第25回大気化学討論会 講演要旨集

The 25th Symposium on Atmospheric Chemistry

Book of Abstracts

November 11-13, 2020

共催:日本大気化学会・名古屋大学宇宙地球環境研究所・ 千葉大学環境リモートセンシング研究センター 後援:国立大学法人千葉大学

Co-organized by

The Japan Society of Atmospheric Chemistry Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University Supported by Chiba University

第25回大気化学討論会

会 期:2020年11月11日(水)-13日(金)

- 会場: Zoom と Slack の併用によるオンライン形式
 Zoom (口頭発表・ポスター発表概要紹介)・Slack (ポスター発表)
- **懇親会**:Zoom と Slack の併用によるオンライン形式

大会実行委員:

入江仁士, 齋藤尚子, 喜多夏子, 熊川靖代(千葉大学環境リモートセンシング研究センター)

プログラム委員:

内田里沙(自動車研究所,主担当),中山智喜(長崎大学),豊田栄(東京工業大学),齋藤 尚子(千葉大学)

口頭発表

口頭発表1件あたりの講演時間は以下のとおりです。なお発表は Zoom による双方向オン ライン形式となります。

ショート:15分(発表10分+質疑応答5分) ロング:25分(発表18分+質疑応答7分)

ポスター発表

Slack 上にポスターを掲示した上で,チャットと Slack コールでインタラクティブな発表・ 議論ができます。1日目のポスターコアタイムの前に1件あたり1分程度の概要紹介の時 間を設けています。ポスターは会期中,常時掲示できます。



講演プログラム(口頭発表)

	1日目:11月11日 (水)					
9:00	9:15	開会挨拶・LOCアナウンス		Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)		
9:15	10:20		長寿命成分	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)		
9:15	9:40	L1-01	Impact of atmospheric radiocarbon and stable isotope measurements on understanding the global CH ₄ budget over 1750–2015 Ryo Fujita ¹ and Heather Graven ¹ (¹ Department of Physics, Imperial College London, South Kensington Campus, London, United Kingdom)			
9:40	10:05	L1-02	-1-02 地上観測データによる国内メタンインベントリ検証可能性 速水洋(早稲田大学)			
10:05	10:20	S1-01	 大気中アルゴン・窒素比を用いた大気ポテンシャル酸素の変動要因の評価 - 季節変動と緯度分布 - *石戸谷重之¹,遠嶋康徳²,石島健太郎³,菅原敏⁴,丹羽洋介²,後藤大輔⁵,村山 昌平¹,坪井一寛³,青木伸行¹,中村貴⁶(¹産業技術総合研究所,²国立環境研 究所,³気象研究所,⁴宮城教育大学,⁵国立極地研究所,⁶気象庁) 			
10:20	10:40	休憩				
10:40	11:35		長寿命成分	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)		
10:40	10:55	S1-02	Study the methane interhemispheric transport pathway using observations by the GOSAT/TANSO-FTS thermal infrared sensor *Dmitry A. Belikov ¹ , Naoko Saitoh ¹ , and Prabir K. Patra ^{2,1} (¹ Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, ² Research Institute for Global Change (RIGC), Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC))			
10:55	11:20	L1-03	O3GOSAT及びGOSAT-2短波長赤外プロダクト検証の進捗 *森野勇 ¹ ,堤之智 ¹ ,内野修 ¹ ,大山博史 ¹ ,齊藤龍 ² ,Tran Thi Ngoc Trieu ¹ , Frey Matthias Max ¹ ,酒井哲 ³ ,永井智広 ³ ,奥村浩 ⁴ ,新井耕平 ⁴ , Ben Liley ⁵ ,山崎明 宏 ³ ,吉田幸生 ¹ ,松永恒雄 ¹ ,亀井秋秀 ¹ ,齊藤誠 ¹ ,野田響 ¹ ,TCCON partners ⁶ (¹ 国立環境研究所, ² 国際航業, ³ 気象研究所, ⁴ 佐賀大学, ⁵ NIWA Lauder, ⁶ https://tccon-wiki.caltech.edu)			

