地球表層における物質循環モデルの開発研究

課題責任者

関谷 高志 海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層システム研究センター

著者

荻野慎也^{*1}, 宮崎和幸^{*1,2}, 藤原正智^{*3}, 野津雅人^{*4}, 塩谷雅人^{*5}, H. A. Nguyen-Thi^{*8}, 長谷部文雄^{*3}, 松本淳^{*1,4}, J. Witte^{*6}, A. M. Thompson^{*7}, T. V. Nguyen^{*8}, 関谷高志^{*1}

*1 海洋研究開発機構, *2 Jet Propulsion Laboratory, California Institute for Technology, *3 北海道大学 大学院環境科学院, *4 首都東京大学 都市環境学部, *5 京都大学 生存圈研究所, *6 National Center for Atmospheric Research, Earth Observing Laboratory, *7 NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD, USA, *8 Aero Meteorological Observatory, Viet Nam Meteorological and Hydrological Administration, Hanoi, Vietnam

キーワード:オゾン,大気汚染,データ同化,化学輸送モデル

1.はじめに

地球規模の環境問題の解決には、その原因となっている 物質の挙動を正確に把握し、それを基にした信頼性の高 い予測を行う必要がある。そのために、本課題では、地球 シミュレータを活用して地球表層を対象とした最先端の 物質循環に関わるモデリングの研究・開発を推進してい る。ここでは、これまで本課題で構築してきた JAMSTEC 大気組成再解析データ(TCR,[3][4])を応用し、対流圏オ ゾンやエアロゾルの変動要因を解析した研究について以 降の節でそれぞれ報告する。

2. ハノイ上空における春季下部対流圏オゾン増大 の原因特定

2.1. はじめに

対流圏オゾンは大気の酸化能力を制御する OH ラジカル を生成することを通じて大気質と密接に関係するととも に、それ自体が大気汚染物質及び強力な温室効果ガスの 1 つである。大気汚染の起源を特定し、気候変動を理解す るためには、オゾンの三次元分布とその時間変動を決定 するメカニズムを詳細に理解することが重要です。

本研究では、熱力学的特性に伴うオゾン増加に関する包括的な理解を目指し、化学輸送モデルによる感度実験を 実施して詳細な分析を実施した。 最初に、3月のオゾン 増加の変動を気象状況とともに説明し、高度約1.5km と 約4kmの安定層によって分離されたオゾン変動の観点か ら3つのレジームを特定した。 次に、衛星観測データに より制約されたトップダウン放出量逆推定を用いた化学 輸送モデル実験を行うことにより、ハノイ上空のオゾン 増加に寄与するオゾン前駆体の発生源領域を調査した。 さらに、オゾン増大の三次元空間構造を明らかにし、ハ ノイ上空約3kmに現れるオゾン増大を制御するメカニ ズムを調査した。

2.2. データと手法

2004 年 9 月から 2018 年 6 月まで、毎月 1 回または 2 回、ハノイの航空気象観測所 (21.02°N、105.80°E) で収集 されたオゾンゾンデ データを使用した。 データの詳細 は Ogino et al (2013) [5]に記載されている。

ハノイ上空でのオゾン増加に対する異なる放出源地域の相対的な重要性を調べるために、全球化学輸送モデル CHASER [1]を用いて感度実験を行った。

ー酸化炭素 (CO)、窒素酸化物 (NOx)、および非メタン 炭化水素などの主要なオゾン前駆体の地表排出量は、ボ トム排出インベントリ (Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) version 4.2, the monthly Global Fire Emissions Database (GFED) version 3.1, monthly mean Global Emissions Inventory Activity (GEIA)) を利用し た。さらに、TCR から得られる、衛星 NO₂・CO 観測のデ ータ同化により最適化された日平均 NOx・CO 排出量デ ータも利用した。先験情報にはボトムアップ排出インベ ントリを用いて、データ同化での最適化を実施した [2][3]。 人為起源とバイオマス燃焼起源の両方を含むこれらの排 出量データは、個々の発生源の排出影響を評価すること を可能とした。

