

大気汚染物質が都市域豪雨の
雲微物理過程に及ぼす影響に関する数値実験とその検証
Numerical Experiments and their Verification on the Influence of Air Pollutants
on Cloud Microphysical and Chemical properties of Urban Heavy Rainfall

梶川友貴*^{1,2}, 梶野瑞王*^{2,3}
Tomoki KAJIKAWA, Mizuo KAJINO

This study found that air pollutants contribute to the intensification and acidification of urban heavy rainfall (UHR) in the calculations using a meteorological and chemical transport model, NHM-Chem with chem-to-met feedback processes, under the uncertainties from cloud microphysical and chemical modules. Considering chemical properties in aerosol-cloud interaction (ACI) process enhanced cloud droplet transport to higher altitudes, promoting graupel growth. The resulting maximum 1-hour precipitation was enhanced nonlinearly. The contribution of local anthropogenic air pollutants to wet deposition in UHR was estimated to be 40-80%. The wet deposition of acidic substances was 2.54 times higher in UHR than in normal precipitation.

1. はじめに

東京における都市域豪雨 (Urban Heavy Rainfall: UHR) は夏季の午後から夜の初め頃にかけて降水頻度が 30%/century の割合で有意な増加傾向にあることが、1890 年から 2007 年の 1 時間値を用いたトレンド解析の結果から報告されている (Fujibe et al. 2009). 東京における UHR 発生の原因としては、関東南北の加熱差による局地前線の形成 (Kawabata et al. 2007) や、ヒートアイランド現象や都市の粗度による対流 (Yokoyama 2016), 東京湾や相模湾からの海風の侵入と楔型前線の形成 (Nakayoshi et al. 2013) が東京における豪雨の原因として指摘されている. より広いスケールでの UHR 発生条件については、関東スケールでの大気不安定な状態 (前線が東北地方に停滞していることや、日本の南方海上に台風や熱帯低気圧が存在する状況) における北からの寒気の流入が指摘されている (三上ほか 2005).

他方で、都市のような大気汚染地域においては、エアロゾル-雲相互作用 (Aerosol Cloud Interaction:

ACI) のエアロゾル第 2 種間接効果 (雲寿命効果 (Albrecht 1989)) による豪雨形成プロセスの存在も指摘されている (Rosenfeld et al. 2008). 汚染時には清浄時に比較してエアロゾル数濃度が高く、雲凝結核 (Cloud Condensation Nuclei: CCN) や氷晶核 (Ice Nucleating Particle: INP) が多く供給されることで、雲粒や雲氷の粒径が小さくなり、成長が抑制され大気寿命が延びることで、かえって上空への水物質の輸送が強化される (Rosenfeld et al. 2008). これにより積乱雲の発達を促すことで降水機会の減少と引き換えに降水の激化をもたらすとされている (Rosenfeld et al. 2008). 実際に、人為的な大気汚染物質が CCN や INP として作用して降水の激化 (invigoration) を引き起こしたことが衛星観測と合わせて数値モデル WRF-SBM で確認されている (Zhao et al. 2019).

しかし、UHR の成因に関する気象学的な既往研究の多くは、エアロゾルの化学組成・時空間分布が十分に考慮されていない. 粒子状物質 (Particulate Matter: PM) の前駆気体である二酸化硫

*1 筑波大学理工情報生命学術院 kajikawa@mri-jma.go.jp
Graduate School of Science and Technology, University of Tsukuba

*2 気象庁気象研究所
Meteorological Research Institute, Japan Meteorological Agency

*3 筑波大学生命環境系
Faculty of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba

黄や窒素酸化物、揮発性有機化合物 (Volatile Organic Carbons: VOCs) 等は O_3 酸化やラジカル反応、拡散等の結果として $PM_{2.5}$ 等の二次生成粒子となるが、その過程では気温や湿度、紫外線等が影響する。そのため、エアロゾルの濃度や組成は時空間的に変化する。さらにエアロゾルの組成の違いは CCN / INP 活性の差に現れる。CCN や INP としては代表的なものに、海塩粒子やバイオエアロゾル、硫酸塩や硝酸塩、火山灰、鉱物粒子、ブラックカーボン (BC)、二次生成有機エアロゾル (Secondary Organic Aerosol: SOA) 等が挙げられ、それぞれ異なる CCN / INP 活性を示し、実大気においてはこれらが内部混合した状態で存在している (Kadowaki 1991; Šantl-Temkiv et al. 2019; Sofiev et al. 2011; Yamashita et al. 2011; Hoose and Möhler 2012; Kanji et al. 2017, 2020; Maters et al. 2019; Jaeglé et al. 2011; Ma and He 2012; Shiraiwa et al. 2011; Jahn et al. 2019; Fröhlich-Nowoisky et al. 2016)。しかし、数値気象モデルにおいては多くの場合、エアロゾル濃度や組成を一様と仮定して (もしくは大陸性と海洋性を区別して) 雲生成過程を扱っている。

2012 年から東京・新宿区において継続して降水の採取・化学分析が行われた報告によれば、UHR では通常の降雨に比べて酸性成分 (H^+ , NH_4^+ , NO_3^- , $nss-SO_4^{2-}$) の湿性沈着フラックスが 17.8 倍であり、UHR は大気汚染物質を効率的に取り込んでいる (Uchiyama et al. 2017a)。また、UHR においては降水の水素・酸素安定同位体比が通常降雨と比較して有意に低い値を示し、先の酸性物質との高い相関が確認されたことから、雲内洗浄の過程で酸性物質が取り込まれている可能性が指摘されている (Uchiyama et al. 2017b)。また、地理情報システム (GIS) を用いて UHR 発生直前において $PM_{2.5}$ 高濃度域が形成されていることから、これら $PM_{2.5}$ 等の大気汚染物質が UHR の CCN や INP として作用している可能性が指摘されている (Sugo et al. 2020)。しかし、地上降水や接地境界層内での化学・安定同位体分析の結果から、上空における物質輸送や雲生成過程を考察し、大気汚染物質が UHR に及ぼす影響について定量的に評価を行うことが困難である。

化学場から気象場へのフィードバック過程を実装した気象化学モデルを用いることで地上から上空への物質輸送や、化学反応によるエアロゾル生成、エアロゾルによる雲生成を時空間的に捉える

