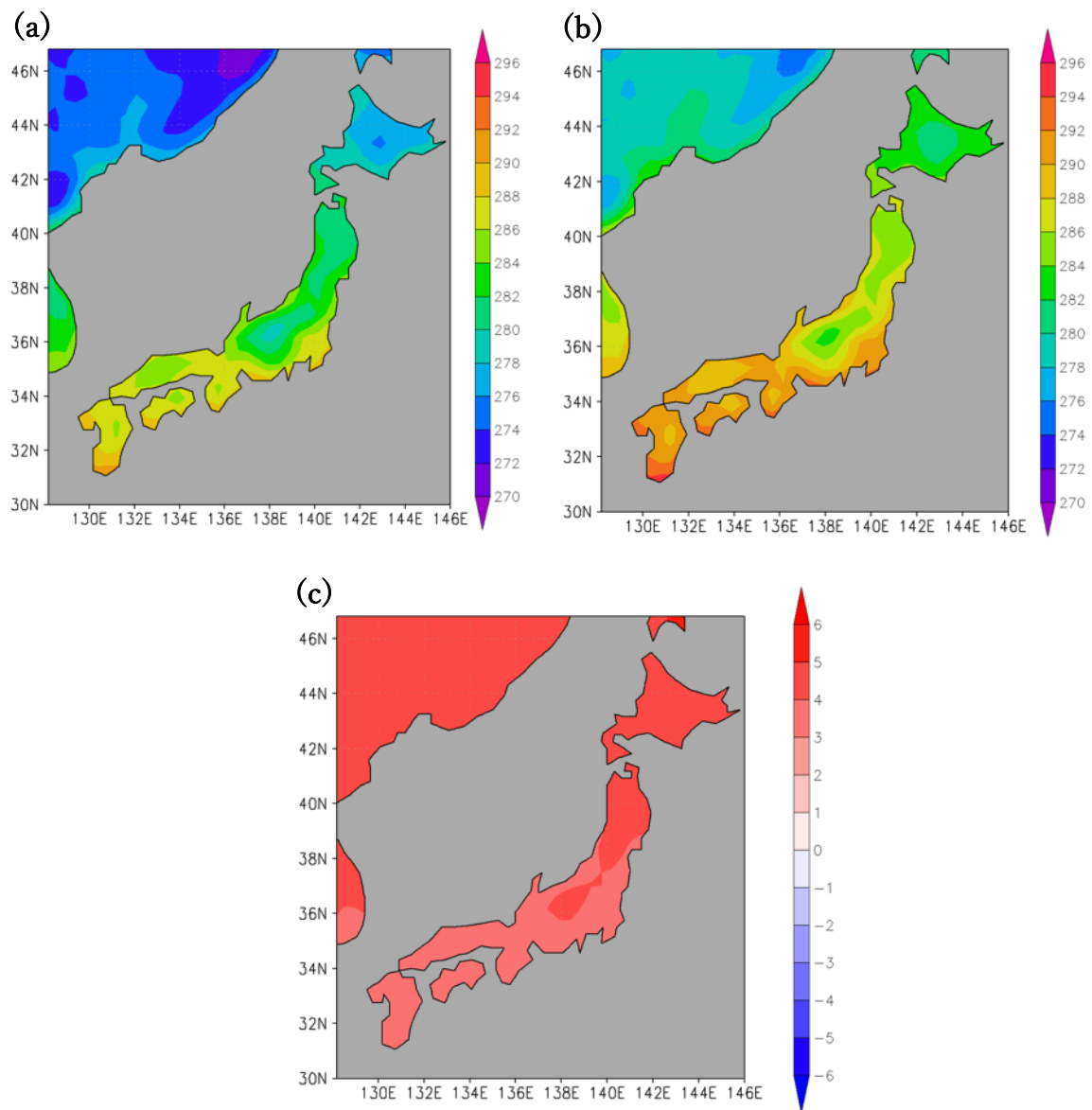


Figure 3.41 地表気温

(a)過去実験 18 メンバー平均値[K], (b)将来実験 18 メンバー平均値[K]

(c)過去実験から将来実験への変化量[K]

3.4.2 移流

この節では、越境汚染物質として日本に飛んでくる、 O_3 やその原因物質になる NO_x などの化学物質が運ばれる過程について、経路や強度などに変化があった可能性について考察を行う。

風や移流の影響には季節性が大きいため、季節別に考察を行う。まず、Figure 3.42~3.45 に、季節別の風についての図を示す。(a)(b)はその季節の平均した風の流線と背景の濃淡図で風速の絶対値を示し、(c)は過去・将来実験の流線と、現在から将来にかけての風速の絶対値の変化量を示している。(c)の図で流線が少し見にくかったため、補足として過去・将来実験の流線のみを図を(d)に示している。また、Figure 3.46~3.47 に各季節での、過去・将来実験における、計算して導出した海面更正気圧と流線を重ねた図を示す。結果としてどの季節も、極端な経路の変化や、強度の変化は確認できなかった。また海面更正気圧を確認しても、高気圧や低気圧の位置に大きな変化は確認されず、ほぼ同じ位置に存在した。しかし、Figure 3.42 からわかるように、強いて言えば越境汚染の影響の強い西風の吹く春に、日本海上空の強度が少し強くなり、また経路も少し北寄りに変化していることがわかった。もしこのことが正しければ、越境汚染物質の飛んでくる量の増加や、西日本に比べ運ばれにくい、東日本の領域にも運ばれる量が今後増える可能性がある。

しかし、本当に運ばれてくる量が増えているのかどうかはこれだけで判断は難しい。そこで、CO に注目して追加の解析を行なっていく。CO は過去実験と将来実験で排出量が変わらず、化学反応による増減も少ない物質である。そのため CO の変動や動きに注目することで、国外からの移流の影響をダイレクトに判断できる。

Figure 3.48 に各季節の CO 濃度の平均値の過去実験から将来実験にかけての変化量を示す。どの季節も都市域周辺でスポット的に CO の濃度が増加していることが確認された。この濃度変化量は、平均濃度の 10%に満たず、この原因としては、気温上昇によって増加した VOC の酸化プロセスによって放出されたものであると考えられる。続いて大陸からの越境大気汚染のパスである日本海上に注目すると、夏にかなり増加が確認された。しかし、夏は東高西低の気圧配置であり、風の向きとしては東から西なため、この結果としては、むしろ大陸側へ飛んで行く量が増加したということである。移流に注目するのであれば、西高東低の気圧配置である冬や温帯低気圧が通過する春が重要になってくるが、大陸からの移流について増加傾向を示すような分布は見られず、極端な変動も見られなかったため、気温の上昇によって冬季や春先の移流に大きな変化は生じなかったと考えられる。

Figure 3.49 に関東、関西、九州における CO の月平均濃度の推移を示す。青線で過去実験のアンサンブル平均を、暖色による線で将来実験のうち 6 メンバーについてスパゲッティプロットとして表示している。CO の月平均濃度に気温上昇による変化はほとんど見られず、すべての将来実験のアンサンブルメンバーの濃度が過去実験濃度の $\pm 10\%$ 以内に収まった。越境大気汚染が卓越する春季は、過去実験の CO 濃度の上下に将来実験の各アンサンブルメンバーの濃度が位置し、有意な濃度変化は見られなかった。以上の結果より、気温上昇によって移流（越境大気汚染）に大きな変化はなかったと結論づけた。ただし、ここで議論したのは越境大気汚染という総観規模の移流であり、地域レベルの大気の収束等の影響は考慮していない。この比較的小さいスケールの気象場の変化による影響評価は今後の課題である。

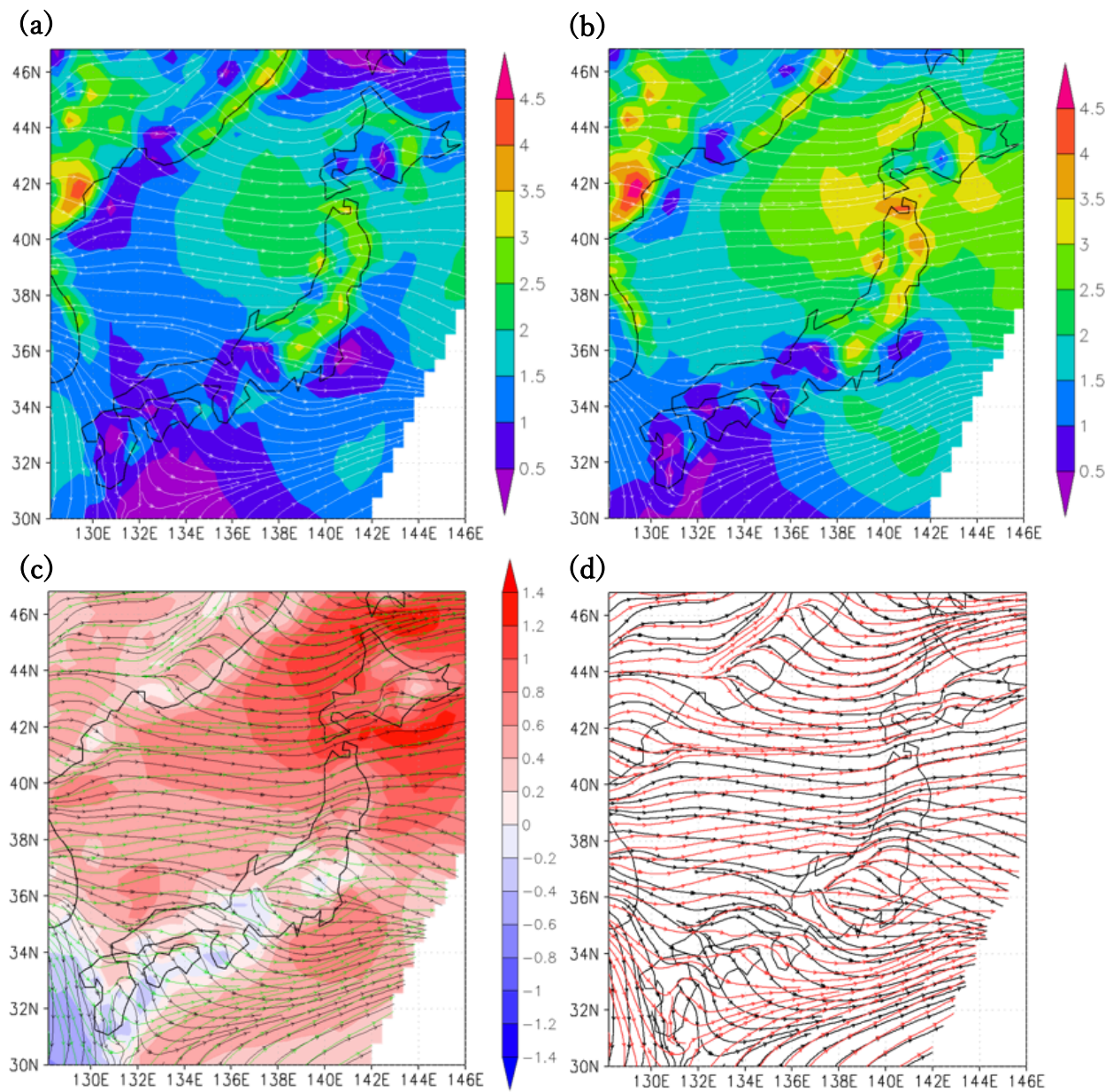


Figure 3.42 春季の風速・風向

(a)過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[m/s]

(b)将来実験 18 メンバー平均値流線と風速絶対値[m/s]

(c) 過去・将来実験の流線と過去実験から将来実験への変化量[m/s]

(d) 過去・将来実験の流線

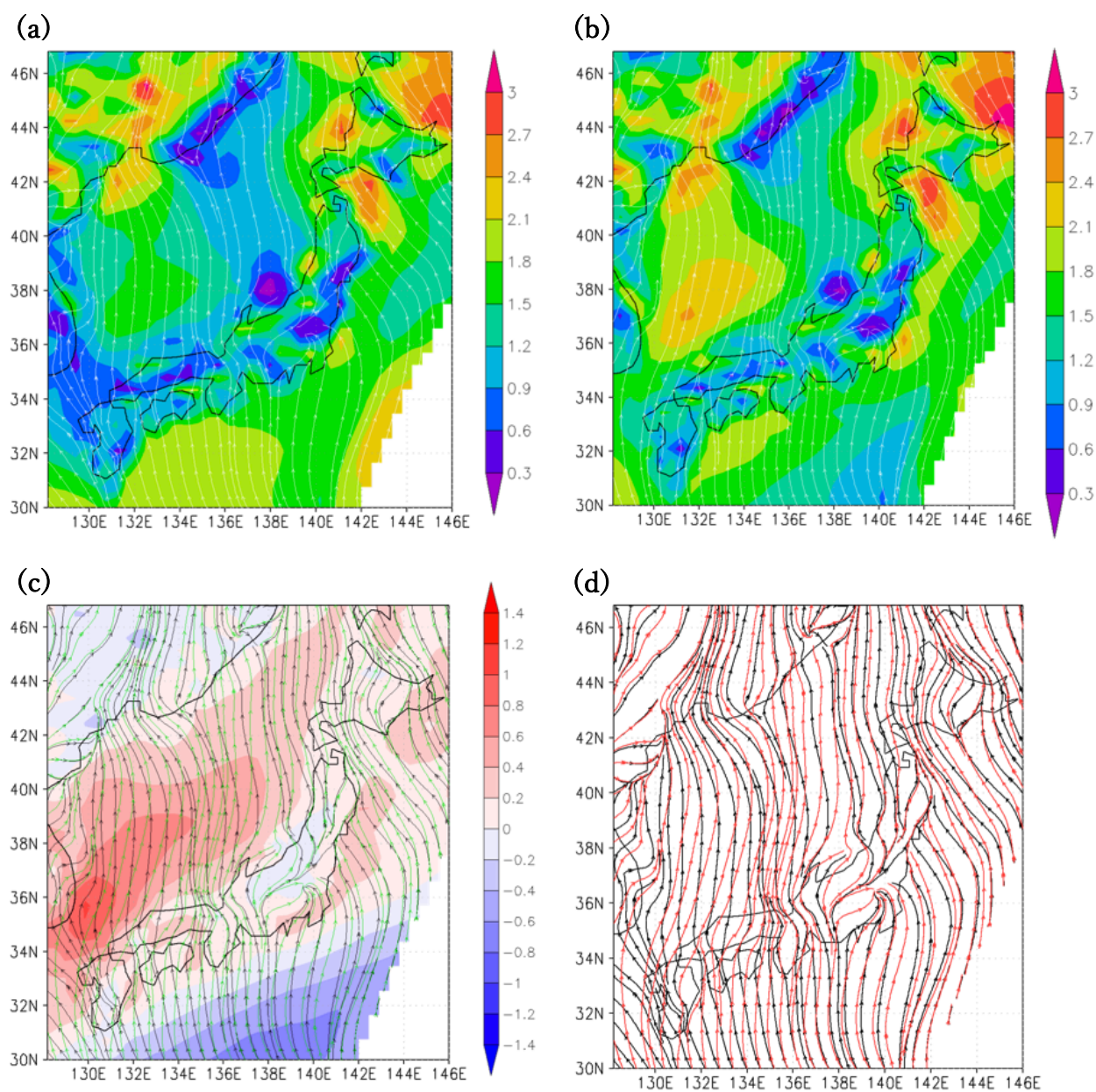


Figure 3.43 夏季の風速・風向

(a)過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[m/s]

(b)将来実験 18 メンバー平均値流線と風速絶対値[m/s]

(c) 過去・将来実験の流線と過去実験から将来実験への変化量[m/s]