2.3. 結果

モデル計算 (図 1a) を用いた結果から、700 hPa で、イン ド亜大陸の北東部とインドシナ半島の北東部の2 つの地 域の東部で高いオゾン混合比 (> 62 ppbv) が再現された。 インド亜大陸地域でのオゾン前駆物質排出量を完全に削 減した感度計算では、インド北東部でのオゾン増加は消 失するが、インドシナ半島北東部でのオゾン増加は残っ た (図 1b)。この結果は、ハノイを含むインドシナ半島の 北東部でのオゾンの増加は、インドシナ北部地域での排 出に関連していることを示唆している(図 1c)。中国南部 の排出量を削減した実験については、インドシナ起源の オゾン増大が残った (図 1d)。 図 1e-g に示すように、各 領域の排出量のオゾン増大への寄与は、各感度実験の結 果を対照実験の結果から差し引くことで、より明確に理 解することができる。インドシナからの前駆物質の排出 がハノイ上空でオゾン増大を引き起こし、700 hPa 面(約 3km) におけるその影響が、ハノイ周辺の緯度と経度で約 20°の水平範囲に広がることが示された (図 1f)。



図 1.10 年間の感度モデル実験から得られた、3 月 1 日から 21 日までの期間の 700 hPa での平均オゾン水平分布。 (上パネル)(a) コントロール、(b) インド亜大陸、(c) インドシナ北部、(d) 中国南部の実験のオゾン混合比。(下のパネ ル) (e) インド亜大陸、(f) インドシナ北部、(g) 中国南部地域から放出されるオゾン前駆体によるオゾン生成。 各パネ ルのバツ印はハノイの位置を示している。 地表下の領域は白色でマスクされている。

2.4. まとめ

ハノイ上空の約14年間の定期的なオゾンゾンデ観測から、 3月に約3km でオゾンが増大することが明らかになった。 3月のオゾン濃度は、約1.5km と約5km の2 つの安定 した層によって分離された3 つの高さ範囲で大きな時間 変動を示した。気象学的および後方流跡線解析により、高

で汚染された空気に由来し、高度 1.5 km 減少は、寒波イベントに関連する海洋空 て引き起こされたことが示された。

ハノイ上空でのオゾン濃度は、インドシ オゾン前駆物質排出を削減した場合、最 された。これに、おそらくバイオマス燃焼 からの大気汚染が、ハノイでのオンン増 たことを示唆している。インドシナ半島 因するオゾンの増加が、経度と緯度で約2 って下部対流圏に拡大したことが、モデ かになった。また、モデルは冬季モンスー 清浄な空気塊の流入による地表付近のオ

を越えて対流圏中部および上部に移動し、その一部は米 国の西海岸に到達した。

本研究では、3月にハノイ上空の高度約3kmでオゾンが 増加した原因は、(1) インドシナ半島において汚染された 高濃度オゾン空気塊が高度約5kmの安定層まで十分に混 合され、その空気塊がハノイ西部まで東向きに移流され たこと、(2) 高度約 1.5 km 以下の安定層における寒波イベ ントに伴い、汚染されていない低濃度オゾンの空気塊が 海洋域からハノイ東部まで西向きに移流されたことによ るものと新たに提案した。このようなメカニズムは、活発 な浅い対流が発達した後、夏季モンスーンの降水が始ま る前の3月から4月の間にのみ発生する。東南アジアで のオゾンの増加は、バイオマス燃焼の増加だけでなく、モ ンスーン前の季節に形成された大気循環システムによっ ても引き起こされると結論付けた。この大気循環システ