11:20	11:35	グローバル・ストックテイクに向けた人為起源CO ₂ 排出量推定に貢献する S1-03 衛星観測計画と大気輸送モデル開発の展望 *山下陽介 ¹ ,谷本浩志 ¹ ,小田知宏 ² (¹ 国立環境研究所, ² USRA)			
11:35	12:45		屋位	大憩	
12:45	13:20		ポスター概要紹介 Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)		
13:20	14:45		ポスターコアタイム①	Slack(チャット形式)+Slackコール(15名 以下のグループによるビデオ通話形式)	
14:45	14:55		休	憩	
14:55	15:50		学生セッション	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
14:55	15:10	S1-04	S1-04 福岡都市圏での2地点同時MAX-DOAS観測によるTROPOMI対流圏NO₂ データの検証 *植木洸亘 ¹ , 高島久洋 ² , Martina M. Friedrich ³ (¹ 福岡大院理, ² 福岡大理, ³ ベ ルギー宇宙航空研究所)		
15:10	15:35	L1-04	L1-04 光吸収のエアロゾル光学的厚さに及ぼすブラックカーボンとブラウンカー ボンの寄与率の定量的評価:千葉でのスカイラジオメーターによる長期観 測より *山口航大 ¹ ,入江仁士 ¹ , Alessandro Damiani ¹ (¹ 千葉大学)		
15:35	15:50	S1-05	S1-05 つくばにおけるCO高度分布観測による発生源の推定 *鈴木大将 ¹ , 中島英彰 ^{2,1} , 村田功 ¹ , 森野勇 ² (¹ 東北大学大学院環境科学研究 科, ² 国立環境研究所)		
15:50	16:05		休	憩	
16:05	17:00		学生セッション	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
16:05	16:20	S1-06 超伝導サブミリ波リム放射サウンダ(SMILES)の広範囲観測による塩化水素の鉛直分布プロファイルの妥当性検証 *奈良誠大 ^{1,2} ,佐藤知紘 ¹ ,山田崇貴 ² ,久野成夫 ² ,笠井康子 ^{1,2} (¹ 情報通信研究機構, ² 筑波大学)		ダ(SMILES)の広範囲観測 による塩化水 性検証 ² , 久野成夫 ² , 笠井康子 ^{1,2} (¹ 情報通信研究	
16:20	16:35	S1-07 CHASER(MIROC-ESM)における雲の対流圏光化学場への影響 *松田涼樹 ¹ , 須藤健悟 ^{1,2} (¹ 名古屋大学大学院環境学研究科, ² 海洋研究開発機構)			

16:35	16:50	L1-05* ショート に変更	対流圏一酸化窒素の窒素及び三酸 *平野一哉 ¹ , 角皆潤 ¹ , 中川書子 ¹ , 伊 科)	素同位体組成の定量 「藤昌稚 ¹ (¹ 名古屋大学大学院環境学研究
16:50	16:55	1	3目終了・LOCアナウンス	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)