(d) 過去・将来実験の流線

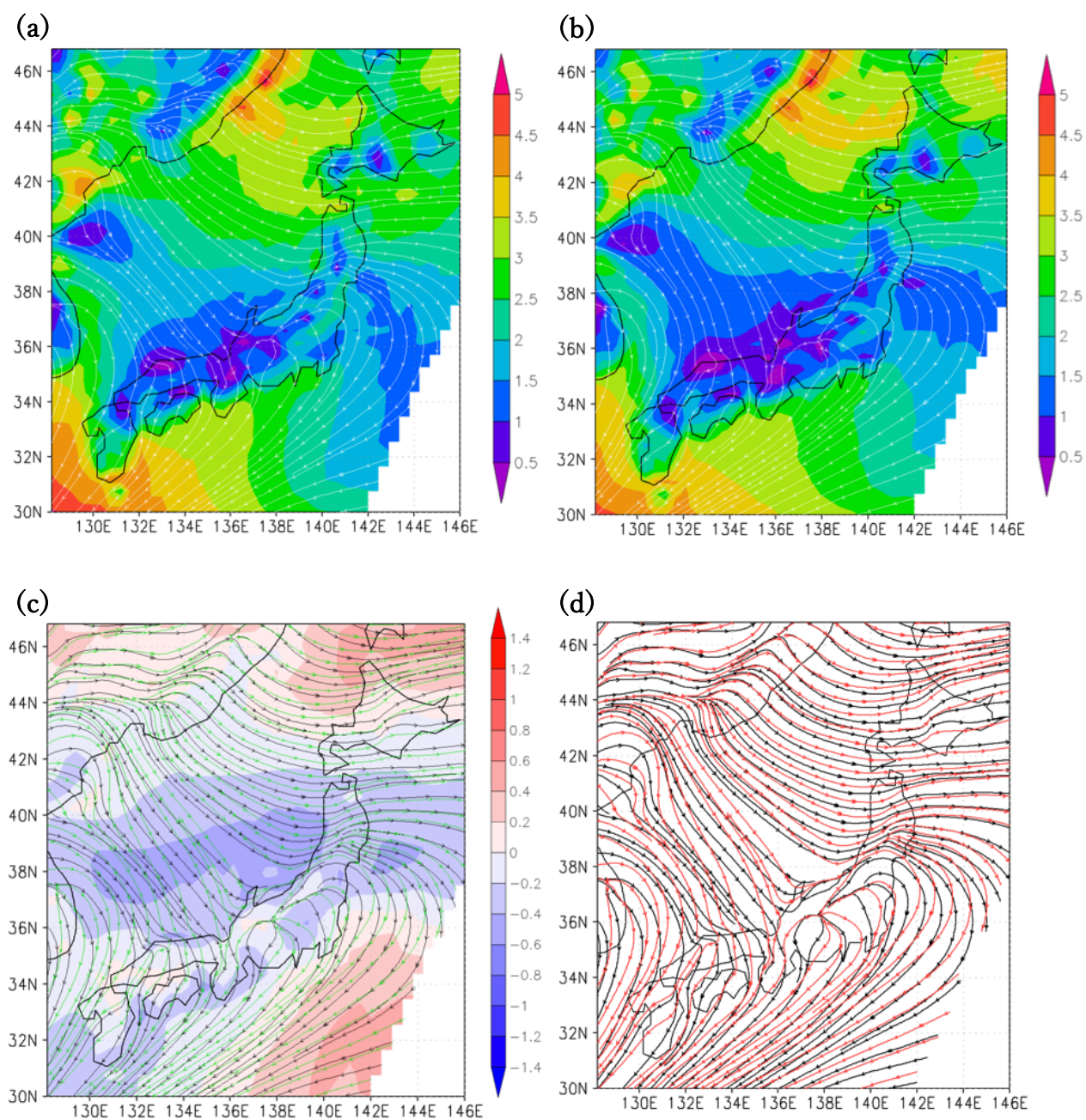


Figure 3.44 秋季の風速・風向

(a)過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[m/s]

(b)将来実験 18 メンバー平均値流線と風速絶対値[m/s]

(c) 過去・将来実験の流線と過去実験から将来実験への変化量[m/s]

(d) 過去・将来実験の流線

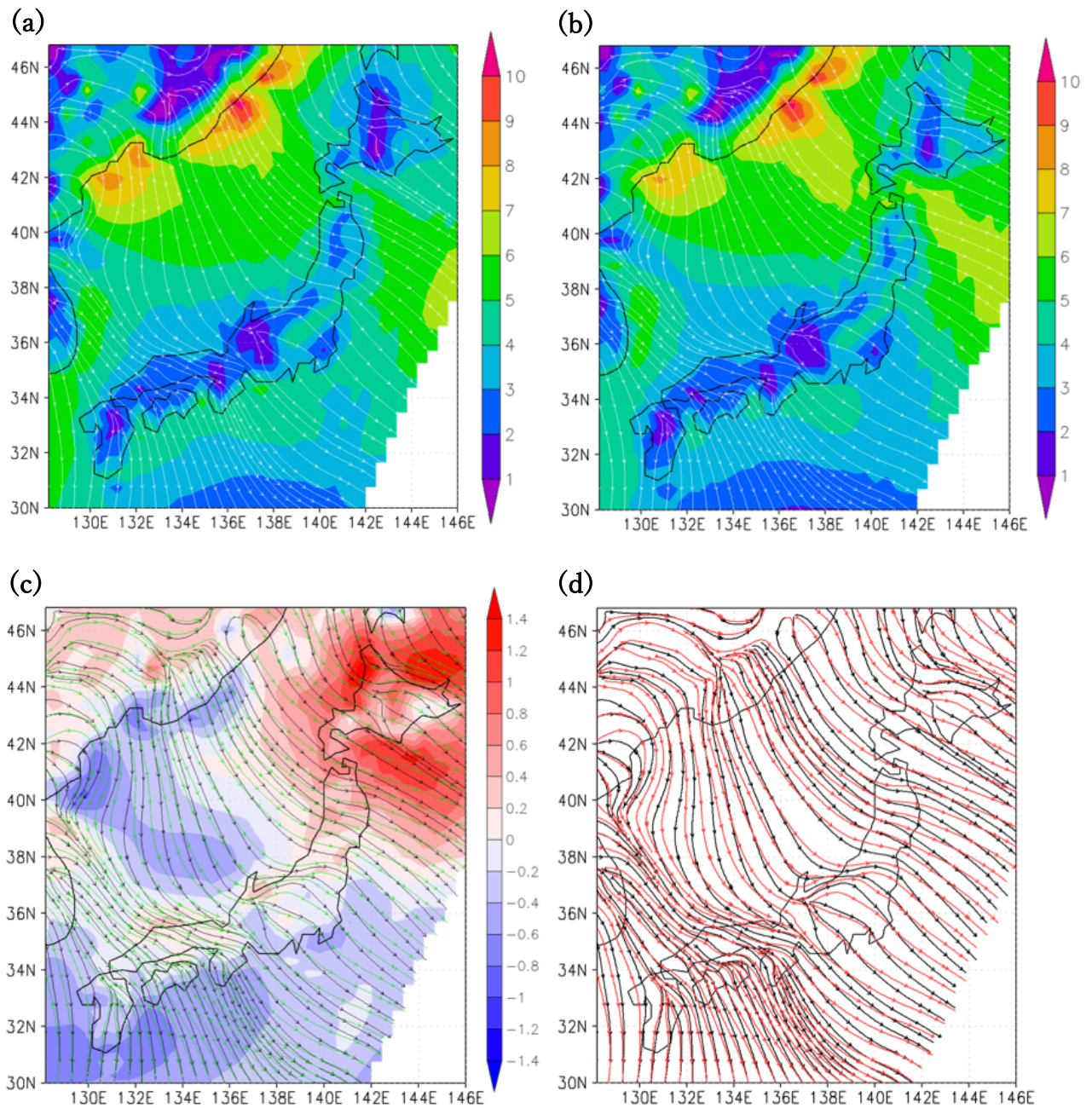


Figure 3.45 冬季の風速・風向

(a)過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[m/s]

(b)将来実験 18 メンバー平均値流線と風速絶対値[m/s]

(c) 過去・将来実験の流線と過去実験から将来実験への変化量[m/s]

(d) 過去・将来実験の流線

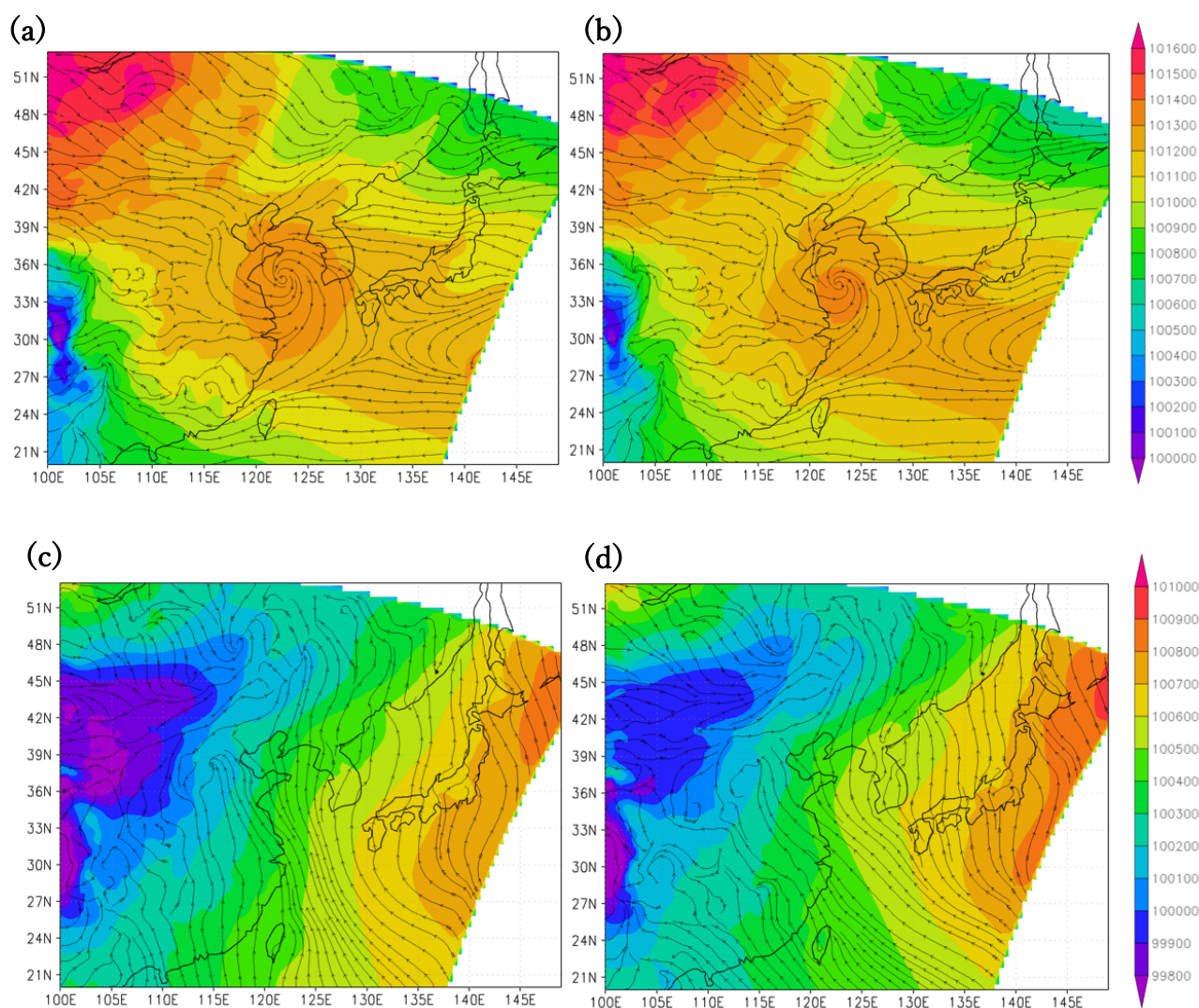


Figure 3.46 春季・夏季の風の流線と海面更正気圧(濃淡図)

(a)春季の過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

(b)春季の将来実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

(c)夏季の過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

(d)夏季の過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

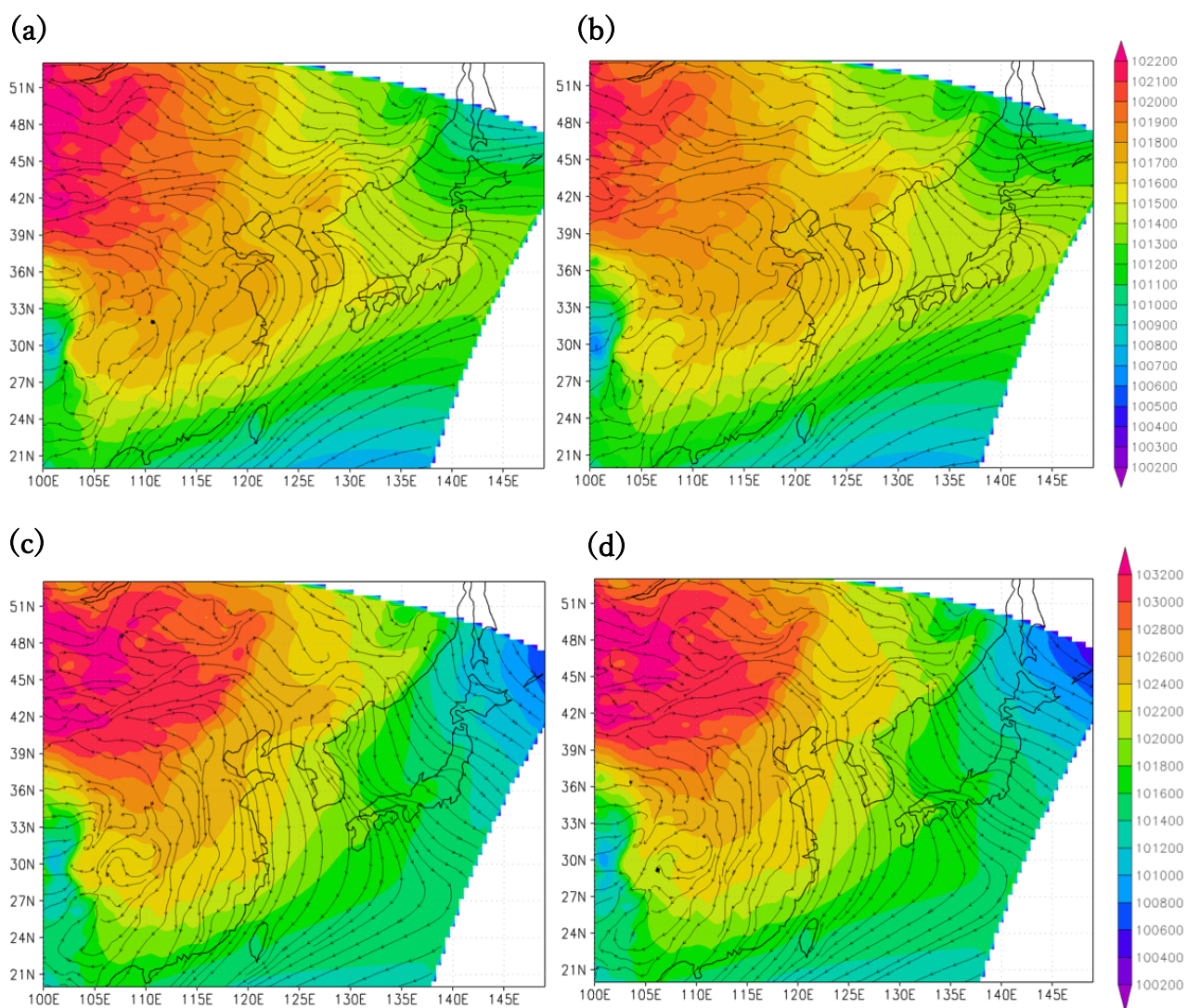


Figure 3.47 秋季・冬季の風の流線と海面更正気圧(濃淡図)

(a)秋季の過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

(b)秋季の将来実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

(c)冬季の過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

(d)冬季の過去実験 18 メンバー平均値の流線と風速絶対値[Pa]