ムは、オゾン分布の詳細な三次元空間構造を決定するた めに役立つもので、モデル計算を駆使した本研究から、新 たなメカニズムを理解することができた[6]。

3. COVID-19 感染拡大に伴う社会経済活動の変化が エアロゾルの二次的生成に与えた影響



した。 汚染された空気塊はさらに東に輸送され、太平洋 Longitudeンと HNO3 高度プロファイルの多成分化学データ 同化を用いて、COVID-19 ロックダウンに関連する排出量 削減に対する二次生成無機エアロゾルの応答を定量的に 評価した。

> ベースラインである"business-as-usual"排出量と比較し て、2020年4月の人為起源 NOx と SO2 排出量は、主要 汚染地域においてそれぞれ 19-25%と 14-20%減少した (図 2)。これらの排出削減により、2020年4月の硫酸塩と硝 酸塩エアロゾルのカラム量は、米国東部でそれぞれ 11% と21%、ヨーロッパで8%と11%、中国東部で12%と14% 減少したが、これは排出削減と気象の季節サイクルに対 する化学とエアロゾル熱力学システムの複雑で非線形な 反応によるものであることがモデル計算結果から示唆さ



図 2. COVID-19 ロックダウンによる国別の NOx および SO₂排出量削減の空間分布。2020 年 4 月の NOx (左) と SO2 (右)の COVID-19 アノマリーは、各国における 2020 年と BAU の排出量の平均差から推定される。アノマリーは相対 変化量(%)で示されている。排出量アノマリーが不確実性よりも大きく、かつ、人為的排出量の全排出量に対する割 合が 70%以上の国をハッチングで示している。

れた。これらの領域における二次エアロゾルの減少は、 Suomi NPP/VIIRS と Terra、Aqua/MODIS から得られた 2020 年 4 月とそれ以前の年のエアロゾル光学深度の変化(全 成分のエアロゾル量変化に対応)の 43%以上に相当した。 これらの結果は、大気汚染・気候変動対策としての NOx、 SO2 排出規制効果の評価に対して有用な情報を提供する ものである。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP15204043, JP18204041, JP21244072, JP26220101, JP16K00535の助成を受けた。 ハ ノイにおける SHADOZ ゾンデ観測は NASA の Upper Atmosphere Research Program through funding to Goddard Space Flight Center (Maryland USA) および the Ozone group at NOAA's Global Monitoring Lab (Colorado USA)の支援を受 けた。本研究には、ESA が処理した Copernicus Sentinel TROPOMI データ (2018 年)を修正したものが含まれて いる。また、データ同化及びモデル計算には、JAMTEC の 支援により地球シミュレータを使用した。

文献

Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., & Akimoto, H. (2002). Chaser: A global chemical model of the troposphere 1. Model description. *Journal of Geophysical Research*, *107*(D17), 4339. <u>https://doi.org/10.1029/2001JD001113</u>

[2] Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Folkert Boersma, K., Bowman, K., & Kanaya, Y. (2017). Decadal changes in global surface NOx emissions from multi-constituent satellite data assimilation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(2), 807– 837. <u>https://doi.org/10.5194/acp-17-807-2017</u>

[3] Miyazaki, K., Eskes, H. J., & Sudo, K. (2015). A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315–8348, https://doi.org/10.5194/acp-15-8315-2015.

[4] Miyazaki, K., Bowman, W. K., Yumimoto, K., Walker, T.,& Sudo, K. (2020). Evaluation of a multi-model, multiconstituent assimilation framework for tropospheric chemical reanalysis. Atmospheric Chemistry and Physics, 20(2), 931–967. https://doi.org/10.5194/acp-20-931-2020

[5] Ogino, S.-Y., Fujiwara, M., Shiotani, M., Hasebe, F., Matsumoto, J., Hoang, T., et al. (2013). Ozone variations over the northern subtropi- cal region revealed by ozonesonde observations in Hanoi. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *118*(8), 3245–3257. https://doi. org/10.1002/jgrd.50348

[6] Ogino, S.-Y., Miyazaki, K., Fujiwara, M., Nodzu, M. I., Shiotani, M., Hasebe, F., et al. (2022). Cause of a lowertropospheric high-ozone layer in spring over Hanoi. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 127, e2021JD035727. https://doi.org/10.1029/2021JD035727

[7] Hammer, M.S., van Donkelaar, A., Martin, R.V., McDuffie, E.E., Lyapustin, A., Sayer, A.M., Hsu, N.C., Levy, R.C., Garay, M.J., Kalashnikova, O.V., et al. (2021). Effects of COVID-19 lockdowns on fine particulate matter concentrations. *Sci. Adv.*, 7, eabg7670.