ことが可能になる。例えば、中国・北京大都市圏を対象に WRF-UCM-Chem v3.5.1 を用いて人為起源のエアロゾルが都市域の夏季降水に及ぼす影響について検証を行った報告がある (Zhong et al. 2015; Wang et al. 2016)。これらの報告によれば、人為起源のエアロゾルが都市の夏季降水を強化し (Wang et al. 2016)、都市化 (都市土地被覆の拡大) とエアロゾルによるそれぞれの降水強化を定量的に比較すると事例によってはエアロゾルによる効果が支配的となっている (Zhong et al. 2015)。しかし、既往研究の多くで使用されている雲微物理スキームは雲水数濃度を予報変数としておらず、ACI を直接考慮していない。また、化学場の再現の検証や降水への化学物質の取り込みについて議論が十分にされていない。

以上の背景を踏まえて本研究では、UHR に対して大気汚染物質が ACI を介して及ぼす影響について定量的な推定を行うことを目的とした。ここでは、東京における UHR 事例を対象に、雲構造や降水特性、化学特性に対する大気汚染物質の寄与率について気象庁非静力学モデル NHM と気象庁気象化学モデル NHM-Chem を用いて推定した結果を報告する。

2. 解析手法

本研究では図 1 に示すように、上空における雲生成や地上におけるエアロゾル生成等、様々な過程を対象としており、それぞれに不確実性が内在している。現状の気象化学モデルで UHR に対する大気汚染物質の影響を推定するためには、各過程での検証を順に行う必要がある。

化学特性を考慮した ACI によって雲を生成するためには、現業の NHM で使用されていたものとは異なる雲微物理スキームを使用する必要がある。そこで、雲微物理スキームの変更に伴う、気象モデルの結果 (雲構造) への影響の確認を行った。また、一般に化学輸送モデルの不確実性は気象モデルよりも大きい。そこで NHM-Chem による化学場の再現性についての検証も行った。その上で最後に、NHM-Chem を用いた UHR の感度実験を実施した。

2.1. 雲微物理スキームの検証

雲微物理スキームの検証には都市スキームを搭載した気象庁非静力学モデル NHM-SPUC を使用した。計算対象領域は図 2(a) に示す通り、関東平

野を覆う領域とした。水平解像度は 500 m とし、鉛直 50 層（最上層 21801 m）とした。初期値・境界値には気象庁メソ客観解析値（MANAL）を使用した。十分に水平高解像のため、積雲対流パラメタリゼーションは使用していない。タイムステップは 2.5 秒とし、積分時間は UHR 事例発生日の 0 時(JST)から 24 時間とした。雲微物理過程には、ACI を考慮するために使用する 6 カテゴリ完全 2 モーメントバルク法（L2M）と現業で使用されていた 6 カテゴリ（氷相 2 モーメント・液相 1 モーメント）バルク法（L1M）、および 6 カテゴリ 1 モーメントバルク法（1M）の 3 つを用いて、それぞれの結果の比較を行った。なお、6 カテゴリは水蒸気、雲水、雨水、氷晶、雪、霰のことであり、1 モーメントバルク法では混合比のみを、2 モーメントバルク法では数濃度も予報変数としている。L1M では雲水と雨水を混合比のみ予報変数（Liquid single moment）としているが、L2M ではこれらの数濃度も予報変数（Liquid double moment）としている。ACI の効果は雲水数濃度および氷晶数濃度に反映されるため、大気汚染物質が CCN/INP として UHR に及ぼす影響を調査するためには、L2M の使用が不可欠である。その他の各種設定については、本研究と同様に夏季東京における強雨に対して NHM-SPUC を用いた計算を行っている先行研究（Seino et al. 2018）に倣っている。

対象事例は、2016 年から 2020 年の夏季東京において先行研究（Uchiyama et al. 2020）が UHR と判断している 10 事例を採用した。

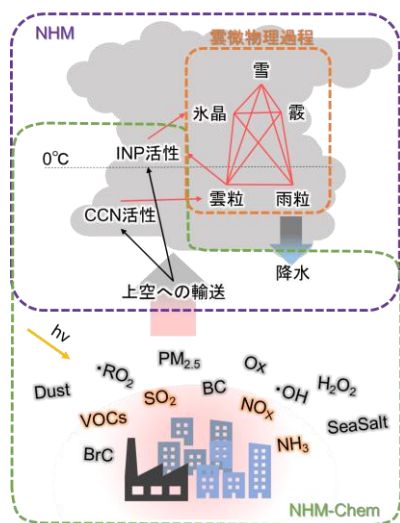


図 1：本報告が対象とする雲微物理過程と大気汚染物質の関係の概要図

2.2. 気象化学モデルの再現性の検証

気象化学モデルには、気象庁気象化学モデル NHM-Chem (KAJINO et al. 2019; Kajino et al. 2021) の online feedback version を使用した。気象化学モデルには、NHM-Chem の他に WRF-Chem や WRF-CMAQ 等があり、UHR に対する大気汚染物質の影響を調査している先行研究（Zhong et al. 2015; Wang et al. 2016）では WRF-Chem が採用されているが、NHM-Chem はエアロゾル微物理を 5 カテゴリで解く点に優位性がある。UHR は海塩粒子や Giant-CCN に代表されるような鉍物粒子の影響も受けている可能性が指摘されている（Uchiyama et al. 2020）。そのため、粗大粒子を含海塩粒子と非含海塩粒子（鉍物粒子）に区別して CCN/INP 活性を考慮出来る online_NHM-Chem を採用することが、夏季東京の UHR を対象とする本研究においては適している。

計算対象領域は図 2(b)に示す通りであり、第 1 ドメイン(D1)を東アジア領域、第 2 ドメイン(D2)を中部・関東領域、第 3 ドメイン(D3)を関東領域とした。東アジア領域から計算を開始することで、越境大気汚染の影響を考慮した。水平解像度は 3 km とし、鉛直 40 層（最上層 13815 m）とした。気象場の初期値・境界値については、D1 で気象庁 55 年長期再解析 JRA-55 を、D2 および D3 では MANAL を使用した。化学場については、初期値をそれぞれのエミッションインベントリから作成し、境界値は各親ドメインの計算結果をネスティングして使用した。