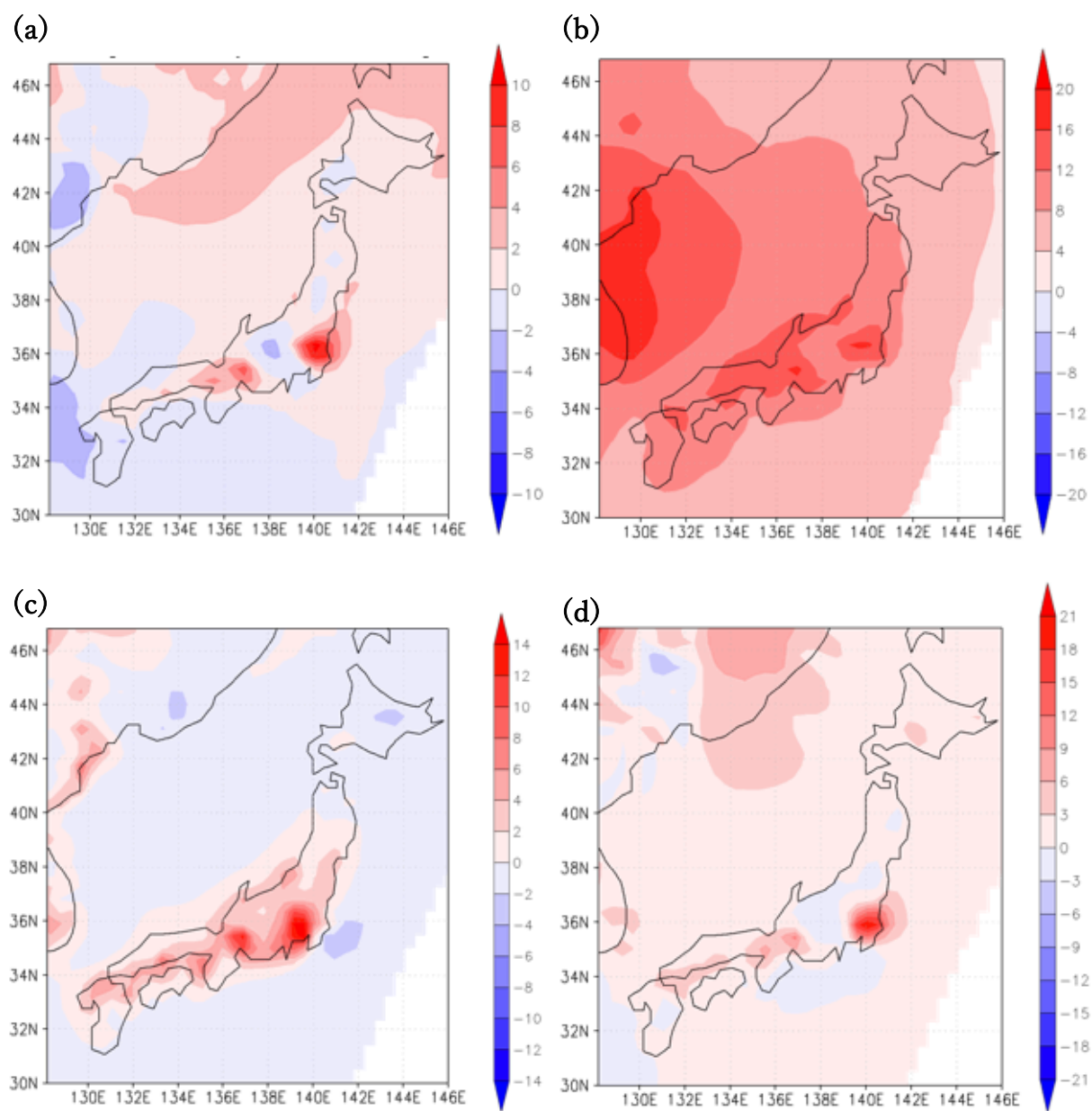


Figure 3.48 各季節の CO 濃度平均値の過去実験から将来実験にかけての変化量[ppbv]
(a)春季,(b)夏季,(c)秋季,(d)冬季

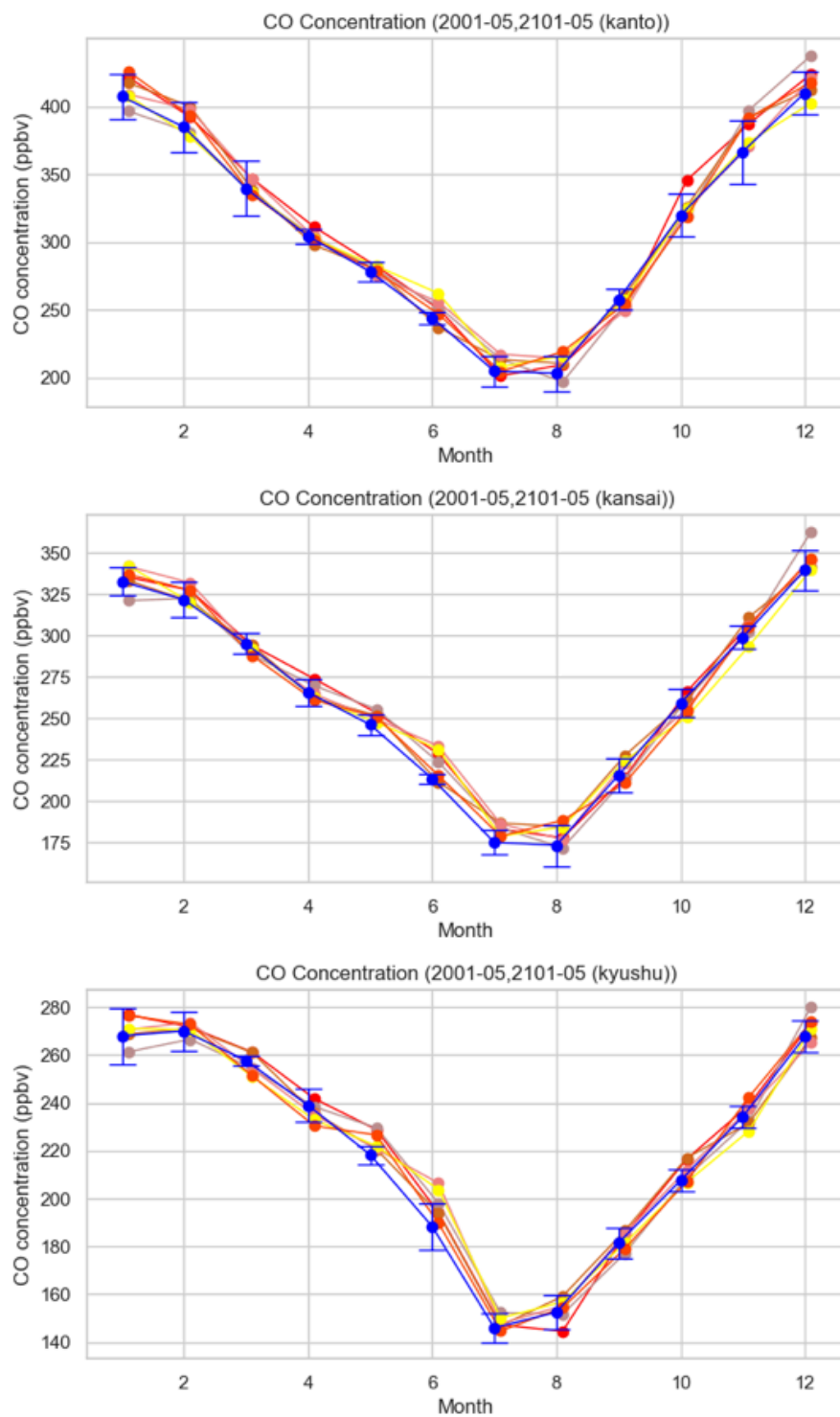


Figure 3.49 日本の各地点における CO の月平均濃度の年推移
(青線：過去実験 6 メンバーアンサンブル平均値, 暖色線：将来実験 6 メンバーそれぞれの平均値)

3.4.3 水蒸気の増加による OH ラジカル生成の促進

2.3.4 節で説明したとおり、OH ラジカルは O_3 の光化学反応に不可欠である。Table 1.4 の②に示したとおり、気温上昇による水蒸気量の増加は大気中の OH ラジカル生成を促進し、 O_3 濃度に影響を与える。ここでは、気温上昇に伴う水蒸気量と OH ラジカル濃度の変化について調べる。なお、OH ラジカルや水蒸気混合比については計算モデルの性質上、1 メンバー5 年間の結果を用いて考察を行う。

Figure 3.50 に年平均の水蒸気混合比について示す。それぞれ、(a)過去実験の平均値(kg/kg)、(b)将来実験の平均値(kg/kg)、過去実験から将来実験にかけての(c)変化量(kg/kg)と(d)変化率(%)を示している。まず、(a)(b)の平均値の分布について見てみると、気温の南北勾配に対応して、水蒸気混合比もまた南北方向に勾配をもっている。中部地方から東北にかけての分布は中央アルプスによるものである。(c)(d)の変化量、変化率の図をみると、南北勾配を持ちながらも全域で水蒸気が増加していることがわかる。

次に Figure3.51 に OH ラジカル濃度(混合比)の年平均値を示す。(a)が過去実験 5 年間の平均値($\mu\text{g/kg}$)、(b)が将来実験 5 年間の平均値($\mu\text{g/kg}$)、(c)が気温上昇に伴う変化率の平均値(%)である。なお(d)は、後述する BVOC Impact 実験における OH ラジカル濃度の変化率の平均値(%)を示している。これを見ることで BVOC が OH ラジカルに与える影響を考察することができる。

まず、(a)(b)過去実験と将来実験における平均値分布に注目する。分布としては、陸域よりも海域、特に太平洋側の海岸周辺で多く、気温の低い北側では少なくなっていることがわかった。続いて(c)を見ると、気温が上昇することにより、水蒸気量は全域で増加しているにもかかわらず、海域の OH ラジカルは増加傾向にあるものの、陸域の OH ラジカルについては減少傾向にあることがわかった。この原因について考察すべく(d)の図に着目する。(d)を見ると全域で、BVOC の増加が OH ラジカルを減らす働きをしていることが見て取れる。割合的には、海洋よりも陸域で OH ラジカル濃度が低下している。このメカニズムとしては陸域で発生した BVOC と、反応性の強い OH ラジカルが反応していることが考えられる。すなわち、気温が上昇に伴い大気中の水蒸気量が増加し、OH ラジカル生成も促進されたものの、陸上では気温上昇に伴い増加した BVOC との反応によって OH ラジカルが消費され、結果として陸域での OH ラジカル濃度を減少させたと考えられる。この BVOC との反応は O_3 の生成反応サイクルの一部である。そのため、気温上昇にともなう陸上での OH ラジカル増加は O_3 の生成を促進し、濃度を上昇させている可能性がある。また、VOC と OH ラジカル反応には、二次生成粒子を発生させるプロセスなども存在し、気温上昇によるエアロゾルの増加や $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の上昇を引き起こしている可能性がある。これらの結果を見るだけでは、水蒸気が O_3 へ与える影響を考察するのは難しい。そういった傾向を踏まえて、以下の 3.5 節において感度実験を行った結果から、水蒸気が O_3 に与える影響について、より詳しい考察や具体的な定量化を行う。

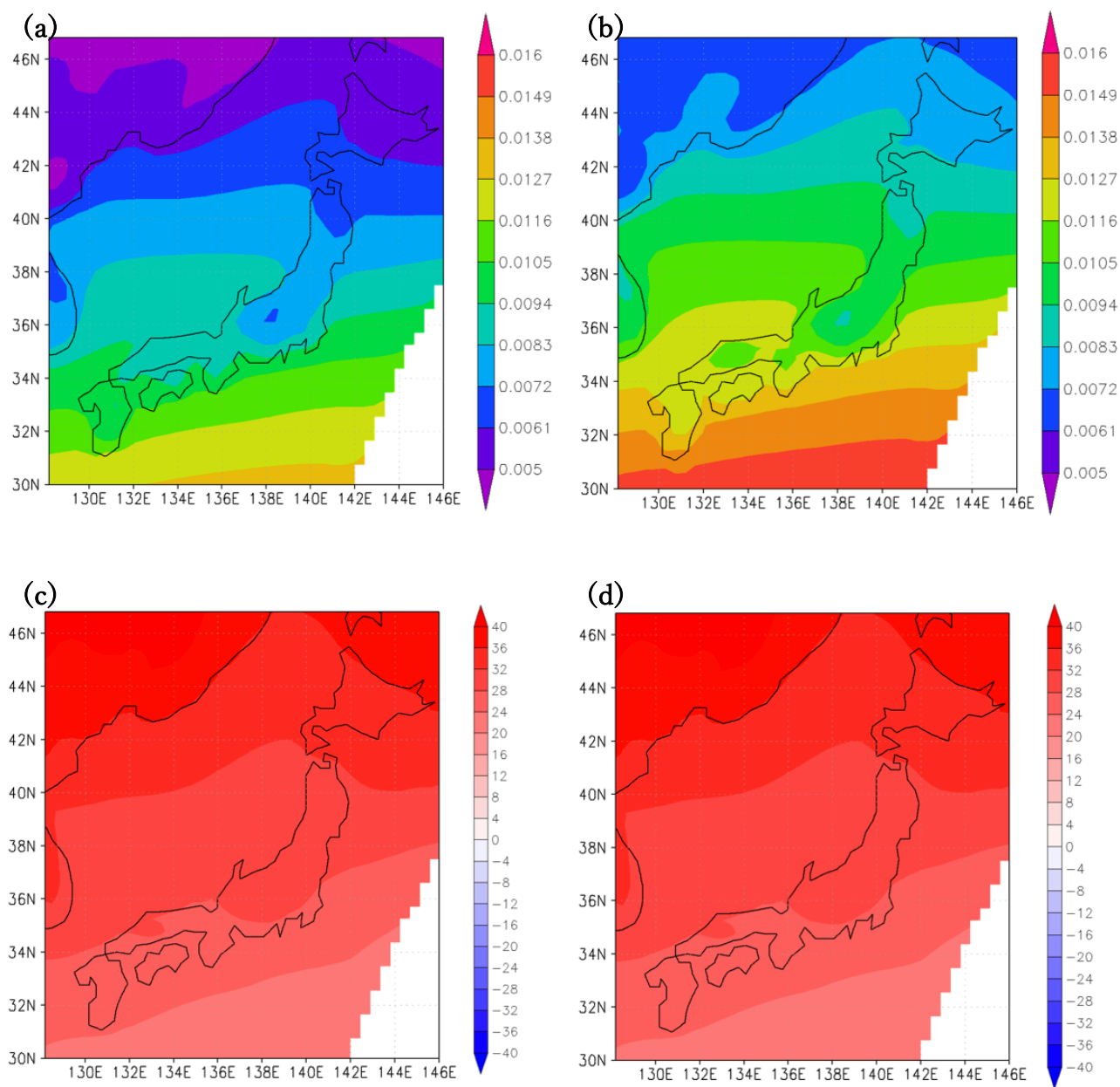


Figure 3.50 水蒸気混合比

(a)過去実験 18 メンバー平均値[kg/kg], (b)将来実験 18 メンバー平均値[kg/kg]

(c)過去実験から将来実験への変化量[kg/kg], (d)変化率[%]