	2日目:11月12日(木)				
9:00	9:10		LOCアナウンス	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
9:10	10:05		エアロゾル	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
9:10	9:35	L2-06	航空機排ガス中の不揮発性ナノ粒子の粒径分布 *竹川暢之 ¹ ,村島淑子 ² ,伏見暁洋 ³ ,三澤健太郎 ¹ ,藤谷雄二 ³ ,齊藤勝美 ^{3,4} ,桜 井博 ² (¹ 東京都立大学, ² 産業技術総合研究所, ³ 国立環境研究所, ⁴ イサラ研 究所)		
9:35	9:50	S2-08	新型コロナ流行・経済活動低下時の福江島での大気ブラックカーボン濃度 応答:中国での家庭起源排出割合の評価 *金谷有剛 ¹ ,山地一代 ^{2,1} ,宮川拓真 ¹ ,竹谷文一 ¹ ,Yongjoo Choi ¹ ,朱春茂 ¹ ,近 藤豊 ³ ,宮崎和幸 ^{4,1} ,Zbigniew Klimont ⁵ ,山田大地 ⁶ ,成田大樹 ⁶ ,池田恒平 ⁷ ,谷 本浩志 ⁷ (¹ 海洋研究開発機構, ² 神戸大学, ³ 国立極地研究所, ⁴ NASA JPL, ⁵ 国 際応用システム分析研究所(IIASA), ⁶ 東京大学, ⁷ 国立環境研究所)		
9:50	10:05	S2-09	小型で安価な大気計測装置の開発とインド北部の稲藁燃焼が現地やデリー の大気質・健康へ及ぼす影響解明の計画 *松見豊 ¹ ,林田佐智子 ^{2,3} ,中山智喜 ⁴ ,荒木晶 ² ,上田佳代 ⁵ ,Prabir Patra ⁶ ,須藤 重人 ⁷ 及び総合地球環境学研究所Aakashプロジェクトの日本・インドの チームメンバー(¹ 名古屋大, ² 総合地球環境研, ³ 奈良女子大, ⁴ 長崎大, ⁵ 京都 大, ⁶ JAMSTEC, ⁷ 農研機構)		
10:05	10:20	休憩		憩	
10:20	11:05		エアロゾル	 Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
10:20	10:35	S2-10	氷晶核となるエアロゾル粒子の探 *木名瀨健 ¹ , 足立光司 ¹ (¹ 気象研究	索 (所)	

10:35	10:50	S2-11 都市大気中非吸湿性スス粒子の表面状態: 臨界過飽和度およびTEM観察 ドよる評価 *上田紗也子 ¹ , 森樹大 ² , 岩本洋子 ³ , 丑久保裕太 ² , 三浦和彦 ² (¹ 名古屋大学, ² 東京理科大学, ³ 広島大学)			
10:50	11:05	 Temperature and acidity dependence of secondary organic aerosol formation from α -pinene photooxidation under low NOx conditions S2-12 *Yange Deng¹, Satoshi Inomata¹, Kei Sato¹, Sathiyamurthi Ramasamy¹, Yu Morino¹, Shinichi Enami¹, and Hiroshi Tanimoto¹ (¹National Institute for Environmental Studies) 			
11:05	11:20		休	憩	
		特	別セッション(招待講演)	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
11:20	12:10	K2-01	ボトムアップ・トップダウン手法 *市井和仁(千葉大学環境リモート	による陸域物質循環モニタリング 、センシング研究センター)	
12:10	13:20				
13:20	14:30	会員	員集会・奨励賞受賞記念講演	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
14:30	14:35		休	憩	
14:35	16:05	ポスターコアタイム② Slack(チャット形式)+Slackコール(154 以下のグループによるビデオ通話形式)			
16:05	16:10				
16:10	17:05		学生セッションII	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)	
16:10	16:25	S2-13	S2-13 原子間力顕微鏡を用いた個別エアロゾル粒子の付着力測定法の開発と大気 エアロゾルへの応用 *大野耕平 ¹ ,水島悠希 ² ,古家正規 ¹ ,國久亮太 ¹ ,土屋望 ¹ ,福間剛士 ³ ,岩田歩 ⁴ , 松木篤 ⁵ (¹ 金沢大学自然科学研究科, ² 金沢大学理工学域, ³ 金沢大学ナノ生 命科学研究所, ⁴ 慶応義塾大学理工学部, ⁵ 金沢大学環日本海域環境研究セン ター)		
16:25	16:50	L2-07 瀬戸内海および周辺地域におけるガス状・粒子状硫黄物質の動態に関する 研究 *田内萌絵 ¹ ,川本雄大 ² ,山地一代 ¹ ,中坪良平 ^{3,4} ,大下佳恵 ⁴ ,板野泰之 ⁵ (¹ 神戸 大学大学院海事科学研究科, ² 高松地方気象台観測予報管理官室, ³ 兵庫県農 政環境部環境管理局環境整備課, ⁴ 兵庫県環境研究センター, ⁵ 大阪市立環境 科学研究センター)			