エミッションインベントリについては、人為起源として REASv3.2.1 (Kurokawa and Ohara 2020) と EAGrid (Fukui et al. 2014) を、バイオマス燃焼起源として GFED4 (Giglio et al. 2013) を、植物起源として MEGAN2.1 (Guenther et al. 2006) を使用した。その他、火山起源 (Kajino et al. 2018; Andres and Kasgnoc 1998) や海塩粒子 (Clarke et al. 2006)、鉍物ダスト (Han et al. 2004) についても考慮した。

対象事例は 2018 年 8 月の 1 か月間とした。この期間は、先の UHR10 事例の内 2 事例を含んでいる。積分時間は化学場の助走期間を 5 日間とし、2018 年 7 月 26 日 12:00 UTC から 2018 年 9 月 1 日 00:00 UTC、タイムステップは D1 から順に 120 秒、40 秒、10 秒とした。

また、エアロゾルの化学特性の考慮が降水場に及ぼす影響を調査するために、エアロゾル-放射相互作用（Aerosol Radiation Interaction: ARI）、CCN

による ACI, INP による ACI フィードバックモジュールの ON/OFF 実験も行った. 本解析は D3 の結果で行った. ACI は雲微物理過程にのみ考慮されており, 積雲対流パラメタリゼーションには考慮されていない. そのため, D3 には積雲対流パラメタリゼーションを使用していない.

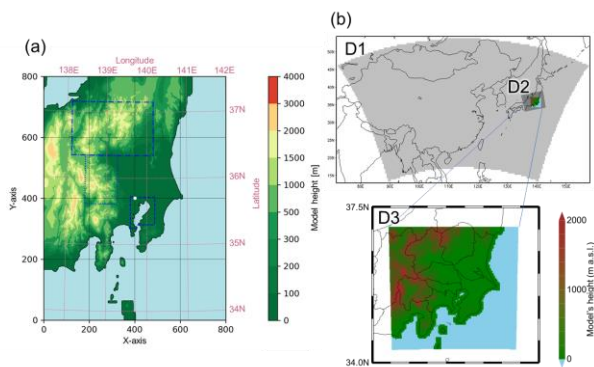


図 2: 本研究における計算領域. (a)は NHM で用いた計算領域を, (b)は NHM-Chem で用いた計算領域を示す.

3. 結果

3.1. L2M の雲微物理・降水特性

図 3 に東京 23 区域上空における各水物質の混合比の時空間分布を, 代表して 5 事例の結果について示す. L1M に比較して L2M では上空 2~6 km 付近の雲水混合比 Q_c や雨水混合比 Q_r が増加しており, 上空により多くの水分を保持していることを確認した. この現象をもたらした原因は, 図示していないが, L2M の雲水および雨水の平均体積直径 D_c, D_r が L1M より小さくなっていることから, 雲水および雨水の重力落下が弱化したことにあると考えられる.

またこの結果は図 4 に示すように地上降水の強度分布に影響した. 図 4 は 2018 年 8 月 13 日の UHR 事例について, 東京 23 区域の計算格子毎の地上降水の 6 時間降水量を解析雨量 (RAP) と 1M, L1M, L2M で比較したものである. ただし, RAP と NHM-SPUC の格子は異なるため, 図 4 については全て RAP の格子で換算した結果を示した. 1M や L1M では 100 mm/6hr を超える強い降水域が現れており, UHR 事例の再現がおよそ出来ている. 一方で, L2M では最大でも 65.88 mm/6hr であり, 強雨が弱化した. しかし, 25% タイル値に注目すると, L2M は最も高くなっている. これは, 非降水域もしくは 0.5 mm/hr を超えない降水域において L2M では弱雨が生じていることを示す. 以上の結

果から, L2M を使用することで, 強雨の弱化和弱雨域の拡大が生じること示された. ACI を考慮するためには L2M の使用が不可欠であり, L2M の改善が求められる.

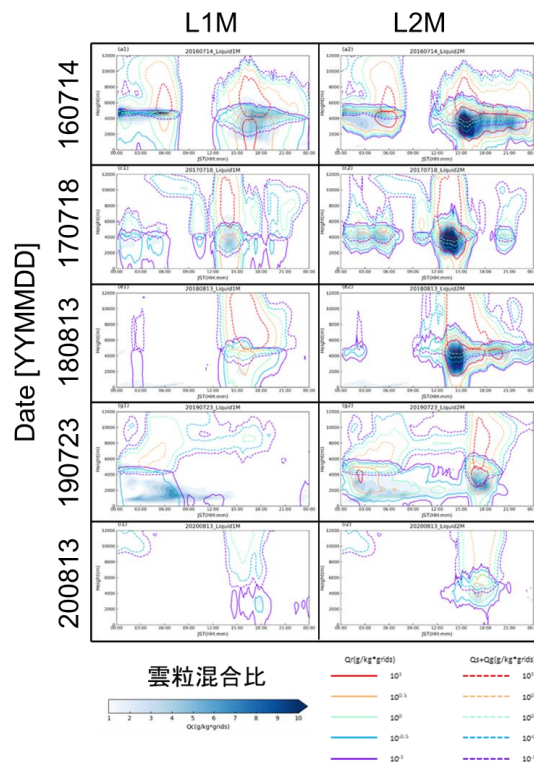


図 3: L1M(左)と L2M(右)における各水物質混合比の鉛直分布の経時変化の比較. 横軸は時刻, 縦軸は高度を示す. シェードは雲水混合比 Q_c , 実線は雨水混合比 Q_r , 点線は雪と霰の総混合比 Q_s+Q_g を示す.

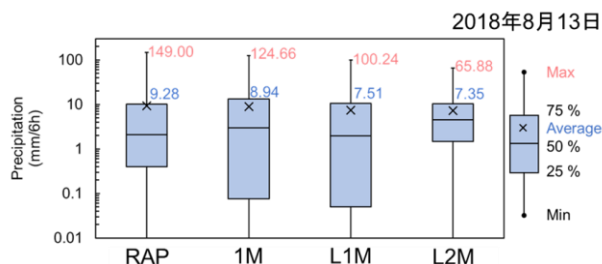


図 4: 2018 年 8 月 13 日 UHR の東京 23 区域の 6 時間地上降水強度の箱ひげ図の比較. 左から順に解析雨量 RAP, 1M, L1M, L2M で, × は平均値を示す.