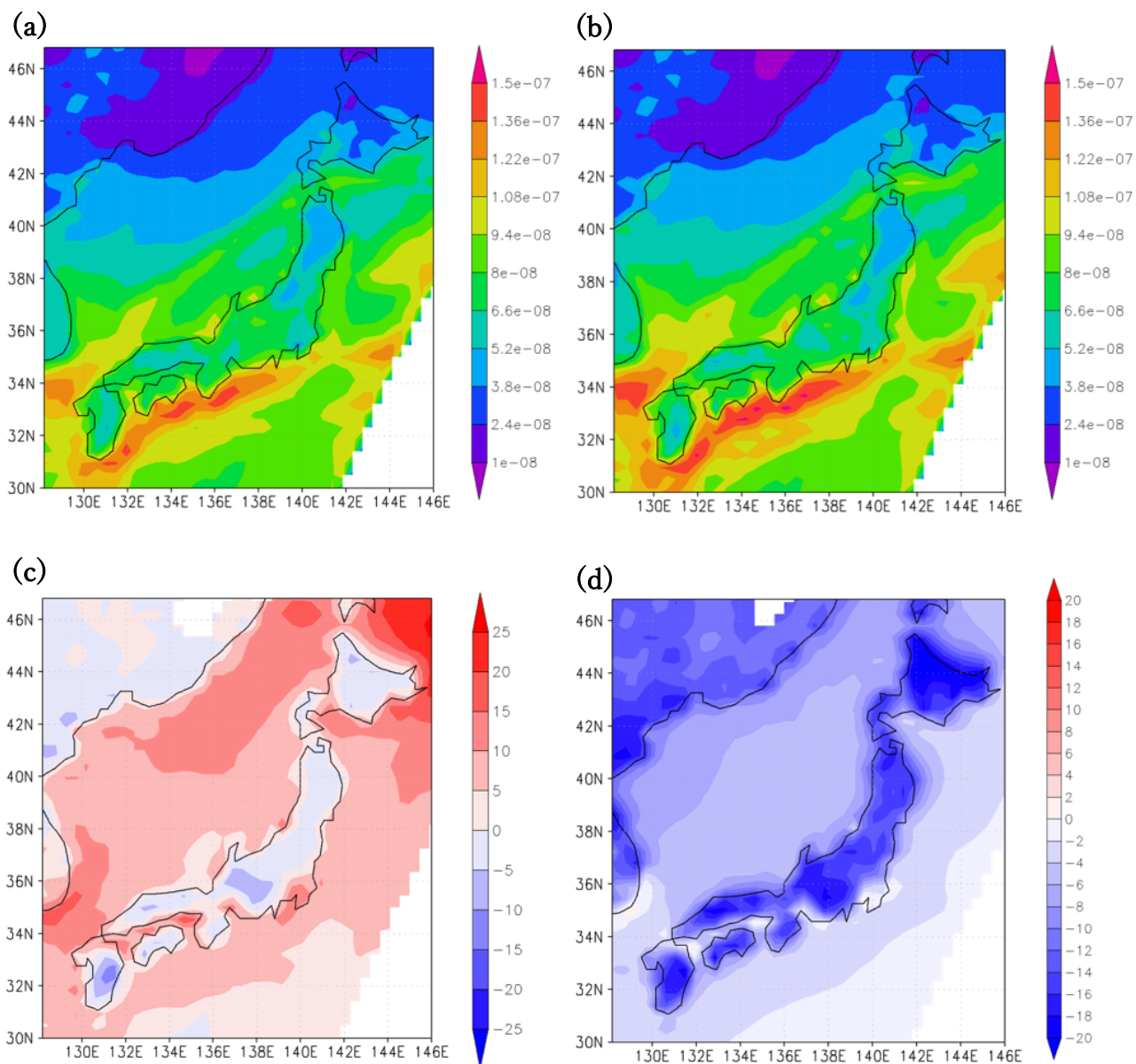


Figure 3.51 OH ラジカル濃度(混合比)

(a)過去実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g}/\text{kg}$], (b)将来実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g}/\text{kg}$]

(c)過去実験から将来実験への変化率 [%]

(d)BVOC Impact 実験における OH ラジカル濃度の変化率 [%]

3.4.4 太陽光による光解離の影響

対流圏における太陽光による光乖離によって O_3 が生成される。ここでは、気温上昇による太陽放射の変化について調べる。

Figure3.52~3.55 に各季節の下方向の短波放射のフラックスについて示す。それぞれ、(a)過去実験における平均値(W/m^2)、(b)将来実験における平均値(W/m^2)、温度上昇に伴う(c)変化量(W/m^2)と(d)変化率(%)を示している。まず、(a)(b)の平均値の分布について見てみると、多くの季節で中部地方、富士山付近から東北地方にかけて低い紫外線が確認された。上の Figure3.50 からわかるように、同様の地点で水蒸気量が低くなっているため、山の影響が表れていることが示唆される。同じように多くの季節で、北海道の大雪山でも低い値が確認された。

気温変化によって日本周辺の短波放射に大きな変化は生じなかった(5%以下)。 O_3 濃度に大きな変化がみられた夏季においては、日本海北部や東北・北海道周辺の海上で 10%の短波放射の増加が見られたが、濃度の上昇が顕著であった都市域ではほとんど変化が見られなかった。以上の結果から、気温上昇による太陽放射の変化は小さく、 O_3 濃度への影響は少ないと考えられる。

他の要因としては、気温上昇による積雪の被覆率変化からなるアルベドの変動とそれに伴った反射経路の紫外線量の変化があり、冬季や高緯度帯の O_3 生成に影響が考えられる。しかし、現バージョンの NHM-Chem 内では反射光による光化学反応については考慮に入れられていないため、今後の課題である。

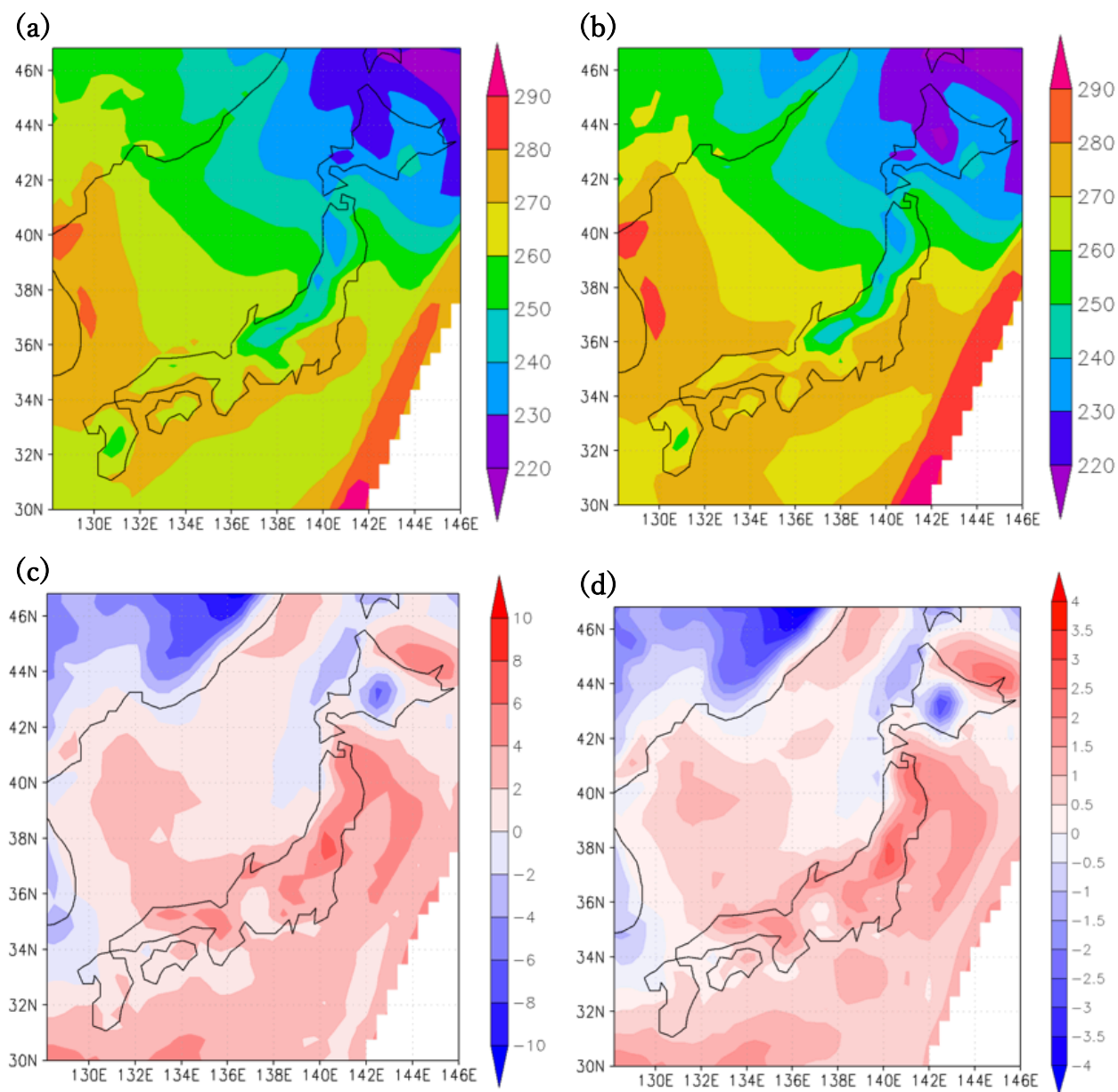


Figure 3.52 春季の下方向の短波放射フラックス

(a)過去実験 18 メンバー平均値 $[\text{W/m}^2]$, (b)将来実験 18 メンバー平均値 $[\text{W/m}^2]$

(c)過去実験から将来実験への変化量 $[\text{W/m}^2]$, (d)変化率 $[\%]$

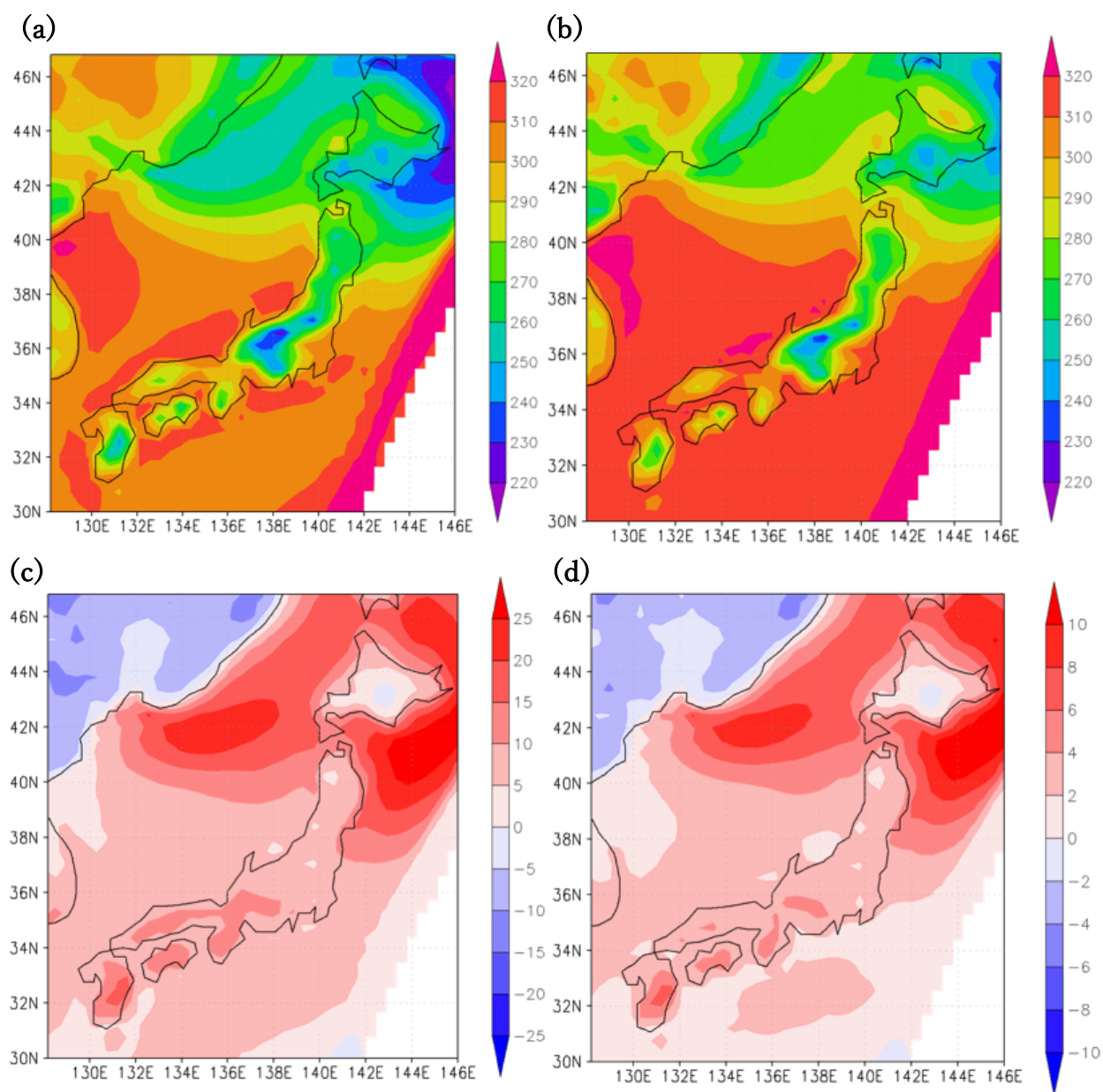


Figure 3.53 夏季の下方向の短波放射フラックス

(a)過去実験 18 メンバー平均値[W/m^2], (b)将来実験 18 メンバー平均値[W/m^2]

(c)過去実験から将来実験への変化量[W/m^2], (d)変化率[%]

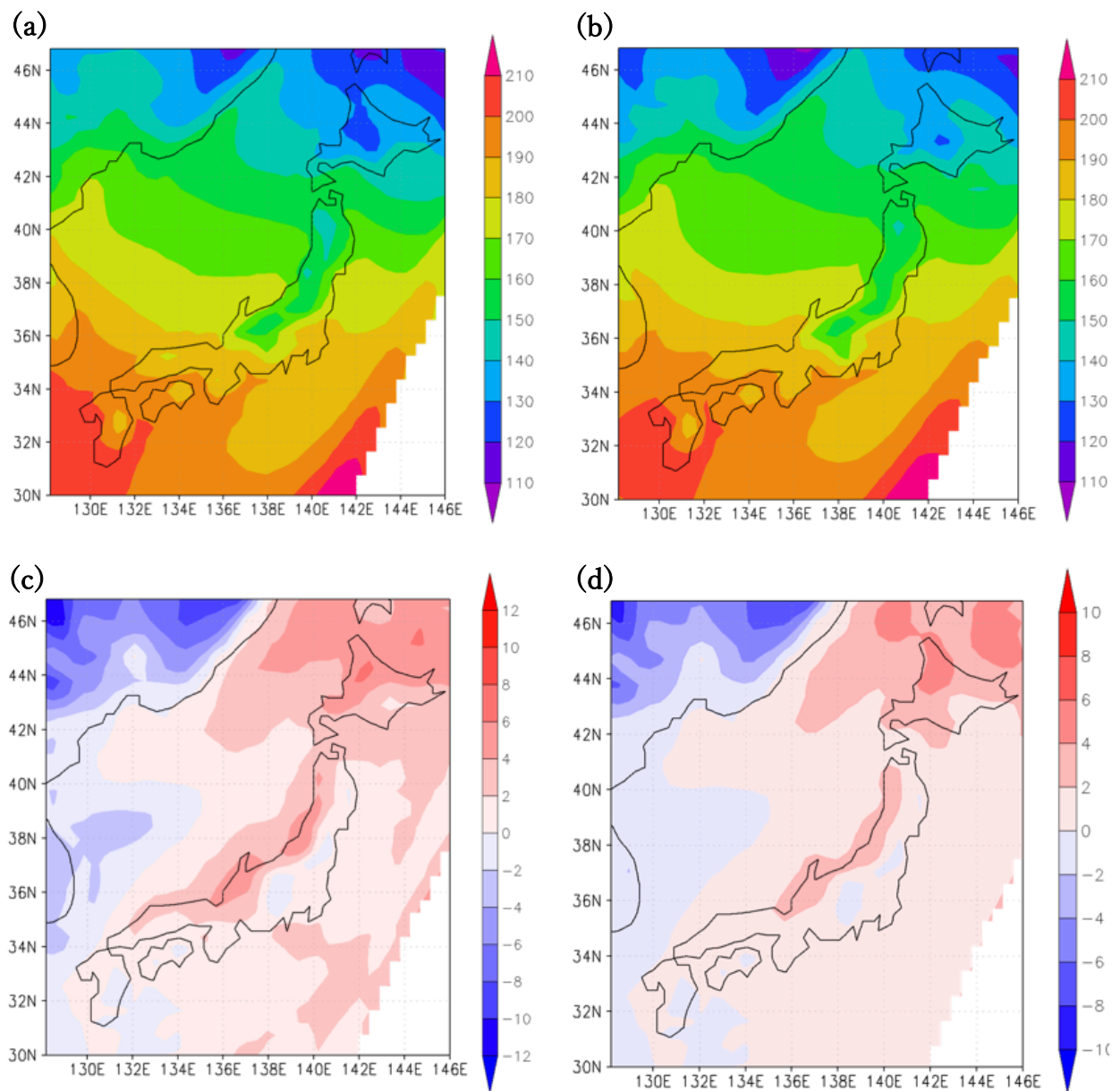


Figure 3.54 秋季の下方向の短波放射フラックス

(a)過去実験 18 メンバー平均値[W/m^2], (b)将来実験 18 メンバー平均値[W/m^2]