16:50	17:05	S2-14	有機トレーサーとの比較による長 ゾール化合物の起源推定 *新拓実 ¹ ,池盛文数 ² ,前田卓磨 ³ ,高 境科学総合研究科, ² 名古屋市環境 センター)	崎における秋季・冬季の 粒子中イミダ 5尾雄二 ¹ , 中山智喜 ¹ (¹ 長崎大学水産・環 科学調査センター, ³ 長崎県環境保健研究
17:05	17:10	21	日目終了・LOCアナウンス	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)
	I			
18:00	20:00		懇親会	Zoom+Slackコール(ビデオ通話形式)

	3日目:11月13日(金)					
9:00	9:10		LOCアナウンス	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)		
9:10	10:20		短寿命成分	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)		
9:10	9:25	S3-15 N型センサーを用いた二酸化窒素 (NO ₂) の鉛直分布観測 *高島久洋 ¹ , 原圭一郎 ¹ , 乙部直人 ¹ , 田代尚輝 ¹ , Frederik Tack ² , Alexi Merlaud ² (¹ 福岡大学, ² Royal Belgian Institute for Space Aeronom (BIRA-IASB))		(NO ₂)の鉛直分布観測 田代尚輝 ¹ , Frederik Tack ² , Alexis gian Institute for Space Aeronomy		
9:25	9:40	S3-16	NO, NO ₂ , O ₃ の同時高時間分解能計測装置の開発と富士山山岳道路5合目に おける計測 S3-16 *和田龍一 ¹ , 松見豊 ² , 山田裕之 ³ , 鈴木央一 ⁴ , 板野泰之 ⁵ , 米村正一郎 ⁶ , 森吉泰 生 ⁷ , 戸野倉賢一 ⁸ (¹ 帝京科学大, ² 名古屋大, ³ 東京電機大, ⁴ 交通安全環境研, ⁵ 大阪市立環境科学研究セ, ⁶ 広島市立大, ⁷ 千葉大, ⁸ 東京大)			
9:40	10:05	L3-08	ジャカルタ大都市圏におけるオゾン濃度の特徴 *西橋政秀 ¹ , 向井人史 ¹ , 寺尾有希夫 ¹ , 橋本茂 ¹ , Rizaldi Boer ² , Muhammad Ardiansyah ² , Bregas Budianto ² , Adi Rakhman ² , Gito Sugih Immanuel ² , Rudi Nugroho ³ , Nawa Suwedi ³ , Anies Marufatin ³ , Muhammad Agus Salim ³ , Dodo Gunawan ⁴ , Eka Suharguniyawan ⁴ , Asep Firman Ilahi ⁴ , Muharam Syam Nugraha ⁴ , Ronald Christian Wattimena ⁴ , Bayu Feriaji ⁴ , Qoriana Maulani ⁴ (¹ 国立環境研究所, ² ボゴール農科大学(IPB), ³ インドネ シア技術評価応用庁(BPPT), ⁴ インドネシア気象気候地球物理庁(BMKG))			