L2M でこの問題が生じる原因としては, 雲水から雨水への自動変換過程および雲水の衝突成長過程の表現にあると考える. 図 5(a)には, NHM の L2M における雲水の自動変換 (auto-conversion)

による総雨水生成量について、関東平野部上空を対象に L1M と L2M で比較した結果を示した。ここでは代表して 3 つの UHR 事例の結果を示すが、何れの事例においても、L2M では L1M の 1~2 割ほどの雨水しか生成していないことが明らかとなった。図 3 および図 4 の結果を踏まえると、雲水が上空に多く存在しているが、これらが雨水に変換されずに地上降水の弱引き起こしていることと推察できる。

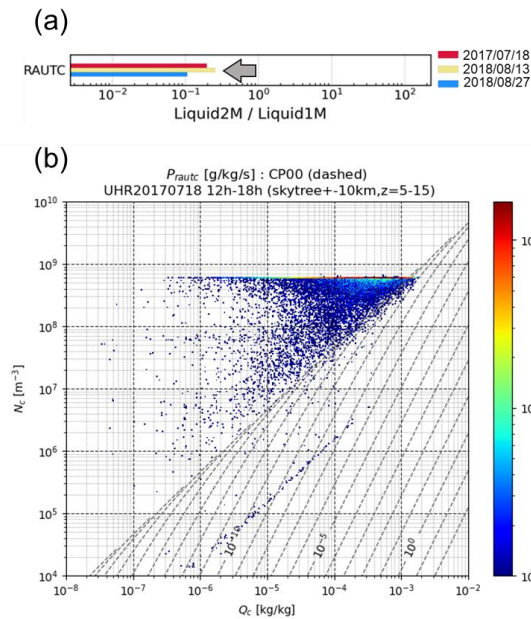


図 5 : (a) L2M と L1M における雲水から雨水への自動変換過程 (RAUTC) による総雨水生成量の比較. (b) L2M 降水期間の東京スカイツリー周辺 10 km 圏内上空における Q_c - N_c 頻度分布図. カラースケールが頻度, 点線が CP00 の式で等雨水生成量を Q_c - N_c 空間に示したもの.

また、図 5(b)には降水期間 6 時間における東京スカイツリーから 10km 圏内上空の雲水混合比 Q_c と雲水数濃度 N_c の分布と、L2M で採用されている auto-conversion の式 (Cohard and Pinty 2000a,b) を Q_c - N_c 平面に示した。その結果、 N_c に $6.0 \times 10^8 \text{ m}^{-3}$ の上限に多くの雲粒が分布しており、それらは CP00 の閾値未満であることがわかる。 N_c の上限値はソースコード内において過剰に N_c を生成しないようにするために設けられているが、現状の Q_c - N_c 分布においてはこの上限値を撤廃もしくはより高数濃度に設けたとしても、CP00 の閾値からさらに遠ざかると考えられる。以上のことから、

L2M の改善のためには、雲粒同士の衝突併合による成長や auto-conversion の式を見直す必要があると考える。例えば、CP00 では乱流衝突による雲粒の成長過程と重力衝突カーネルに含めたパラメータ化されているが、大気汚染時は雲粒の成長に対する乱流衝突過程の寄与が重要であることが複数の先行研究で指摘されている。雲粒の乱流衝突過程を乱流に関する予報変数を用いて解くことで、L2M の雲粒成長および地上降水の再現が改善する可能性がある。

3.2. NHM-Chem による化学場の再現の確認

図 6 に NHM-Chem の化学場 (NO , NO_2 , O_3 , SO_2 , $\text{PM}_{2.5}$) の各グリッドにおける経時変化についてのバイアスの空間分布を示した。観測値には国立環境研究所の環境数値データベースを使用した。2018 年 8 月の観測値 (1 時間値) が 70% 以上のデータ取得率の場合に、NHM-Chem のグリッドに合わせて観測値からスーパーオブザベーションを作成し、観測値と計算値の 1 時間値の比較を行った。 NO_x は都市部において過大評価の傾向が顕著になっており、 NO と NO_2 でトレンドの再現が良好な地点が異なっていることに注意する必要がある。 NO と NO_2 のバランスが観測と一致していないことから、 NO_x サイクルおよびその周辺反応に課題があると考えられる。 SO_2 については東京湾沿岸での過大評価が顕著になっているものの、トレンドの再現は良好であった。 O_3 については郊外において過大評価の傾向にあるが、トレンドの再現は良好であった。 $\text{PM}_{2.5}$ については都市部において過大評価の傾向が顕著になっていた。UHR の生成機構の検証を行う上で、 $\text{PM}_{2.5}$ を過大評価しているこの結果は非常に重大な課題である。

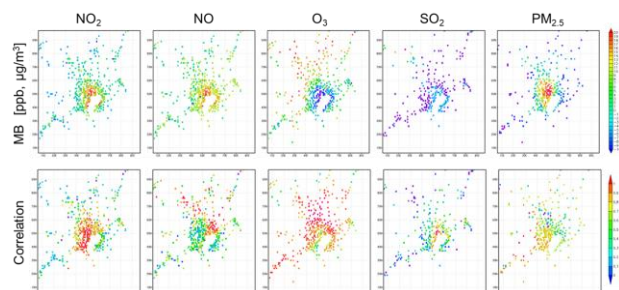


図 6 : 2018 年 8 月の各大気汚染物質濃度の 1 時間値における計算グリッド毎のモデル計算値と観測値の比較. 上段は Mean Bias, 下段は経時変化の相関係数を示す.