(c)過去実験から将来実験への変化量[W/m^2], (d)変化率[%]

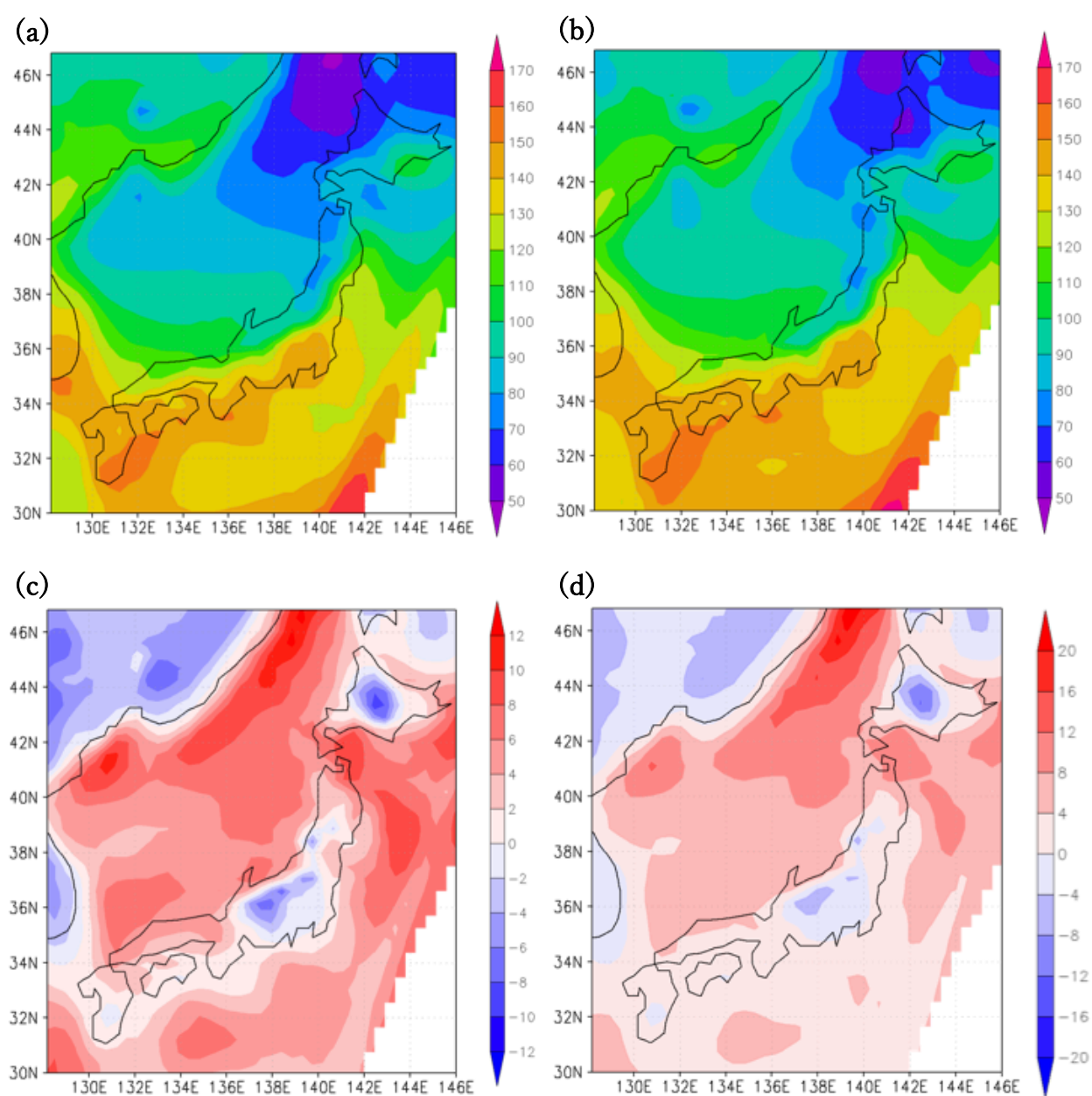


Figure 3.55 冬季の下方向の短波放射フラックス

(a)過去実験 18 メンバー平均値[W/m²], (b)将来実験 18 メンバー平均値[W/m²]

(c)過去実験から将来実験への変化量[W/m²], (d)変化率[%]

3.4.5 PAN

2.3.5 節で述べたとおり、PAN は NO_x を長距離輸送する役目を持ち、発生源から離れた遠隔地における O₃ に影響を及ぼす。PAN の大気中での寿命は温度依存性があり、高温下ではより短い時間で分解され NO₂ を放出する。Table 1.4 の③に示したとおり、気温が上昇することで PAN の熱分解が促進され、O₃ を増加させる可能性がある。

Figure 3.56 に PAN の濃度の出力結果の平均値を示す。(a)が過去実験 5 年間の平均値(μg/kg),(b)が将来実験 5 年間の平均値(μg/kg),(c)が気温上昇にともなう変化量の平均値(μg/kg)である。なお(d)は、後述する BVOC の影響を除いた将来実験(BVOC 感度実験)の結果を使用し、将来実験-BVOC 感度実験の平均値(μg/kg)を示している。これを見ることで BVOC が PAN に与える影響を考察することができる。なお、PAN については計算モデルの性質上、1 メンバー5 年間の結果を用いて考察を行う。

まず、(a)(b)に注目する。PAN の地域分布としては、中国や韓国の都市域で生成されたものが輸送された越境汚染起源のもの（たとえば、対馬海峡）と、都市域などから多く発生するローカル起源のものが見られ、これは先行研究や観測と一致する。気温上昇による変化量を見ると、日本海や対馬海峡を中心に PAN の減少が見られた。これは、大陸や朝鮮半島起源の PAN が減少したことによる。すなわち、気温上昇によって熱分解が促進され、PAN の寿命が短くなったことから、長距離輸送される PAN が少なくなっているためだと考えられる。一方、都市域を中心に PAN が気温上昇によって増加することがわかった。このメカニズムとして、2.3.1 節で述べた O₃ サイクル内での別の経路の反応が重要となってくる。VOC が豊富な環境下において、放出された BVOC が OH によって酸化されると(4)式のように RO₂ が生成され、さらに O₃ と(5)式から NO₂ が生成されるが、RO₂ と NO については、以下の(18)式で示される別の分岐を経て硝酸エステル RONO₂ を生成する。



硝酸エステルは PAN 生成の反応式(15)~(17)を起点となる物質である（反応式(17)では CH₃C(O)OONO₂ に相当）。つまり VOC が増加には PAN を増加させる働きがあるということである。その証左に、BVOC impact 実験(将来実験と BVOC の放出量を過去実験に固定した将来実験の差)の結果(Figure 3.56 (d))をみると、BVOC の増加によって PAN が顕著に増加した。

これらの結果をまとめると、越境汚染起源の PAN は気温上昇に伴い寿命が短くなり減少するが、ローカル起源の PAN については気温上昇で増加した BVOC の反応によって、増加するということがわかった。寿命の減少は遠隔地から運ばれてくる PAN を減少させ O₃ の生成を抑制する一方、都市域では本来は遠隔地に運ばれるはずだった PAN をその場または周辺で分解し O₃ の生成を促進させる可能性がある。また、BVOC の増加による PAN の生成の促進は、NO₂ を輸送しその分布を変化させるが、上記の寿命の減少も関係して複雑である。それらも含めた具体的なメカニズムの解明、定量化に向けて、今後は PAN を過去実験気候のものに固定する感度実験などを進めていく予定である。

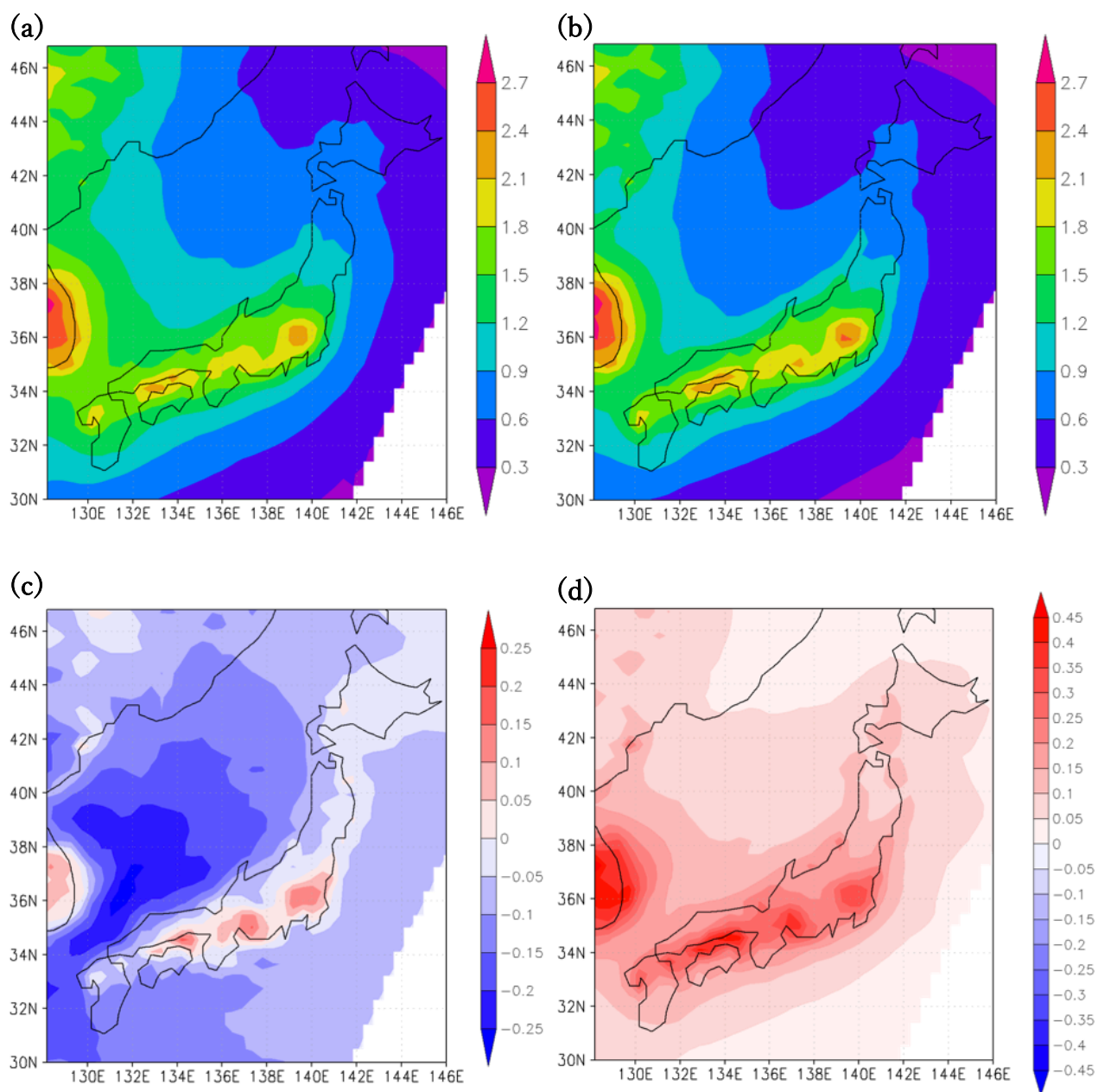


Figure 3.56 PAN 濃度

(a)過去実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g/kg}$], (b)将来実験 18 メンバー平均値 [$\mu\text{g/kg}$]

(c)過去実験から将来実験への変化量 [$\mu\text{g/kg}$]

(d)BVOC Impact 実験における PAN 濃度の変化量 [$\mu\text{g/kg}$]

3.5 感度実験を用いた各影響の O₃ 濃度変化に対する定量化

3.4 節までの議論で、O₃ が変化した要因としては、温度上昇による BVOC の増加および水蒸気量の増加による OH ラジカル生成の促進が大きく寄与することが示唆された。本節では、それぞれの影響を定量化することを目的に 2.1.4 節で示した感度実験を行った。3.3.1 節および 3.3.2 節の結果から、O₃ 濃度の上昇は特に夏季に顕著であることがわかった。例として、Figure 3.57 に東京における過去実験と将来実験の季節別の O₃ 濃度の平均値を示す（エラーバーはアンサンブルスプレッドである）。夏季の濃度が最も高く、加えて増加も顕著であることがわかる。これは、3.3.3 節で示した環境基準値および注意報発令基準値を超過した日数の変化も主に夏季における O₃ 濃度に起因することを示している。こういった結果から、この節では夏季に注目して考察を行った。なお、冬季については多くの地点で減少傾向が確認されたが、こちらの考察については今後の課題とする。

Figure 3.58 に、夏季における気温上昇にともなう O₃ 濃度の変化率(%)を(a)All Impact, (b)BVOC Impact, (c)WV Impact, (d)Other Impact について示す（各実験名称の設定については 2 章および Table 2.6 を参考にされたい）。All Impact は 3.3.1 節および 3.3.2 節で考察したとおり、都市域を中心に日本全域で O₃ 濃度が上昇している。WV Impact は O₃ 濃度が上昇する地域と低下する地域が混在しており、その変化幅は All Impact と比べると小さい。BVOC Impact は日本全域で O₃ 濃度が上昇しており、そのコントラストは All Impact とよく一致しており、都市域を中心に増加している。Figure 3.59 に東京と秋田におけるこれらの影響量をそれぞれ示す。単位は%である。東京と秋田では All Impact の O₃ 増加量に違いがあるものの、BVOC の影響がその殆どを説明している。

結果として、日本の夏季の O₃ 増加の大半は BVOC の影響によるものとわかった。割合としてはおよそ 4~16%で都市域を中心に増加しているものの全国的にプラスになっている。

Figure 3.60 の(a)に夏季の気温の変化量(K)、(b)にイソプレン放出量の変化率(%)、(c)にモノテルペン放出量の変化率(%)を示す。3.4.1 節でも示したとおり、気温はほぼ一様に増加し、それを反映して MEGAN で計算された BVOC も同じく一様に増加している。そういった中、もともと NO_x の多い都市域では、BVOC の増加によって O₃ 生成の反応が進むため、O₃ 濃度が増加する (VOC-sensitive な状態)。一方で、秋田に代表される地方では、都市域と同様に BVOC は増加するが、O₃ の増加は都市域に比べ小さい (NO_x-sensitive な状態)。すなわち、日本列島は、都市域中心の O₃ 生成が BVOC に支配される VOC-sensitive 領域と、BVOC の影響を受けにくい (NO_x 濃度に支配される) 地方中心の NO_x-sensitive 領域に分かれ、気温上昇にともなう O₃ の増加はどちらの領域に属しているかで大きく変化するといえる。

続いて WV Impact について述べる。気温上昇によって水蒸気量は一様に増加していたにも関わらず (2.3.4 節)、東京と秋田の違いからも分かるように、WV Impact は各地域によって減少方向に働いていたり、増加方向に働いていたり、かなり地域差の見られる結果となった。割合としては-4~6%ほどの変化率で、BVOC Impact と比べると小さいことがわかった。地域差が大きい理由については、2.3.4 節で述べたように、水蒸気ひいては OH ラジカルは、O₃ 生成を活性化させる働きを持つ一方で、O₃ サイクルを停止させる様な働きも持つ複雑な物質であるため、地域別に化学的なレジームを考慮する必要がある。

あり、細かい考察については今後の課題である。なお、対馬海峡を中心に北部九州や韓国にかけて WV Impact が正に大きい地域が確認された。この地域は気温上昇によって、OH ラジカルが増加した地域とも一致する。これについても原因は未だ考察中であり、追加の感度実験が必要である。