Environmental Geochemical Cycle Modelling Research

Project Representative

Takashi Sekiya Earth Surface System Research Center, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Authors

Shin-Ya Ogino^{*1}, Kazuyuki Miyazaki^{*1,*2}, Masatomo Fujiwara^{*3}, Masato I. Nodzu^{*4}, Masato Shiotani^{*5}, H.A. Nguyen-Thi^{*8}, Fumio Hasebe^{*3}, Jun Matsumoto^{*1,*4}, J. Witte^{*6}, A.M. Thompson^{*7}, T.V. Nguyen^{*8}, and Takashi Sekiya^{*1}

*1 Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, *2 Jet Propulsion Laboratory, California Institute for Technology, *3 Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, *4 Department of Geography, Tokyo Metropolitan University, *5 Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University, *6 National Center for Atmospheric Research, Earth Observing Laboratory, *7 NASA Goddard Space Flight Center, *8 Aero Meteorological Observatory, Viet Nam Meteorological and Hydrological Administration

Keywords : ozone, air pollution, data assimilation, chemical transport model

1. Introduction

To solve global-scale environmental problems including global warming, it is necessary to accurately understand the geochemical cycles that cause such problems and to make reliable predictions. To this end, this project is carrying out research and development of state-of-the-art modeling related to geochemical cycles at the Earth's surface using the Earth Simulator. Here we report in the following sections on studies that have applied the JAMSTEC tropospheric chemistry reanalysis data (TCR, [3][4]), which have been constructed under this project, to analyze the controlling factors for spatial and temporal variations in tropospheric ozone and aerosols, respectively.

2. Cause of a Lower-Tropospheric High-Ozone Layer in Spring Over Hanoi

2.1. Introduction

Tropospheric ozone is closely related with air quality by producing hydroxyl radicals, which control the oxidizing capacity of the atmosphere and is itself an air pollutant and one of the strong greenhouse gases. It is important to describe and understand the mechanism determining the three-dimensional (3D) distribution of ozone and its temporal variation in order to trace the origin of air pollution and to understand climate variability and change.

In this study, we conducted a comprehensive study on the ozone enhancement with thermodynamic properties and the detailed analysis of chemical model sensitivity experiments. We first describe the variabilities of the ozone enhancement in March together with background meteorological properties, in which we identify three regimes in terms of ozone variability separated by the stable layers at about 1.5 km and about 4 km. We then investigated the source region of ozone precursors that contributes the ozone enhancement above Hanoi by conducting sensitivity experiments using a chemical transport model with the observationally constrained top-down emissions. We further reveal the 3D structure of the ozone enhancement and investigate the mechanisms controlling the ozone enhancement that appears at about 3 km above Hanoi.

2.2. Data and methods

We used ozonesonde data collected at the Aero-Meteorological Observatory (21.02°N, 105.80°E), Hanoi, once or twice in each month from September 2004 to June 2018. The observations are described in detail in Ogino et al. (2013) [5]. To examine the relative importance of different emission source regions on the ozone enhancement above Hanoi, we performed sensitivity experiments using the global chemical-transport model, CHASER [1].