図7に先行研究での降水採集地点である早稲田大学西早稲田キャンパス51号館屋上(65 m a.s.l.)における観測値とモデル計算値のPM_{2.5}の日日変化と日内変化を示した。図7(a)に示す日内変化については、モデル計算値において観測値には確認できない100 µg/m³を超えるような高濃度スパイクが複数回確認された。また、図7(b)に示すように、この異常な高濃度は特に日中を中心として生じていることがわかる。尚、個々で用いている観測点はモデルにおいては、地上から2層目に相当するため、エアロゾルの拡散係数の問題とは異なる要因でモデル計算値が異常な高濃度になっていると考えられる。

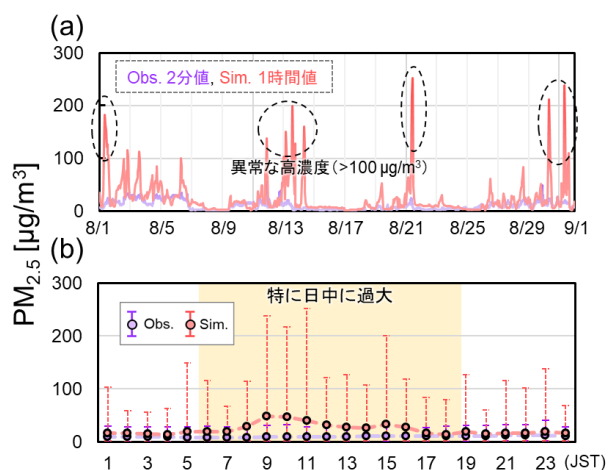


図7: 降水試料採集地点における(a)PM_{2.5}測定値(2分値, 紫実線)とモデル計算値(1時間値, 赤実線)の比較と(b)PM_{2.5}測定値(特別平均値, 紫)とモデル計算値(特別平均値, 赤)の比較。

PM_{2.5} 過大評価の原因を明らかにするために、NHM-Chem で考慮している成分を対象に降水試料採集地点におけるPM_{2.5}の組成割合(当量濃度比)を計算し、図8に示した。8/8, 8/15前後, 8/23前後にPM_{2.5}の減少とNa⁺とCl⁻の増加が確認できるが、これはいずれも台風の接近・通過に伴う変化である。PM_{2.5}濃度と組成の時間変化を確認すると、PM_{2.5}とNO₃⁻の変動が一致している様子がわかる。図7(a)における観測値とモデル計算値の差分を過剰なPM_{2.5}(ex_PM_{2.5})とし、図8に示すPM_{2.5}中の各組成との時間変化についての相関を確認したところ、NO₃⁻とPM_{2.5}とNH₄⁺とPM_{2.5}とがそれぞれex_PM_{2.5}と有意(p<0.05)な相関係数(0.96, 0.91)が示された。従って、ex_PM_{2.5}の主要因は

NH₄NO₃の過剰生成に起因していることが明らかとなった。

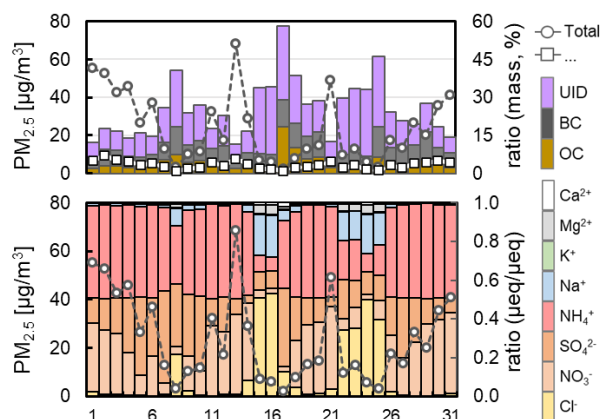


図8: 降水試料採集地点におけるPM_{2.5}の日平均成分割合の経時変化。上段が非無機成分および未同定成分, 下段が主要無機成分を示す。横軸は日別, 縦軸はPM_{2.5}濃度を表し, 組成割合は当量濃度で示している。

NH₄NO₃の過剰生成もしくは除去過程の過小な表現については、前駆ガスの乾性沈着速度を先行研究(Shimadera et al. 2014, 2018)に倣って5倍にし、含N前駆ガスの人為排出をエミッションインベントリの不確実性の範囲内で0.5倍にし、雲底下洗浄スキームの変更によって、最終的にPM_{2.5}の再現性を図9に示すように向上させることが出来た。郊外のO₃濃度が過剰になってしまったが、都市部においては観測値におよそ同じになっている。また、NOおよびNO₂の再現も改善し、本修正の目的であるPM_{2.5}については都市域での過剰なNH₄NO₃生成を抑制し、現実的なエアロゾル濃度場を表現することが出来ている。

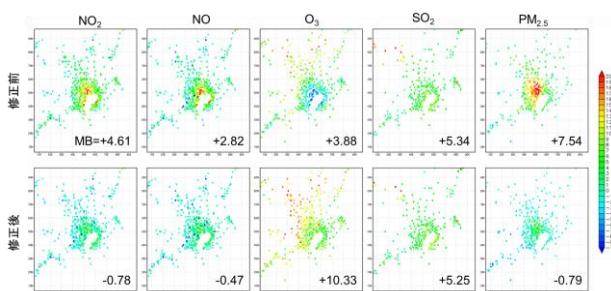


図9: NH₄+NO₃の過剰生成に対する修正実験の結果。作図方法は図6に同じ。上段が修正前, 下段が修正後, 数値はMean Biasを示す。

本研究では、以上の結果を踏まえて、この修正実験を基準実験 (CNTL) として各種感度実験を実施した。

3.3. 都市域のエアロゾルが UHR 事例に及ぼす影響の推定

先行研究 (Sugo et al. 2020) において東京における UHR 降水試料の採取・化学分析が行われた 2018 年 8 月を対象に、都市域のエアロゾルが UHR 事例の雲構造や降水特性、化学特性に及ぼす影響の推定を行った。

Online_NHM-Chem では、ARI や ACI_{CCN} , ACI_{INP} のスイッチを用いることで、ON/OFF 実験を行うことができる。ACI を OFF にした場合は、雲水生成や雲氷生成を NHM と同様に水蒸気過飽和度等から診断する。従って、ACI の ON/OFF の選択は、ACI を表現する際に化学特性を考慮するかしないか選ぶことに同じである。

図 10 には東京 23 区域上空 0-10 km における各水物質混合比に対する化学特性を考慮した $ACI_{CCN+INP}$ の寄与について示した。UHR 事例があった 8 月 27 日に注目すると、ACI で化学特性を考慮することで、5~9 km の雲水混合比が増大し、雲水がより高高度に輸送された。また、この影響は雪の生成よりも霰の生成に波及していることも図 10(d,e) から確認できる。2018 年 8 月 27 日の UHR 事例では、エアロゾル化学場を陽に考慮することで結果的に霰の成長を促進した。本事例では現実に降雹が確認されており、フェーズドアレイレーダーを用いた観測に基づく先行研究 (Adachi 2019) とも整合的である。