オゾンの生成過程は非線形過程であるので、これら感度実験の結果から厳密な収支をとることは難しい。Other Impact の要因として考えられるものは、紫外線や PAN、NO タイトレーションなどがある。これらについては、今後追加の感度実験を行なっていくことで、より詳細な影響評価を進めていきたい。

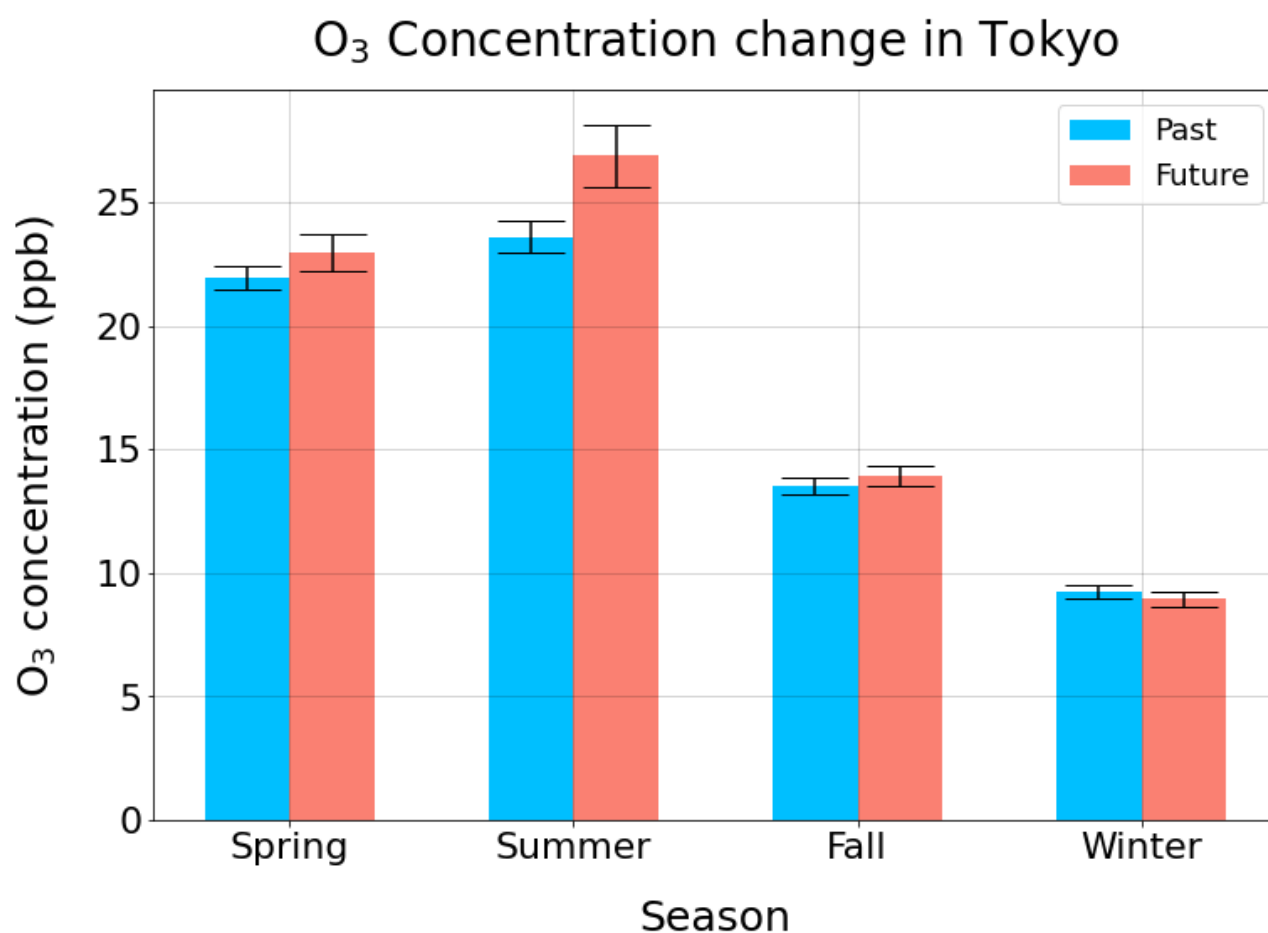


Figure 3.57 東京における季節別 O₃ 濃度平均値 [ppbv]
(青：過去実験、赤：将来実験)

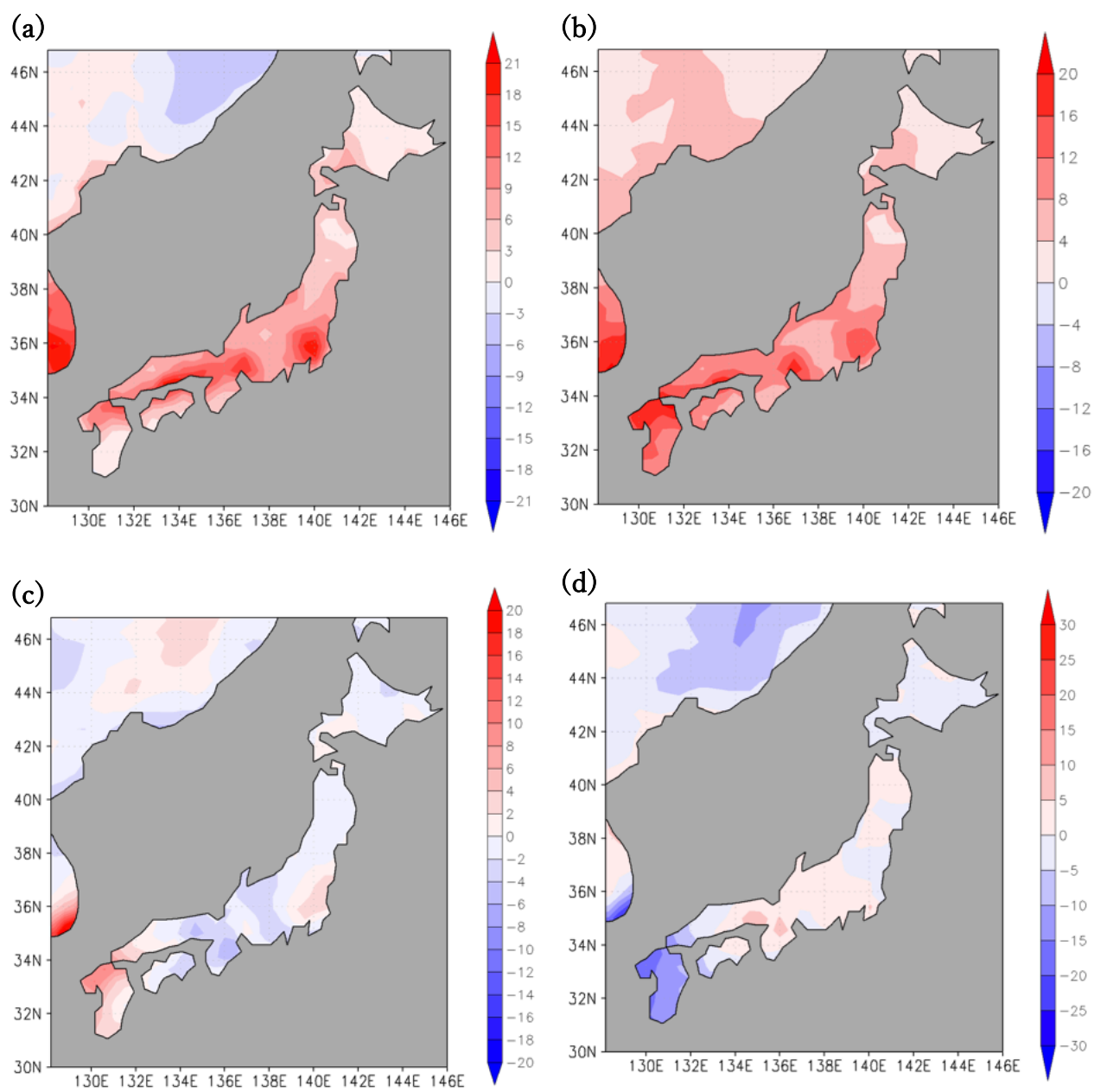


Figure 3.58 夏季の気温上昇に伴う O_3 濃度の変化率 [%]
 (a)All Impact, (b)BVOC Impact, (c)WV Impact, (d)Other Impact

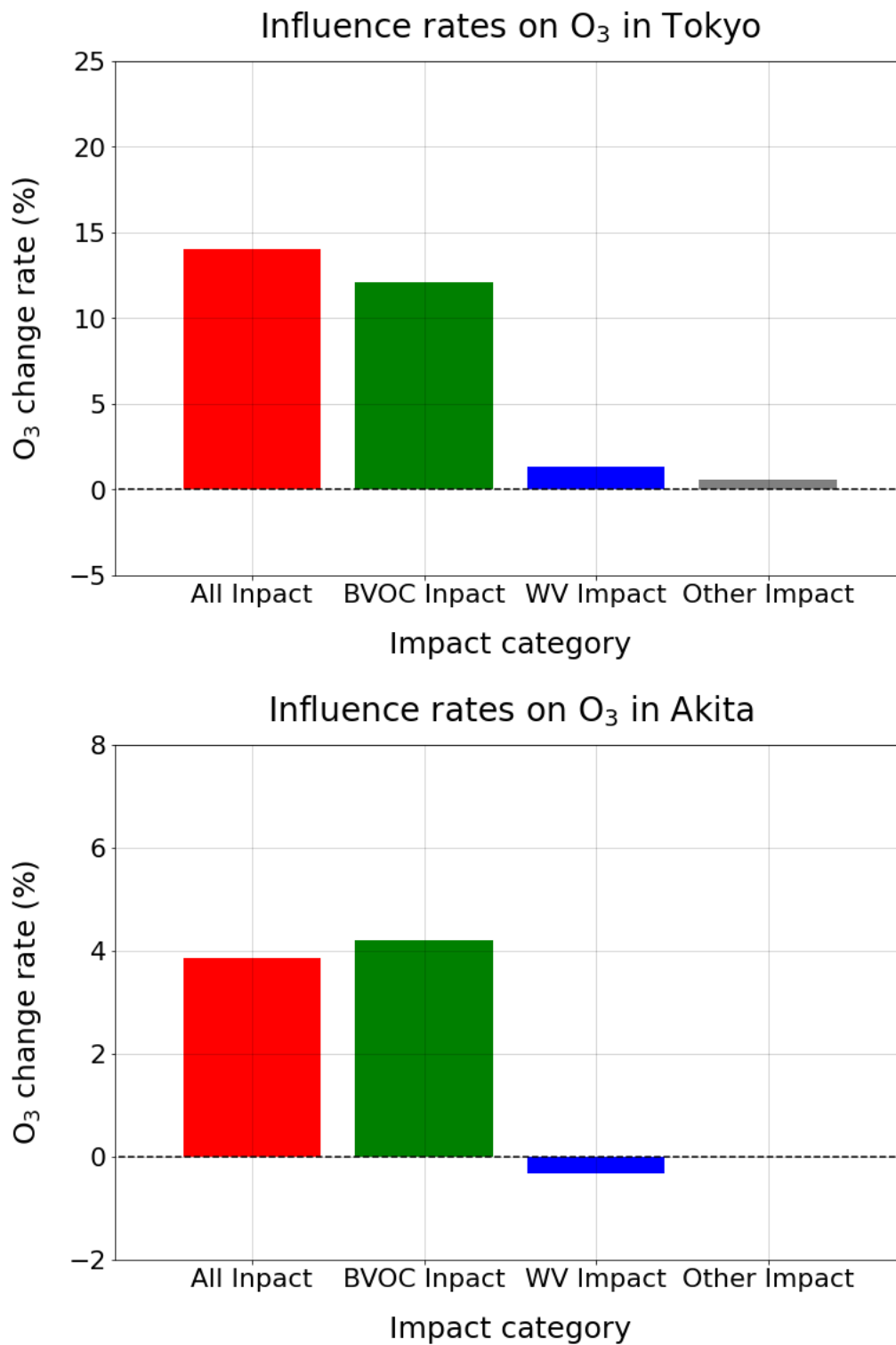


Figure 3.59 夏季の東京と秋田における O₃ に対する各要因の影響量 [%]
(上：東京、下：秋田)

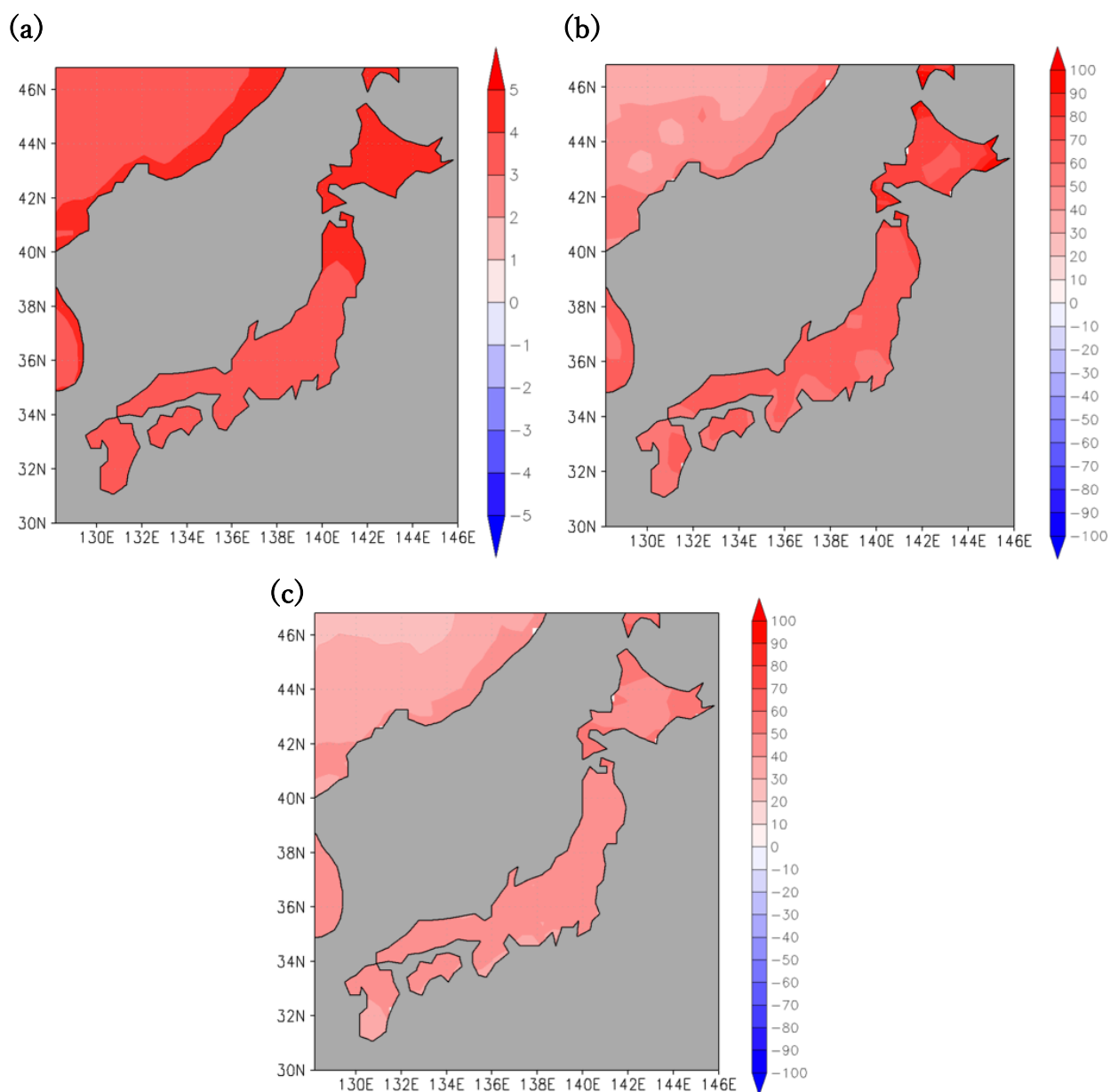


Figure 3.60 夏季における気温と BVOC の変化

(a) 気温の過去実験から将来実験への変化量 [K]