10:05	10:20	S3-17	富山県における上空大気中の過酸化水素およびホルムアルデヒド濃度の測 定:寒候期と2020年8月上旬の観測 *渡辺幸一 ¹ ,楊柳 ¹ ,長堀友 ¹ ,尾形佳行 ¹ ,中村賢 ¹ ,大谷卓也 ¹ ,森絢三朗 ¹ ,荒木 幸洋 ¹ (¹ 富山県立大学)	
10:20	10:40		休?	憩
10:40	11:45		短寿命成分 / モデル	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)
10:40	11:05	L3-09	Linking BC and PM2.5 surface concentrations with aerosol optical properties jointly estimated by skyradiometer and MAX-DOAS instruments *Alessandro Damiani ¹ , Hitoshi Irie ¹ , Kodai Yamaguchi ¹ , Hossain Mohammed Syedul Hoque ^{1,2} , Tomoki Nakayama ³ , Yutaka Matsumi ² , and Yutaka Kondo ⁴ (¹ Chiba University, ² Nagoya University, ³ Nagasaki University, ⁴ National Institute of Polar Research)	
11:05	11:30	L3-10	北極域のブラックカーボンの放射強制力に対する雲内上昇流の扱いの重要 性について *松井仁志 ¹ , 茂木信宏 ² (¹ 名大院環境, ² 東大院理)	
11:30	11:45	S3-18	北極域における無機イオン沈着の経年変動:化学気候モデル実験とグリー ンランドSE-Dome氷床コアデータの比較 *須藤健悟 ^{1,2} ,白土緋那子 ¹ ,大西貴都 ¹ ,飯塚芳徳 ³ (¹ 名古屋大学環境学研究 科, ² 海洋研究開発機構, ³ 北海道大学低温科学研究所)	
11:45	12:55			示 憩
12:55	13:40		モデル Zoom (全員参加型・ビデオ通話形式)	
12:55	13:10	S3-19	気象研究所地球システムモデルを用いた人為起源気体とエアロゾルによる 有効放射強制力の推定 *大島長 ¹ ,行本誠史 ¹ ,出牛真 ¹ ,神代剛 ¹ ,川合秀明 ¹ ,田中泰宙 ¹ ,吉田康 平 ¹ (¹ 気象研究所)	
13:10	13:25	S3-20) 気象研究所地球システムモデルを用いた黄砂発生量予測 *眞木貴史 ¹ ,田中泰宙 ¹ ,関山剛 ¹ ,梶野瑞王 ¹ ,大島長 ¹ (¹ 気象研究所)	

13:25	13:40	S3-21	MRI-ESM2.0を用いた気候実験による自然強制力に起因する20世紀前半の 北極温暖化と海氷減少 *相澤拓郎 ^{1,2} ,石井正好 ² ,大島長 ² ,行本誠史 ² ,羽角博康 ³ (¹ 国立極地研究所, ² 気象研究所, ³ 東京大学大気海洋研究所)	
13:40	14:00		休	憩
14:00	14:45		エアロゾルII / 物質循環	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)
14:00	14:15	S3-22	春季の中部太平洋域におけるバイ 定 *川名華織 ¹ , 松本和彦 ¹ , 竹谷文一 ¹ ,	オエアロゾルの時空間分布および起源同 宮川拓真 ¹ , 金谷有剛 ¹ (¹ JAMSTEC)
14:15	14:30	S3-23	春季プレブルーム期の西部北太平洋亜寒帯域におけるエアロゾル粒径分布 およびCCN活性 *川名華織 ^{1,2} , 宮崎雄三 ³ , 大森裕子 ⁴ , 谷本浩志 ⁵ , 鏡味沙良 ¹ , 鈴木光次 ⁶ , 山下 洋平 ⁶ , 西岡純 ³ , Yange Deng ^{1,7} , 矢井ひかり ^{1,7} , 持田陸宏 ^{1,7} (¹ 名大環境学, ² JAMSTEC, ³ 北大低温研, ⁴ 筑波大生命環境, ⁵ NIES, ⁶ 北大地球環境, ⁷ 名大 ISEE)	
14:30	14:45	S3-24	S3-24 鉄安定同位体比に基づく西部北太平洋域エアロゾル中の鉄の起源別の寄与の推定 *栗栖美菜子 ¹ ,植松光夫 ^{2,3} ,伊藤彰記 ¹ ,坂田昂平 ⁴ ,高橋嘉夫 ² (¹ 海洋研究開発機構, ² 東京大学, ³ 埼玉県環境科学国際センター, ⁴ 国立環境研究所)	
14:45	15:05		休	憩
15:05	16:00		物質循環	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)
15:05	15:30	L3-11	 三酸素同位体組成(Δ¹⁷0)から示唆された東南極における特徴的な大気 硫酸生成反応 *石野咲子^{1,2},服部祥平¹,Legrand Michel³, Chen Qianjie⁴, Alexander Becky⁴, Shao Jingyuan⁴, Huang Jiayue⁴, Jaeglé Lyatt⁴, Jourdain Bruno³, Jreunkert Susanne³,山田明憲⁵,吉田尚弘^{1,6}, Savarino Joël³(¹東京工業大 学 物質理工学院,²情報・システム研究機構 国立極地研究所,³IGE, Université Grenoble Alpes/CNRS, France, ⁴Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, USA, ⁵豊島電気製作所,⁶東京工業大 学 地球生命研究所) 	