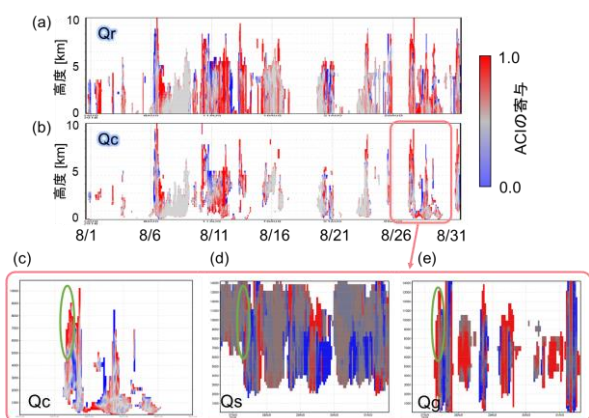


図 10 : 化学特性を考慮した ACI が東京 23 区域上空の各水物質混合比 (Qc, Qr, Qs, Qg) の鉛直分布に及ぼす影響

8 月 27 日の UHR 事例に対する ACI_{Total} , ACI_{CCN} , ACI_{INP} の影響について図 11 に示した。CCN をパラメタ化した場合は最大降水強度が-34%, 総降水量が-43%となり、INP の場合は-18%と-41%となった。また、CCN と INP の両方をパラメタ化した場合、つまり ARI のみ化学場を考慮した場合は最大降水強度が-18%, 総降水量が+10%であり、雲微物理過程の非線形性が現れた。また、何れのケースにおいても、ACI 過程において化学場を考慮することで最大降水強度が強化されることは確認できた。但し、この結果は図 3,4,5 に示すように、L2M の影響を含んでいるため、「現状の気象化学モデルにおいては」化学特性を考慮した ACI は降水強度を強化する、との結論に留めるべきである。

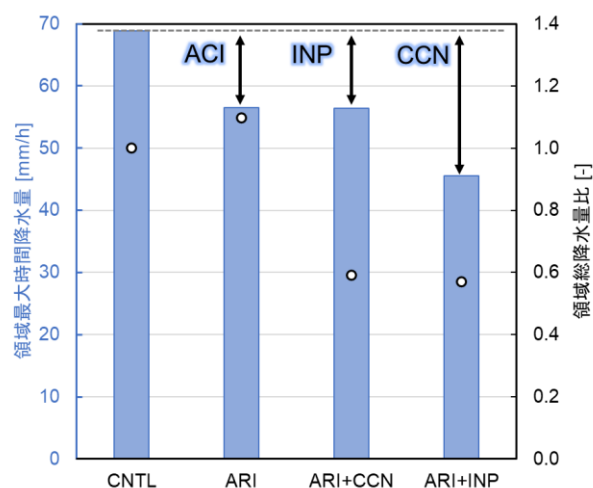


図 11 : 2018 年 8 月 27 日の UHR 事例における東京 23 区域の領域最大時間降水量 (左, bar) と領域総降水量比 (右, plot). 横軸の CNTL は ARI も ACI も化学特性を考慮, ARI は ARI で化学特性を考慮, ACI_{CCN} と ACI_{INP} をパラメタ化, ARI+CCN は ARI と ACI_{CCN} で化学特性を考慮, ACI_{INP} をパラメタ化, ARI+INP は ARI と ACI_{INP} で化学特性を考慮, ACI_{CCN} をパラメタ化したもの。

また、図 12 に示す通り、東京 23 区域の地上降水に占める関東の人為起源排出の寄与についても推定を行った。ここでは、ソース・レセプタ法を採用した。具体的には、関東域における人為起源排出を 20%削減し(本報告においては、修正 CNTL に対して 20%削減のため、オリジナルのエミッションに対しては 60%削減に相当し)、修正 CNTL 実験との差分を 5 倍量にすることでその寄与を算出する手法である。

モデル内の東京 23 区域において、UHR 事例 (30 mm/h 以上の降水強度) は 3 回発生し、台風性 (THR) も 3 回、その他の降水が 9 回生じた。先行研究 (Uchiyama et al. 2020) が実試料データから報告するように、モデル内においても UHR 事例が最も高い湿性沈着フラックスを示し、通常降雨の 2.54 倍に及んだ。しかし、総湿性沈着量については、通常降雨では実試料と同程度であったものの、UHR 事例では 1 桁程度の過小評価となっていた。また、UHR の湿性沈着量に占める各事例の人為排出起源の寄与は NH_4^+ で 45~80%、 Cl^- で 36~68%、 NO_3^- で 38~83%、 SO_4^{2-} で 36~83%であった。但し、現在は rainout と washout を区別できていないため、これらの寄与は ACI を介した結果かどうか判断できない。今後はこれらの区別をした結果を算出することが求められる。

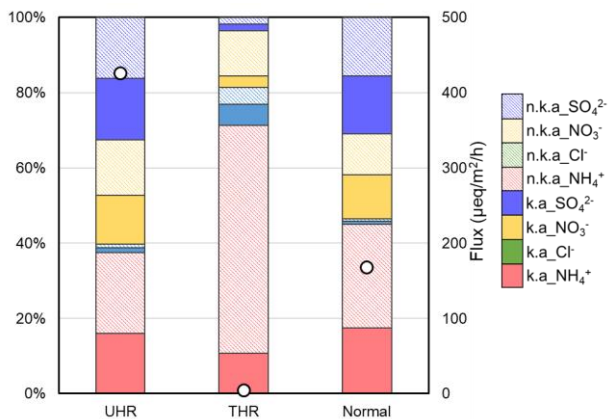


図 12 : 東京 23 区域の降水組成に対する関東人為起源の寄与。k.a.は関東人為起源を、n.k.a.は関東人為起源以外の寄与を表す。

4. まとめ

本報告では、UHR に対して大気汚染物質が雲微物理過程を介して及ぼす影響について定量的な推定を行った。結論としては、現在の気象化学モデルには、気象モデルにも化学輸送モデルにも解決すべき課題があり、気象化学モデルによる定量的な推定はそれらの不確実性を含むことに注意が必要である。

気象モデルにおける雲微物理スキームについては、ACI を考慮するために L2M を使用すると、雲水や雨水の粒径を過小評価し、数濃度を過大評価する傾向にあり、UHR 事例の最大降水強度の過小評価の原因になっている。改善すべきは雲水から雨水への自動変換過程にあると考えられ、乱流衝