The surface emission of major ozone precursors, such as carbon monoxide (CO), nitrogen oxide (NOx), and nonmethane hydrocarbons, were included in the model based on the published emission inventories [the Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) v4.2, the monthly Global Fire Emissions Database (GFED) v3.1, and monthly mean Global Emissions Inventory Activity (GEIA). We employed daily NOx and CO emissions that were optimized using the assimilation of satellite NO2 and CO measurements, where the a priori emissions were constructed based upon bottom-up emission inventories [2][3]. These emissions, including both anthropogenic and biomass burning components, were obtained from the Tropospheric Chemistry Reanalysis (TCR, [3][4]) and enabled us to evaluate the emission impacts for individual sources.

2.3. Results

At 700 hPa, the control experiment (Fig. 1a) reveals high ozone mixing ratio (>62 ppbv) over each of the eastern parts of the two regions: the northeastern part of Indian subcontinent and



Fig. 1. The mean horizontal ozone distributions at 700 hPa for the period from March 1st to 21st obtained from the 10-year sensitivity model experiments. (Upper panels) Ozone mixing ratio for (a) the control, (b) the Indian subcontinent, (c) the northern Indochina, and (d) the southern China experiments. (Lower panels) The ozone production due to the ozone precursors emitted from (e) the Indian subcontinent, (f) the northern Indochina, and (g) the southern China regions. A cross mark in each panel shows the location of Hanoi.

northeastern part of the Indochina Peninsula. By eliminating the ozone precursor emission over the Indian subcontinent region, the ozone enhancement over northeast India disappears, whereas the one over the northeast Indochina Peninsula remains (Fig. 1b). The ozone enhancement over the northeastern part of the Indochina Peninsula, including the Han<u>indiansubcontinent</u>

associated with emissions over the northern (Fig. 1c). In the case of the southern Chir Indochina signal remains (Fig. 1d). The emissions over each region can be more subtracting the result of each sensiti from that of the control experiment, as 1e-1g. We find that the Indochina err the ozone enhancement above Hanoi a 700 hPa (about 3 km) spreads arou horizontal extent of about 20° in latitud (Fig. 1f).

2.4. Conclusions

Regular ozonesonde observations for about 14 years above Hanoi revealed an ozone increase at \sim 3 km in March. The ozone densities in March showed large temporal variability at three height ranges that are separated by two stable layers at \sim 1.5 and \sim 5 km. Meteorological and backward trajectory analyses showed that a typical ozone enhancement at \sim 3 km originated from air polluted over the Indochina Peninsula and a typical decrease below 1.5 km was caused by the advection of the clean oceanic air associated with a cold surge event.

The ozone concentration above Hanoi was most effectively suppressed when emissions of ozone precursors over northern Indochina Peninsula are eliminated. This suggests that air pollution from northern Thailand (probably due to biomass burning) contributed most to the ozone increase in Hanoi. The model showed that the ozone increase originated from the northern Indochina Peninsula emission expanded in the lower troposphere over an area of about 20° in longitude and latitude. The model also reproduced the ozone decrease near the surface due to the clean air intrusion associated with the winter monsoon easterly wind. The polluted air was further transported eastward into the middle and upper troposphere across the Pacific Ocean, <u>aNorthernfthdeching the Southernfthnal ISA</u>



Longituffancement, but also by atmospheric circulation system formed in pre-monsoon season. The circulation system determines the detailed 3D structure of ozone distribution [6].

3. The global COVID-19 lockdown impacts on secondary aerosol formation

The world-wide lockdown measures to prevent spreading the 2019 Novel Coronavirus (COVID-19) led to substantial reductions in anthropogenic air pollutants' emissions. The unprecedent global emission reductions enable us to investigate how atmospheric composition respond to reduced human activity. Global COVID-19 lockdown impacts on fine particulate matters (PM_{2.5}) have been evaluated [7]. However, changes in secondary



Fig. 2. Spatial distributions of the NOx and SO₂ emission reductions at a country scale due to the COVID-19 lockdown. The COVID-19 anomalies of NOx (left) and SO₂ emissions (right) in April 2020 are estimated from mean differences between the 2020 and BAU emissions over individual countries. The anomalies are shown in relative changes (in percentage). Countries with emission anomalies larger than their uncertainties and with the anthropogenic emission contributions to total emissions larger than 70% are shown in hatched lines.

aerosols on regional to global scales remain unclear. Integration of observational information on aerosol precursor gases from space provide insight on responses of secondary aerosols to reduced anthropogenic emissions on the global scale. We quantify the response of secondary inorganic aerosols to COVID-19-related emission reductions using a multi-constituent chemical data assimilation of the TROPOMI for tropospheric NO₂ column and total SO₂ column, the MLS for ozone and HNO₃ vertical profiles.