(b) イソプレン放出量の過去実験から将来実験への変化率 [%]

(c) モノテルペン放出量の過去実験から将来実験への変化率 [%]

第4章 結言

4.1 全体の総括

本研究では、将来の適応策や緩和策などのリスクマネジメントに向けて、気候変動が与える東アジアの大気汚染物質への影響について解析することを目的とし、d4PDF-Chem を用いて、変化した気候が O_3 濃度に与える影響、どの要因がどれくらい O_3 濃度に影響を与えているかの定量化を目指した。本研究で得られた結果を要約すると以下のようになる。

(1) モデル出力結果の妥当性の評価のために、過去実験の結果と EANET の観測点のデータを使用し比較・検証を行なった。越境汚染の影響を受けやすいと考えられる地点 3 カ所(隠岐、佐渡、辺戸)では、どの地点でも過去実験が観測値の標準偏差内にほとんど収まる結果となった。PDF グラフについてはどの地点でもピーク概形を捉えている結果となった。2つのピークが確認された辺戸については、季節別の PDF を出力したところ、2つのピークを季節で分離することができた。夏には低濃度側に、冬には高濃度側に山のピークが現れており、d4PDF-Chem が越境汚染の季節変動をしっかりと表現できていることが確認された。

比較的内陸部に位置する栲原と蟠竜の2地点では、午前中や夜間に過大傾向を示す結果となったが、これはモデルの解像度が $\Delta x=45\text{km}$ と少し荒く、発生源の不均一性を再現できていない点と、細かい地形の起伏による局所的な気流の再現が難しい点が原因であると考察した。

最後に CPF を使用した O_3 への気候応答の検証を行った。Yoshikado (2021)の、関東圏の夏季の日最高気温と O_3 濃度の散布図と比較を行なったところ、日最高気温と O_3 濃度間の決定係数 R^2 はそれぞれ 0.517 と 0.565 となり、先行研究と同様の強い正の相関があることが確認された。また Yoshikado (2021)によると晴天時に限定すると、気温が 33°C を超えると気温と O_3 濃度の正の相関が顕著になり、両者の間の回帰直線の傾きが大きくなる。d4PDF-Chem の結果にも、ある気温を境に気温と O_3 濃度の回帰直線の傾きが大きくなり、観測で明らかとされた特徴を捉えた結果となった。

以上の結果より、d4PDF-Chem が対流圏 O_3 の日変動や越境大気汚染を含む季節変化、気温への応答など観測された日本の O_3 の時空間変動を適切に再現できていることが示された。

(2) d4PDF-Chem の将来実験および過去実験から、将来的な気温上昇が O_3 濃度、日最高濃度、環境基準値(60ppbv)、注意報発令基準値(120ppbv)を超過した日数に与える影響を解析し、比較・評価を行った。 O_3 濃度の年平均値については北海道北東部を除き、気温上昇に伴い増加傾向が見られた。特に東京や名古屋、大阪などの大都市圏で増加が顕著であり、関東圏を例にあげると人為起源排出量は固定であるにもかかわらず、 O_3 濃度は年平均値で 2~2.5ppbv(8~10%)増加した。季節別では、こちらも基本的に都市域を中心に増加傾向が確認されたが、冬のみ全国的に減少傾向が見られた。関東圏では春が 1.5~2.0ppbv(4.0~6.0%)の増加、夏が 6.0~8.0ppbv(18.0~21.0%)の増加、秋が 2.0~2.5ppbv(8.0~10.0%)の増加、そして冬が 0.6~0.8ppbv(4.0~6.0%)の減少となり、夏季における O_3 濃度の増加が顕著となっ

た。

日最高濃度については、埼玉など日最高気温が高くなる地点で極大が見られ、日最高気温と O_3 の日最高濃度の間で相関が見て取れた。また、気温上昇にともなう日最高濃度の変化は地域差がはっきりと見られ、都市域にある埼玉では $+6.789(\pm 1.362)\text{ppbv}$ であったのに対し、地方に位置する秋田は日最大気温の上昇の程度が埼玉と同程度であるにもかかわらず $+1.330(\pm 0.383)\text{ppbv}$ と埼玉の3分の1程度の増加しか見られなかった。これは、後の感度実験の解析結果からも明らかになるが、比較的 NO_x 排出量の多い都市域と、その少ない地方におけるオゾンの生成環境の違いが原因であると考えられる。

環境基準値(60ppbv)・注意報発令基準値(120ppbv)を超過した日数の分布は、日最高濃度と同様に都市域周辺で多い傾向となり、環境省の観測による注意報発令日数の分布ともよく一致した。気温上昇にともなう日数の変化については、環境基準値の超過日数においては、東京や大阪、福岡ではそれぞれ $30.044(\pm 6.507)$ 、 $25.522(\pm 6.210)$ 、 $31.878(\pm 5.321)$ 日増加していたのに対し、地方に位置する秋田は $+13.356(\pm 3.880)$ 日程度の増加しか見られず、日最高濃度と同様に地域特性が反映された結果となった。注意報発令日数についても同様で、埼玉では8.156日から24.211日($+16.056(\pm 4.040)$ 日)とかなりの増加傾向を示したものの、秋田では18すべてのアンサンブルメンバーで日数の増加は見られなかった。

以上のことから、気候変動による気温上昇にともない全国的に O_3 濃度は都市域の夏季を中心に増加する。その結果、環境基準や注意報発令基準値を超過しやすい環境に進み、関東や中京、関西などの都市域を中心に注意報が発令される日数が大幅に増加する可能性がある。

(3) O_3 濃度の増加のメカニズムや原因を考察すべく、考えられる5つの要因について解析を行なった。

まず代表的な BVOC であるイソプレンとモノテルペンの放出量に注目した。分布としては全国的に満遍なく放出されていることが確認された。気温上昇にともなう変化量については、LAIが高い地点で BVOC が顕著に増加しており、気温が上昇し植物が活性化することで、これら BVOC の放出量が増加したと考えられる。変化率で見ると、イソプレンは50-60%、モノテルペンは40-50%というかなり大きい放出量の増加となった。

移流については、風の経路や強度、海面更正気圧に極端な変化はなかった。化学反応性に乏しく、トレーサーとして利用される CO を用い、将来実験と過去実験の比較を行ったところ、越境大気汚染の卓越する春季を含む月平均濃度に気温上昇による変化はほとんど見られず、すべての将来実験のアンサンブルメンバーの濃度が過去実験濃度の $\pm 10\%$ 以内に収まり、有意な濃度変化は見られなかった。以上の結果より、気温上昇によって移流（越境大気汚染）に大きな変化はなかったと結論づけた。

水蒸気の増加による OH ラジカル生成の促進については、水蒸気量は全域で増加しているにもかかわらず、海域の OH ラジカルは増加傾向にあるものの、陸域の OH ラジカルについては減少傾向にあることがわかった。メカニズムとしては陸域で発生した BVOC に反応性の強い OH ラジカルが消費されたことが考えられる。この BVOC との反応は O_3 の生成反応サイクルの一部であり、気温上昇にともなう陸上での OH ラジカルの増加は O_3 の生成を促し、濃度を上昇させている可能性があることが示唆された。

気温上昇による下方向の短波放射の変化については、気温変化によって日本周辺の短波放射に大きな変化は生じなかった(5%以下)。夏季においては特に海上で10%の短波放射の増加が見られたが、O₃濃度の上昇が顕著であった都市域ではほとんど変化が見られなかった。以上の結果から、気温上昇による太陽放射の変化は小さく、日本のO₃濃度への影響は少ないと結論づけた。

PANについては、越境汚染起源のPANは気温上昇に伴い寿命が短くなり減少するが、ローカル起源のPANについては気温上昇で増加したBVOCによる生成の促進によって増加するということがわかった。寿命の減少は遠隔地から運ばれてくるPANを減少させO₃の生成を抑制する一方、都市域では本来は遠隔地に運ばれるはずだったPANをその場または周辺で分解しO₃の生成を促進させる可能性がある。また、BVOCの増加によるPANの生成の促進は、NO₂を輸送しその分布を変化させるが、上記の寿命の減少も関係して複雑である。

(4) O₃濃度の変動が特に顕著であった夏季について、それぞれの変動要因の影響の定量化を目指してBVOC感度実験と水蒸気感度実験を行った。結果、日本の夏季におけるO₃増加の大半はBVOCの影響によるもので説明できることが確認された。東京を例にあげると、All Impact 14.027%のうち、BVOC Impact が12.099%ほどを占めており、ほとんどがBVOCの影響であることがわかる。一方、秋田でもBVOCが大半を占める同様の傾向を見せたものの、All Impact が3.865%、BVOC Impact が4.194%であり、都市域に比べるとかなり小さい結果となった。メカニズムとしては、気温はほぼ一様に上昇し、それを反映してMEGANで計算されたBVOCも同じく一様に増加する。そういった中、もともとNO_xの多い都市域では、BVOCの増加によってO₃生成の反応が進むため、O₃濃度は増加するが(VOC-sensitiveな状態)、一方でNO_xの少ない秋田に代表される地方では、O₃の増加は都市域に比べ小さくなるためである(NO_x-sensitiveな状態)。

WV Impactについては各地域によって減少方向に働いていたりと、増加方向に働いていたりと、かなり地域差の見られる結果となった。具体例を挙げると、東京におけるWV Impactは1.353%なのに対し、秋田は-0.317%と負に働いていることが確認された。BVOC Impactに比べるとかなり影響量は少ないものの、水蒸気についてはOHラジカルは、O₃生成を活性化させる働きを持つ一方で、O₃サイクルを停止させる様な働きも持つ複雑な物質であるため、地域別に化学的なレジームを正しく考慮していく必要がある。

O₃の生成過程は非線形過程であるため、これら感度実験の結果から厳密な収支をとることは難しいものの、以上のことから、気候変動による気温上昇にともなった夏季のO₃濃度の変動は、大半をBVOCの影響によるもので説明できることが確認された。NO_xの少ない地方に比べ、NO_xの多い都市域を中心に特に増加していることから、すなわち日本列島は、地域ごとに2種類のO₃-sensitive領域に分類することができ、気温上昇にともなうO₃の増加はどちらの領域に属しているかで大きく変化するといえる。

4.2 今後の展望

本研究では、日本周辺に焦点を当てて考察を進めてきたが、地域別の特徴を考慮した考察についてはそれほど行うことができなかった。今後、OH ラジカルや PAN などそれぞれの地点の環境特性が現れる物質については特に注意しつつ、地域別に化学的なレジームを考慮しながら、各地点に対しての考察を進めていく予定である。また本実験では、日本周辺のみならず、中国やモンゴルなども含む東アジア領域でモデル計算を行なっている。今後は、日本以外の地域にも注目し、日本における光化学オキシダントのメカニズムとの違いなどについても考慮し、考察を進めていく。

また今回の研究では、計算コストや時間の都合上、感度実験を 1 メンバー 5 年間で行なった。今後はアンサンブルの強みをより活かし、それぞれの影響の不確実性の定量化を目指すべく、メンバー数を増やし感度実験を行なっていく必要がある。また、BVOC と水蒸気の 2 種類以外にも、紫外線や PAN, NO タイトレーションの影響の定量化を目指し、追加の感度実験を行う予定である。

参考文献

鶴野伊津志,弓本桂也,板橋秀一:大気環境モデリング,森北出版 (2021)

外務省: Japan SDGs Action Platform, <https://www.mofa.go.jp/mofaj/gaiko/oda/sdgs/index.html>

環境省: 2005,令和元年度大気汚染の状況 (2019), https://www.env.go.jp/air/mat01R1_rep.pdf

環境省: 2019,令和元年度大気汚染の状況 (2019), https://www.env.go.jp/air/mat01R1_rep.pdf

環境省: 「光化学オキシダント調査検討会報告書 ～光化学オキシダントの解析と対策へ向けた指標の提言～」の公表について (お知らせ) , <https://www.env.go.jp/press/17956.html>

環境省: 気候変動への適応, <http://www.env.go.jp/earth/tekiou.html>

環境省: 大気汚染に係る環境基準(2021), <https://www.env.go.jp/kijun/taiki.html>

日本エアロゾル学会: エアロゾル研究, 34.2 (2019)

Abdul-Razzak, H. and Ghan, S. J.: A parameterization of aerosol activation. 2. Multiple aerosol types. J. Geophys. Res., 105, 6837-6844, (2000)

Andronache, C., Grönholm, T., Laakso, L., Phillips, V., and Venäläinen, A.: Scavenging of ultrafine particles by rainfall at a boreal site: observations and model estimations. Atmos. Chem. Phys., 6, 4739-4754, (2006)

Bloomer, B. J., Stehr, J. W., Piety, C. A., Salawitch, R. J. and Dickerson, R. R.: Observed Relationships of Ozone Air Pollution with Temperature and Emissions, Geophys. Res. Lett., 36, L09803 (2009)

Bourke, R. H. and R. P. Garrett: Sea ice thickness distribution in the Arctic Ocean. Cold Regions Sci. and Tech., 13, 259-280 (1987)

Byun, D., and K. L. Schere: Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. Appl. Mech. Rev., 59, 51-77 (2006)

- Carlton, A. G., Turpin, B. J., Altieri, K. E., Seitzinger, S., Reff, A., Lim, H.-J., and Ervens, B.: Atmospheric oxalic acid and SOA production from glyoxal: Results of aqueous photooxidation experiment. *Atmos. Environ.*, 41, 7588-7602, (2007)
- Carter, W.: Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment. Final report to California Air Resources Board, Rep. 92-329, Univ. of Calif., Riverside, 8 May, 569 pp, (2000)
- Chatani, S.: 気温および日射が VOC および PM の排出に及ぼす影響, 大気環境学会誌, 34(2), 73-77 (2019)
- Clarke, A. D., Owens, S. R., and Zhou, J.: An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: Implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 111, D06202, 14 pp, (2016)
- Dawson JP, Adams PJ, Pandis SN. Sensitivity of ozone to summertime climate in the eastern USA: a modeling case study. *Atmos Environ.* 2007;41(7):1494–511(2006)
- Deushi, M., and K. Shibata, Development of a meteorological research institute chemistry-climate model version 2 for the study of tropospheric and stratospheric chemistry, *Pap. Meteorol. Geophys.*, 62, 1– 46 (2011)
- Doherty, R. M., Wild, O., Shindell, D. T., Zeng, G., MacKenzie, I. A., Collins, W. J., Fiore, A. M., Stevenson, D. S., Dentener, F. J., Schultz, M. G., Hess, P., Derwent, R. G. and Keating, T. J.: Impacts of Climate Change on Surface Ozone and Intercontinental Ozone Pollution: A Multi-Model Study, *J. Geophys. Res.*, 118, 3744–3763 (2013)
- EPA: Air Quality Criteria for Ozone and Related Photochemical Oxidants (Final Report, 2006), U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC, EPA/600/R-05/004aF-cF (2006)
- Edney, E. O., Kleindienst, T. E., Lewandowski, M., and Offenberg, J. H.: Updated SOA chemical mechanism for the Community Multiscale Air Quality model. EPA 600/X-07/025, US Environ. Prot. Agency, Durham, NC, (2007)
- Fiore AM, Levy II H, Jaffe DA. North American isoprene influence on intercontinental ozone pollution. *Atmos Chem Phys.* 2011;11(4):1697–710 (2011)