突による雲水の成長過程等についても今後注目する必要がある。

エアロゾル化学場の再現については、 $\text{PM}_{2.5}$ をはじめとする人為起源大気汚染物質が都市部において特に過大となったが、幾らかのアドホックな修正によって、現実的な $\text{PM}_{2.5}$ 濃度を表現することはできた。但し、根本的な解決には至っていないため、 $\text{ex_PM}_{2.5}$ の主要因である NH_4NO_3 の過剰生成の原因等についても調査する必要がある。

以上の課題を含めて、Online_NHM-Chem を用いた都市域の大気汚染物質が UHR に及ぼす影響の推定を行った。その結果、化学特性を考慮した ACI では、雲水がより上空に輸送され、霰の成長を促した。また、化学特性の考慮によって、領域最大 1 時間降水量は CCN で 51%、INP で 22%、ACI 正味で 22%強化された。これら UHR の湿性沈着量に占めるローカルな人為起源の寄与は、40~80%程度と推定された。加えて、酸性物質の湿性沈着量は UHR 事例において通常降雨の 2.54 倍となったが、総量としては 1 桁程度の過小評価であった。

謝 辞

本研究は、筑波大学と気象庁気象研究所の連携大学院制度で遂行された。本研究は JSPS 特別研究員奨励費 JP 22J10509 により進められた。

参 考 文 献

- 三上岳彦, 大和広明, and 安藤晴夫, 2005: 東京都内における夏期の局地的大雨に関する研究. 東京都環境科学研究所年報, **2005**, 33–42.
- Adachi, T., 2019: Severe Weather Observation using Phased Array Radar. *Wind Eng.*, **44**, 371–380.
- Albrecht, B. a, 1989: Fractional Cloudiness. *Science* (80-.), **245**, 1227–1230.
- Andres, R. J., and A. D. Kasgnoc, 1998: A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **103**, 25251–25261, <https://doi.org/10.1029/98JD02091>.
- Clarke, A. D., S. R. Owens, and J. Zhou, 2006: An ultrafine sea-salt flux from breaking waves: Implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **111**, 1–14, <https://doi.org/10.1029/2005JD006565>.
- Cohard, B. J., and J. Pinty, 2000a: A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. II:

- 2D experiments with a non-hydrostatic model. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **126**, 1843–1859.
- Cohard, J.-M., and J.-P. Pinty, 2000b: A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. I: Description and tests. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **126**, 1815–1842, <https://doi.org/10.1080/136048102762028398>.
- Fröhlich-Nowoisky, J., and Coauthors, 2016: Bioaerosols in the Earth system: Climate, health, and ecosystem interactions. *Atmos. Res.*, **182**, 346–376, <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2016.07.018>.
- Fujibe, F., H. Togawa, and M. Sakata, 2009: Long-term Change and Spatial Anomaly of Warm Season Afternoon. *Sola*, **5**, 17–20.
- Fukui, T., K. Kokuryo, T. Baba, and A. Kannari, 2014: Updating EAGrid2000-Japan emissions inventory based on the recent emission trends. *J. Japan Soc. Atmos. Environ. / Taiki Kankyo Gakkaishi*, **49**, 117–125, <https://doi.org/10.11298/taiki.49.117>.
- Giglio, L., J. T. Randerson, and G. R. Van Der Werf, 2013: Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (GFED4). *J. Geophys. Res. Biogeosciences*, **118**, 317–328, <https://doi.org/10.1002/jgrg.20042>.
- Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P. I. Palmer, and C. Geron, 2006: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3181–3210, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006>.
- Han, Z., H. Ueda, K. Matsuda, R. Zhang, K. Arao, Y. Kanai, and H. Hasome, 2004: Model study on particle size segregation and deposition during Asian dust events in March 2002. *J. Geophys. Res. D Atmos.*, **109**, 1–25, <https://doi.org/10.1029/2004JD004920>.
- Hoose, C., and O. Möhler, 2012: *Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: A review of results from laboratory experiments*. 9817–9854 pp.
- Jaeglé, L., P. K. Quinn, T. S. Bates, B. Alexander, and J. T. Lin, 2011: Global distribution of sea salt aerosols: New constraints from in situ and remote sensing observations. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 3137–3157, <https://doi.org/10.5194/acp-11-3137-2011>.
- Jahn, L. G., W. D. Fahy, D. B. Williams, and R. C. Sullivan, 2019: Role of Feldspar and Pyroxene Minerals in the Ice Nucleating Ability of Three Volcanic Ashes. *ACS Earth Sp. Chem.*, **3**, 626–636, <https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.9b00004>.
- Kadowaki, S., 1991: Sea-salt Particles in the Atmosphere. *Earozoru Kenkyu*, **6**, 113–120.
- Kajino, M., and Coauthors, 2018: NHM-Chem, the Japan Meteorological Agency's regional meteorology – chemistry model (v1.0): model description and aerosol representations. *Geosci. Model Dev.*, <https://doi.org/https://doi.org/10.5194/gmd-2018-128>.
- Kajino, M., and Coauthors, 2021: Comparison of three aerosol representations of NHM-Chem (v1.0) for the simulations of air quality and climate-relevant variables. *Geosci. Model Dev.*, **14**, 2235–2264, <https://doi.org/10.5194/gmd-14-2235-2021>.
- Kajino, M., and Coauthors, 2019: NHM-Chem, the Japan meteorological agency's regional meteorology – chemistry model: Model evaluations toward the consistent predictions of the chemical, physical, and optical properties of aerosols. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **97**, 337–374, <https://doi.org/10.2151/JMSJ.2019-020>.
- Kanji, Z. A., L. A. Ladino, H. Wex, Y. Boose, M. Burkert-Kohn, D. J. Cziczo, and M. Krämer, 2017: Overview of Ice Nucleating Particles. *Meteorol. Monogr.*, **58**, 1.1-1.33, <https://doi.org/10.1175/amsmonographs-d-16-0006.1>.
- Kanji, Z., A. Welti, J. C. Corbin, and A. A. Mensah, 2020: Black Carbon Particles Do Not Matter for Immersion Mode Ice Nucleation. *Geophys. Res. Lett.*, **47**, 1–9, <https://doi.org/10.1029/2019GL086764>.
- Kawabata, T., H. Seko, K. Saito, T. Kuroda, K. Tamiya, T. Tsuyuki, Y. Honda, and Y. Wakazuki, 2007: An assimilation and forecasting experiment of the Nerima heavy rainfall with a cloud-resolving nonhydrostatic 4-dimensional variational data assimilation system. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **85**, 255–276, <https://doi.org/10.2151/jmsj.85.255>.
- Kurokawa, J., and T. Ohara, 2020: Long-term historical