15:30	15:55	L3-12	硫化カルボニルの硫黄同位体分析 全球収支解明-	とその応用 - ミッシングソースの特定と
			*服部祥平', 亀崎和輝', 吉田尚弘'	('東京工業大学,'上智大学)
15:55	16:10	S3-25	日本海に沈着する大気窒素化合物 響評価 *竹谷文一 ¹ ,相田真希 ¹ ,関谷高志 ¹ , 牧生 ¹ ,金谷有剛 ¹ (¹ 海洋研究開発板	が表層植物プランクトン濃度へ与える影 山地一代 ^{1,2} ,池田恒平 ³ ,松本和彦 ¹ ,本多 幾構, ² 神戸大学, ³ 国立環境研究所)
16:10	16:25	閉会	式・学生優秀賞の発表・表彰	Zoom(全員参加型・ビデオ通話形式)

講演プログラム (ポスター発表)

ポスター 番号	● 学生	ポスター発表
P-01		Light absorption properties of brown carbon aerosols at Fukue Island based on filter observation and ground remote sensing *Chunmao Zhu ¹ , Takuma Miyakawa ¹ , Hitoshi Irie ² , Yongjoo Choi ¹ , Fumikazu Taketani ¹ , Yugo Kanaya ¹ (¹ Japan Agency for Marine–Earth Science and Technology, ² Chiba University)
P-02		福江島における微小エアロゾル元素組成・ブラックカーボンの高時間分解観測:モ デルによる人為起源鉄排出量の過小評価に関する知見 *宮川拓真 ¹ , 伊藤彰記 ¹ , 朱春茂 ¹ , 金谷有剛 ¹ (¹ 海洋研究開発機構 地球環境部門)
P-03		人為起源排出インベントリの違いが北極ブラックカーボンのシミュレーションに及 ぼす影響 *池田恒平 ¹ , 谷本浩志 ¹ (¹ 国立環境研究所 地球環境研究センター)
P-04		クリーギー中間体の反応メカニズムの導入による化学輸送モデルの硫酸塩の再現性 の精緻化 *板橋秀一 ¹ ,内田里沙 ² ,山地一代 ³ ,茶谷聡 ⁴ (¹ 電力中央研究所, ² 日本自動車研究所, ³ 神戸大学, ⁴ 国立環境研究所)
P-05		IMPACTモデルでの粗大ダストエアロゾル放射効果 *伊藤彰記 ¹ , Adeyemi A. Adebiyi ² , Yue Huang ² , and Jasper F. Kok ² (¹ 海洋研究開発 機構, ² カリフォルニア大学)
P-06		長石の鉱物学的特性と氷晶核能との関連性 田所耕平 ¹ ,岩田歩 ² ,伊藤康平 ³ ,水上知行 ⁴ ,*松木篤 ⁵ (¹ 金沢大学自然科学研究科, ² 慶 応義塾大学理工学部, ³ 金沢大学理工学域, ⁴ 金沢大学地球社会基盤学系, ⁵ 金沢大学環 日本海域環境研究センター)
P-07	•	2018-2020年に東京スカイツリーで観測した雲凝結核特性に関する研究 *横山晶美 ¹ , 森樹大 ¹ , 三浦和彦 ¹ , 岩本洋子 ² , 速水洋 ³ , 三隅良平 ⁴ , 宇治靖 ⁴ , 當房豊 ⁵ (¹ 東京理科大学, ² 広島大学, ³ 早稲田大学, ⁴ 防災科学技術研, ⁵ 極地研)
P-08	•	東広島で観測された大気エアロゾルの雲凝結核特性 *海塚収英 ¹ , 岩本洋子 ² , 竹田一彦 ² , 三浦和彦 ³ (¹ 広島大学総合科学部, ² 広島大学大学 院統合生命科学研究科, ³ 東京理科大学理学部)