- Fujita, M., R. Mizuta, M. Ishii, H. Endo, T. Sato, Y. Okada, S. Kawazoe, S. Sugimoto, K. Ishihara, and S. Watanabe, 2018: Precipitation changes in a climate with 2 K surface warming from large ensemble simulations using 60 km global and 20 km regional atmospheric models, *Geophys. Res. Lett.*, 46, 1, 435-442 (2018)
- Grell, G. A., S. E. Peckham, R. Schmitz, S. A. McKeen, G. Frost, W. C. Skamarock, and B. Eder: Fully coupled “online” chemistry within the WRF model. *Atmos. Environ.*, 39, 6957–6975 (2005)
- Guenther AB, Monson RK, Fall R. Isoprene and monoterpene emission rate variability: observations with eucalyptus and emission rate algorithm development. *J Geophys Res.* 1991;96(D6): 10799 (1991)
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181-3210 (2006)
- Heald, C. L., Henze, D. K., Horowitz, L. W., Feddema, J., Lamarque, J. F., Guenther, A., Hess, P. G., Vitt, F., Seinfeld, J. H., Goldstein, A. H. and Fung, I.: Predicted Change in Global Secondary Organic Aerosol Concentrations in Response to Future Climate, Emissions, and Land Use Change, *J. Geophys. Res.*, 113, D05211 (2008)
- Hirahara, S., M. Ishii, and Y. Fukuda: Centennial-scale sea surface temperature analysis and its uncertainty. *J. Climate*, 27, 57-75, doi: 10.1175/JCLI-D-12-00837.1. (2014)
- IPCC (2007): IPCC Fourth Assessment Report, <https://www.ipcc.ch/assessment-report/ar4/>
- IPCC (2014): IPCC Fifth Assessment Report, <https://www.ipcc.ch/assessment-report/ar5/>
- IPCC (2021): IPCC Sixth Assessment Report, <https://www.ipcc.ch/assessment-report/ar6/>
- Inoue, K., Yasuda, R., Yoshikado, H. and Higashino, H.: Spatial distribution of summer-time surface ozone sensitivity to NO_x and VOC emissions for the Kanto area Part 1: Estimation by numerical simulations with two kinds of (larger and smaller) biogenic emission estimates. *J. Japan Society for Atmos. Environ.*, 45(5), 183-193 (2010)
- Ishikawa, H.: Mass-consistent wind model as a meteorological preprocessor for tracer transport models. *J.*

- Appl. Meteorol., 33, 733-743 (1994)
- Itahashi, S.; Ge, B.; Sato, K.; Fu, J.S.; Wang, X.; Yamaji, K.; Nagashima, T.; Li, J.; Kajino, M.; Liao, H. MICS-Asia III: Overview of model intercomparison and evaluation of acid deposition over Asia. *Atmos. Chem. Phys.* 2020, 20, 2667–2693 (2020)
- Jacob, D. J. and Winner, D. A.: Effect of Climate Change on Air Quality, *Atmos. Environ.*, 43, 51–63 (2009)
- Jacob, D. J.: Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmos. Environ.*, 34, 2131-2159 (2000)
- Jacob, D. J.: “Introduction to Atmospheric Chemistry”, p.42–78, Princeton University Press (1999)
- Japan Meteorological Agency: The next generation non-hydrostatic model asuca. Additonal Volume to Report of Numerical Prediction Division, 60, Suuchi Yohoka Hokoku Bessatsu, 151 pp ,2014 (in Japanese)
- Kajino M, Inomata Y, Sato K, Ueda H, Han Z, An J, et al. Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type. *Atmos Chem Phys* ;12:11833–56. (2012b)
- Kajino, M., Deushi, M., Sekiyama, T. T., Oshima, N., Yumimoto, K., Tanaka, T. Y., et al.: NHM - Chem, the Japan Meteorological Agency's regional meteorology—Chemistry model (v1.0): Model description and aerosol representations. *Geoscientific Model Development Discussion*, 1–45 (2018)
- Kajino, M., M. Deushi, T. Maki, N. Oshima, Y. Inomata, K. Sato, T. Ohizumi, and H. Ueda: Modeling wet deposition and concentration of inorganics over Northeast Asia with MRI-PM/c. *Geosci. Model Dev.*, 5, 1363-1375. (2012a)
- Kajino, M., Ueda, H., Satsumabayashi, H., and An, J.: Impacts of the eruption of Miyakejima Volcano on air quality over far east Asia. *J. Geophys. Res.*, 109, D21204, 11 pp (2004)
- Kajino, M.: MADMS: Modal Aerosol Dynamics model for multiple Modes and fractal Shapes in the free-molecular and near-continuum regimes. *J. Aerosol Sci.*, 42, 224-248, (2011)
- Katata, G., Chino, M., Kobayashi, T., Terada, H., Ota, M., Nagai, H., Kajino, M., Draxler, R., Hort, M. C.,

- Malo, A., Torii, T., and Sanada, Y.: Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 1029-1070, (2015)
- Katata, G., Nagai, H., Wrzesinsky, T., Klemm, O., Eugster, W., and Burkard, R.: Development of a land surface model including cloud water deposition on vegetation. *J. Appl. Meteor. Clim.*, 47, 2129-2146, (2008)
- Katata, G., Nagai, H., Zhang, L., Held, A., Serça, D., and Klemm, O.: Development of an atmosphere-soil-vegetation model for investigation of radioactive materials transport in the terrestrial biosphere. *P. Nucl. Sci. Technol.*, 2, 530-537, (2011)
- Kirtman, B., Power, S. B., Adedoyin, J. A., Boer, G. J., Bojariu, R., Camilloni, I., Doblas-Reyes, F. J., Fiore, A. M., Kimoto, M., Meehl, G. A., Prather, M., Sarr, A., Schär, C., Sutton, R., van Oldenborgh, G. J., Vecchi, G. and Wang, H. J.: Near-Term Climate Change: Projections and Predictability. In *Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 953–1028, New York, NY, Cambridge University Press (2013)
- Kuang, C., McMurry, P. H., McCormick, A. V., and Eisele, F. L.: Dependence of nucleation rates on sulfuric acid vapor concentration in diverse atmospheric locations. *J. Geophys. Res.*, 113, D10209, 9 pp, (2008)
- Kurokawa and Ohara: Long-term historical trends in air pollutant emissions in Asia: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3.1 (2019)
- Kurokawa, J., Ohara, T., Uno, I., Hayasaki, M., and Tanimoto, H.: Influence of meteorological variability on interannual variations of springtime boundary layer ozone over Japan during 1981-2005. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6287-6304 (2009)
- Li, M., Zhang, Q., Kurokawa, J.-I., Woo, J.-H., He, K., Lu, Z., Ohara, T., Song, Y., Streets, D. G., Carmichael, G. R., Cheng, Y., Hong, C., Huo, H., Jiang, X., Kang, S., Liu, F., Su, H., and Zheng, B.: MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 935- 963 (2017)

- Lin, Y.-L., Farley, R. D., and Orville, H. D.: Bulk parameterization of the snow field in a cloud model. *J. Appl. Meteor. Clim.*, 22, 1065-1092, (1983)
- Lohmann, U. and Diehl, K.: Sensitivity studies of the importance of dust ice nuclei for the indirect aerosol effect on stratiform mixedphase clouds. *J. Atmos. Sci.*, 63, 968-982, (2006)
- Lu X, Zhang L, Yue X, Zhang J, Jaffe DA, Stohl A, et al. Wildfire influences on the variability and trend of summer surface ozone in the mountainous western United States. *Atmos Chem Phys.* 2016;16(22):14687–702 (2016)
- Madronich, S.: Photodissociation in the atmosphere: 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *J. Geophys. Res.*, 92, 9740-9752, (1987)
- Ministry of the Environment: H28-Nendo-Taikiosen-Joukyou-Houkokusho, pp.84–104, 2018 (in Japanese)
- Mizuta, R., Murata, A., Ishii, M., Shiogama, H., Hibino, K., Mori, N., Arakawa, O., Imada, Y., Yoshida, K., Aoyagi, T., Kawase, H., Mori, M., Okada, Y., Shimura, T., Nagatomo, T., Ikeda, M., Endo, H., Nosaka, M., Arai, M., Takahashi, C., Tanaka, K., Takemi, T., Tachikawa, Y., Temur, K., Kamae, Y., Watanabe, M., Sasaki, H., Kitoh, A., Takayabu, I., Nakakita, E. and Kimoto, M. : Over 5,000 years of ensemble future climate simulations by 60-km global and 20-km regional atmospheric models, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 98, pp. 1383–1398 (2017)
- Murakami, M., Magono, C., and Kikuchi, K.: Experiments on aerosol scavenging by natural snow crystals, Part III: The effect of snow crystal charge on collection efficiency. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 63, 1127-1137, (1985)
- Ohizumi, T.: Atmospheric Deposition –2.Wet Deposition–, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ*, 44, A17–A24 (2009) (in Japanese)
- Pleim, J. E. and Chang, J. S.: A non-local closure model for vertical mixing in the convective boundary layer. *Atmos. Environ.*, 26A, 965-981, (1992)
- S, Itahashi.; I, Uno.; S, Kim. Seasonal source contributions of tropospheric ozone over east Asia based on CMAQ-HDDM *Atmos. Environ.*, 70 (2013), pp. 204-217 (2013)

- Sadanaga, Y.: 気温および日射が揮発性有機化合物の酸化速度および光化学オキシダント生成に及ぼす影響, 大気環境学会誌, 34(2), 78-83 (2019)
- Saito, K., J. Ishida, K. Aranami, T. Hara, T. Segawa, M. Narita, and Y. Honda: Nonhydrostatic atmospheric models operational development at JMA. *J. Meteor. Soc. Japan*, 85B, 271–304 (2007)
- Saito, K., T. Fujita, Y. Yamada, J. Ishida, Y. Kumagai, K. Aranami, S. Ohmori, R. Nagasawa, S. Kumagai, C. Muroi, T. Kato, H. Eito, and Y. Yamazaki: The operational JMA nonhydrostatic mesoscale model. *Mon. Wea. Rev.*, 134, 1266–1298 (2006)
- Skamarock, W. C., J. B. Klemp, J. Dudhia, D. O. Gill, D. M. Barker, M. G. Duda, X.-Y. Huang, W. Wang, and J. G. Powers: A description of the advanced research WRF version 3. Tech. Note, NCAR/TN~475+STR, 125 (2008)
- Slinn, W. G. N.: Precipitation scavenging, in: *Atmospheric Science and Power Production*. Chap. 11, edited by: Randerson, D., No. DOE/TIC-27601, US Department of Energy, Washington, DC, 466-532, (1984)
- Steiner AL, Davis AJ, Sillman S, Owen RC, Michalak AM, Fiore AM. Observed suppression of ozone formation at extremely high temperatures due to chemical and biophysical feedbacks. *Proc Natl Acad Sci U S A*. 2010;107(46):19685–90. (2010)
- Stevenson, D. S., Young, P. J., Naik, V., Lamarque, J. F., Shindell, D. T., Voulgarakis, A., Skeie, R. B., Dalsøren, S. B., Myhre, G., Berntsen, T. K., Folberth, G. A., Rumbold, S. T., Collins, W. J., MacKenzie, I. A., Doherty, R. M., Zeng, G., van Noije, T. P. C., Strunk, A., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Plummer, D. A., Strode, S. A., Horowitz, L., Lee, Y. H., Szopa, S., Sudo, K., Nagashima, T., Josse, B., Cionni, I., Righi, M., Eyring, V., Conley, A., Bowman, K. W. and Wild, O.: Tropospheric Ozone Changes, Radiative Forcing and Attribution to Emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3063–3085 (2013)
- Tanaka, T. Y. and Ogi, A.: Update of Japan Meteorological Agency's global mineral dust operational forecast model. *Sokkou-Jihou*, 84, 109-128, 2017 (in Japanese)
- Tanaka, T. Y., Ogi, A., Yumimoto, K. et al.: Performance of the aerosol forecasting system using the global aerosol model MASINGAR and the data assimilation with satellite observations, to be submitted to *Atmosphere* (2018)

- Task Force on Research Coordination of EANET: Review on the State of Air Pollution in East Asia, p. 411, Network Center for EANET, Niigata, Japan (2015)
- Ueno, H. and Tsunematsu, N.: Effect of Temperature Increase on the Number of High Ozone Concentration Days in Kanto Area, Proc. of 59th Annual Meeting of Japan Society of Atmospheric Environment, 381 (2018) (in Japanese)
- Walcek, C. J. and Aleksic, N. M.: A simple but accurate mass conservative peak-preserving, mixing ratio bounded advection algorithm with fortran code. Atmos. Environ., 32, 3863-3880, (1998)
- Walcek, C. J. and Taylor, G. R.: A theoretical method for computing vertical distributions of acidity and sulfate production within cumulus clouds. J. Atmos. Sci., 43, 339-355, (1986)
- Woo, J.-H., Streets, D. G., 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., Clake, D. R., Fried, A., and Thornton, D. C.: Contribution of biomass and biofuel emissions to trace gas distributions in Asia during the TRACE-P experiment. J. Geophys. Res., 108(D21), 8812 (2003)
- Wu, S., Mickley, L. J., Leibensperger, E. M., Jacob, D. J., Rind, D. and Streets, D. G.: Effects of 2000–2050 Global Change on Ozone Air Quality in the United States, J. Geophys. Res., 113, D06302 (2008)
- Y., Hong, C., Huo, H., Jiang, X., Kang, S., Liu, F., Su, H., and Zheng, B.: MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP, Atmos. Chem. Phys., 17, 935- 963 (2017)
- Yonemochi, S.: Full Year Observation of Hourly PM1, PM2.5 Concentrations by Use of PM714, Proc.of the 59th Annual Meeting of J. Jpn. Soc. Atmos. Environ., p.219 (2018) (in Japanese)
- Yoshikado, H.: Mesoscale Meteorology of Domestic Air Pollution, J. Jpn. Soc. Atmos. Environ., 53, A61–A70 (2018a) (in Japanese)
- Yoshikado, Y.:光化学オゾンの夏季高濃度と気温の相関をどう見るか, 大気環境学会誌, 56, 1-8 (2021)
- Yukimoto S, Adachi Y, Hosaka M, Sakami T, Yoshimura H, Hirabara M, Tanaka TY, Shindo E, Tsujino H, Deushi M, Mizuta R, Yabu S, Obata A, Nakano H, Koshiro T, Ose T, Kitoh A: A new global climate

model of Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 - model description and basic performance. J Meteor Soc Jpn 90A:23–64 (2012)

Zhang L, Jacob DJ, Boersma KF, Jaffe DA, Olson JR, Bowman KW, et al. Transpacific transport of ozone pollution and the effect of recent Asian emission increases on air quality in North America: an integrated analysis using satellite, aircraft, ozonesonde, and surface observations. Atmos Chem Phys. 2008;8(20):6117–36. (2008)

Zhang, L., Brook, J. R., and Vet, R.: A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. Atmos. Chem. Phys., 3, 2067-2082, (2003)

Zhang, L., Gong, S., Padro, J., and Barrie, L.: A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. Atmos. Environ., 35, 549-560, (2001)

van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., van Leeuwen, T. T., Chen, Y., Rogers, B. M., Mu, M., van Marle, M. J. E., Morton, D. C., Collatz, G. J., Yokelson, R. J., and Kasibhatla, P. S.: Global fire emissions estimates during 1997–2016, Earth Syst. Sci. Data, 9, 697–720 (2017)

謝辞

本研究を遂行するにあたり、九州大学応用力学研究所 弓本 桂也教授にご指導、ご鞭撻いただきました。大気モデルを使用した研究に対して初心者であった著者を受け入れてくださり、基礎から根気強くご指導いただきましたこと、深く感謝申し上げます。同研究所の鵜野 伊津志名誉教授には、研究に関する的確なご助言をいただきました。事務補佐の檜原 典子様には、様々な事務処理をサポートいただきました。心より、感謝の意を表します。

気象庁気象研究所全球大気海洋研究部・第三研究室の梶野 瑞王主任研究官には、NHM-Chem を使用させていただき、モデルのメカニズムについてご指導いただいた上、結果に対しても様々なご助言をいただきました。心より、感謝いたします。同研究所の気候・環境研究部・第二研究室の水田 亮主任研究官を始めとする d4PDF 開発チームの皆様には、d4PDF のデータを使用するにあたって便宜を図っていただきました。心より、感謝いたします。

研究室で共に過ごし、互いに切磋琢磨した本研究室の、仲矢 光氏、村瀬 樹氏に心から御礼申し上げます

最後に、大学修士課程まで経済的にも精神的にも支えて頂き、何不自由ない環境を与えてくれた両親を始めとする家族にこの場を借りて感謝申し上げます。

2022 年 2 月 原田 晃司