- trends in air pollutant emissions in Asia: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3. *Atmos. Chem. Phys.*, **20**, 12761–12793, <https://doi.org/10.5194/acp-20-12761-2020>.
- Ma, Q., and H. He, 2012: Synergistic effect in the humidifying process of atmospheric relevant calcium nitrate, calcite and oxalic acid mixtures. *Atmos. Environ.*, **50**, 97–102, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.12.057>.
- Maters, E. C., D. B. Dingwell, C. Cimorelli, D. Müller, T. F. Whale, and B. J. Murray, 2019: The importance of crystalline phases in ice nucleation by volcanic ash. *Atmos. Chem. Phys.*, **19**, 5451–5465, <https://doi.org/10.5194/acp-19-5451-2019>.
- Nakayoshi, M., K. Okubo, A. C. G. V Arquez, M. Kanda, and F. Chusei, 2013: Stagnation Region of Sea Breeze Front. 1741–1746.
- Rosenfeld, D., U. Lohmann, G. B. Raga, C. D. O’Dowd, M. Kulmala, S. Fuzzi, A. Reissell, and M. O. Andreae, 2008: Flood or drought: How do aerosols affect precipitation? *Science (80-.)*, **321**, 1309–1313, <https://doi.org/10.1126/science.1160606>.
- Šantl-Temkiv, T., and Coauthors, 2019: Biogenic Sources of Ice Nucleating Particles at the High Arctic Site Villum Research Station. *Environ. Sci. Technol.*, **53**, 10580–10590, <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b00991>.
- Seino, N., T. Aoyagi, and H. Tsuguti, 2018: Numerical simulation of urban impact on precipitation in Tokyo: How does urban temperature rise affect precipitation? *Urban Clim.*, **23**, 8–35, <https://doi.org/10.1016/j.uclim.2016.11.007>.
- Shimadera, H., H. Hayami, S. Chatani, Y. Morino, Y. Mori, T. Morikawa, K. Yamaji, and T. Ohara, 2014: Sensitivity analyses of factors influencing CMAQ performance for fine particulate nitrate. *J. Air Waste Manag. Assoc.*, **64**, 374–387, <https://doi.org/10.1080/10962247.2013.778919>.
- Shimadera, H., and Coauthors, 2018: Urban air quality model inter-comparison study (UMICS) for improvement of PM_{2.5} simulation in greater Tokyo Area of Japan. *Asian J. Atmos. Environ.*, **12**, 139–152, <https://doi.org/10.5572/ajae.2018.12.2.139>.
- Shiraiwa, M., M. Ammann, T. Koop, and U. Pöschl, 2011: Gas uptake and chemical aging of semisolid organic aerosol particles. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, **108**, 11003–11008, <https://doi.org/10.1073/pnas.1103045108>.
- Sofiev, M., J. Soares, M. Prank, G. De Leeuw, and J. Kukkonen, 2011: A regional-to-global model of emission and transport of sea salt particles in the atmosphere. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **116**, 1–25, <https://doi.org/10.1029/2010JD014713>.
- Sugo, T., H. Fujiwara, H. Okochi, R. Uchiyama, T. Nakano, M. Kamogawa, and T. Arai, 2020: Impact Assessment of Air Pollutants on the Formation of Summer Urban Heavy Rainfall: Utilization of Newly-developed Sequential Heavy Rain Collection System and Geographic Information System. *J. Japan Soc. Atmos. Environ. / Taiki Kankyo Gakkaishi*, **55**, 101–115, <https://doi.org/10.11298/taiki.55.101>.
- Uchiyama, R., H. Okochi, N. Katsumi, and H. Ogata, 2017a: The impact of air pollutants on rainwater chemistry during “urban-induced heavy rainfall” in downtown Tokyo, Japan. *J. Geophys. Res.*, **122**, 6502–6519, <https://doi.org/10.1002/2017JD026803>.
- Uchiyama, R., H. Okochi, H. Ogata, N. Katsumi, D. Asai, and T. Nakano, 2017b: Geochemical and stable isotope characteristics of urban heavy rain in the downtown of Tokyo, Japan. *Atmos. Res.*, **194**, 109–118, <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2017.04.029>.
- Uchiyama, R., H. Okochi, T. Nakano, H. Ogata, N. Katsumi, C. Kaneko, J. Kamiya, and D. Asai, 2020: Investigation of the Formation Mechanism of Urban-induced Heavy Rainfall Using Chemical and Stable Isotope Analysis. *BUNSEKI KAGAKU*, **69**, 45–68, <https://doi.org/10.2116/bunsekikagaku.69.45>.
- Wang, J., J. Feng, Q. Wu, and Z. Yan, 2016: Impact of anthropogenic aerosols on summer precipitation in the Beijing–Tianjin–Hebei urban agglomeration in China: Regional climate modeling using WRF-Chem. *Adv. Atmos. Sci.*, **33**, 753–766, <https://doi.org/10.1007/s00376-015-5103-x>.
- Yamashita, K., M. Murakami, A. Hashimoto, and T. Tajiri, 2011: CCN ability of Asian mineral dust particles and their effects on cloud droplet

formation. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **89**, 581–587,
<https://doi.org/10.2151/jmsj.2011-512>.

Yokoyama, H., 2016: Actual condition of localized
torrential rainfall and its adaptation in Tokyo.
167–172.

Zhao, B., and Coauthors, 2019: Ice nucleation by
aerosols from anthropogenic pollution. *Nat.
Geosci.*, **12**, 602–607,
<https://doi.org/10.1038/s41561-019-0389-4>.

Zhong, S., Y. Qian, C. Zhao, R. Leung, and X. Yang,
2015: Journal of geophysical research. *Nature*, **120**,
10903–10914, <https://doi.org/10.1038/175238c0>.