Compared to the baseline "business-as-usual" emissions, anthropogenic NOx and SO₂ emissions in April 2020 were reduced by 19-25% and 14-20%, respectively, over major polluted regions (Fig. 2). These regional emission reductions led to decreases in sulfate and nitrate aerosol column amounts by 11% and 21%, respectively, over the eastern United States, by 8% and 11% over Europe, and by 12% and 14% over eastern China in April 2020. The model results suggested that these changes resulted from complex and non-linear responses of chemistry and aerosol thermodynamic system to the emission reductions and seasonal cycles in meteorology. The decreases in secondary aerosols over these three regions corresponded to more than 43% of the aerosol optical depth changes between April 2020 and previous years derived from Suomi NPP/VIIRS and Terra and Aqua/MODIS. These results provide an implication for impacts of anthropogenic NOx and SO2 emission controls for air pollution and climate change.

Acknowledgement

This work was supported by JSPS KAKENHI Grant Nos. JP15204043, JP18204041, JP21244072, JP26220101, and JP16K00535. The SHADOZ sondes at Hanoi are supported by NASA's Upper Atmosphere Research Program through funding to Goddard Space Flight Center (Maryland USA) and the Ozone group at NOAA's Global Monitoring Lab (Colorado USA). This work contains the modified Copernicus Sentinel data (2018), processed by ESA, for TROPOMI. Earth Simulator was used for simulation and data assimilation calculations with the support of JAMSTEC.

References

Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., & Akimoto, H. (2002). Chaser: A global chemical model of the troposphere 1. Model description. *Journal of Geophysical Research*, *107*(D17), 4339. https://doi.org/10.1029/2001JD001113

[2] Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Folkert Boersma, K., Bowman, K., & Kanaya, Y. (2017). Decadal changes in global surface NOx emissions from multi-constituent satellite data assimilation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(2), 807– 837. <u>https://doi.org/10.5194/acp-17-807-2017</u>

[3] Miyazaki, K., Eskes, H. J., & Sudo, K. (2015). A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315–8348, https://doi.org/10.5194/acp-15-8315-2015.

[4] Miyazaki, K., Bowman, W. K., Yumimoto, K., Walker, T., & Sudo, K. (2020). Evaluation of a multi-model, multiconstituent assimilation framework for tropospheric chemical reanalysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(2), 931– 967. <u>https://doi.org/10.5194/acp-20-931-2020</u>

[5] Ogino, S.-Y., Fujiwara, M., Shiotani, M., Hasebe, F., Matsumoto, J., Hoang, T., et al. (2013). Ozone variations over the northern subtropi- cal region revealed by ozonesonde observations in Hanoi. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *118*(8), 3245–3257. https://doi. org/10.1002/jgrd.50348

[6] Ogino, S.-Y., Miyazaki, K., Fujiwara, M., Nodzu, M. I., Shiotani, M., Hasebe, F., et al. (2022). Cause of a lowertropospheric high-ozone layer in spring over Hanoi. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 127, e2021JD035727. https://doi.org/10.1029/2021JD035727

[7] Hammer, M.S., van Donkelaar, A., Martin, R.V., McDuffie, E.E., Lyapustin, A., Sayer, A.M., Hsu, N.C., Levy, R.C., Garay, M.J., Kalashnikova, O.V., et al. (2021). Effects of COVID-19 lockdowns on fine particulate matter concentrations. *Sci. Adv.*, 7, eabg7670.