P-09		北極域で取得されたエアロゾルサンプルの水抽出物の吸湿性・CCN活性および表面 張力測定:冬季~夏季の比較 *川名華織 ^{1,2,3} , 河村公隆 ^{1,2} , Pingqing Fu ^{1,4} , Leonard A. Barrie ^{5,6} (¹ 北大低温研, ² 中部 大学, ³ JAMSTEC, ⁴ Tianjin University, ⁵ Stockholm University, ⁶ McGill University)
P-10		東南極における大気硫酸の硫黄安定同位体組成の均一性と氷期-間氷期の硫黄起源 のシフトに対する示唆 *石野咲子 ^{1,2} ,服部祥平 ¹ ,Savarino Joël ³ ,Legrand Michel ³ ,Albalat Emmanuelle ⁴ , Albarède Francis ⁴ , Preunkert Susanne ³ ,Jourdain Bruno ³ ,吉田尚弘 ^{1,5} (¹ 東京工業 大学物質理工学院, ² 情報・システム研究機構国立極地研究所, ³ IGE, Université Grenoble Alpes/CNRS, France, ⁴ LGL-TPE, École Normale Supérieure de Lyon, France, ⁵ 東京工業大学地球生命研究所)
P-11	•	Direct measurement of aerosol acidity using pH test paper *Qinping Song ¹ , Kazuo Osada ¹ (¹ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University)
P-12	•	二酸化窒素と凍結したヨウ化カリウム水溶液によるヨウ素生成反応 *上田哲也 ¹ , 中野幸夫 ² , 原田明 ¹ , 薮下彰啓 ¹ (¹ 九州大学大学院総合理工学府, ² 東京学 芸大学教育学部)
P-13		低NOx条件での二次有機エアロゾルの不均一酸化過程 *佐藤圭 ¹ ,藤谷雄二 ¹ ,中山智喜 ² , Sathiyamurthi Ramasamy ¹ ,森野悠 ¹ ,梶井克純 ³ (¹ 国立環境研究所, ² 長崎大学, ³ 京都大学)
P-14		Visualization of air cleanliness using Clean alr Index (CII) *Tomohiro O. Sato ¹ , Takeshi Kuroda ^{2,1} , Mayuko Yoshikawa ³ , Yasuko Kasai ^{1,4} (¹ National Institute of Information and Communications Technology, ² Tohoku University, ³ Weathernews Inc., ⁴ University of Tsukuba)
P-15		TROPOMI NO ₂ 衛星観測データ同化を用いた 全球NOx排出量の推定 *関谷高志 ¹ , 宮崎和幸 ² , Henk Eskes ³ , Folkert Boersma ^{3,4} , 須藤健悟 ^{5,1} , 滝川雅之 ¹ , 金 谷有剛 ¹ , 大越智幸司 ¹ (¹ 海洋研究開発機構, ² NASAジェット推進研究所/カリフォル ニアエ科大学, ³ オランダ王立気象研究所, ⁴ Wageningen University, ⁵ 名古屋大学 大 学院環境学研究科)
P-16		NH ₃ 双方向フラックスを考慮した東アジア域の大気質シミュレーション *桐山悠祐 ¹ , 黒川純一 ¹ , 佐藤啓市 ¹ (¹ アジア大気汚染研究センター)

P-17		ー次元光化学モデルを用いた二硫化炭素の動態解析 *亀崎和輝 ¹ , Yuanzhe Li ¹ , Sebastian Danielache ¹ (¹ 上智大学 理工学研究科)
P-18	•	MOPITTセンサーとNICAM-TMモデルのCO濃度の比較解析 *宮島宏 ¹ , 齋藤尚子 ¹ , 丹羽洋介 ² (¹ 千葉大学環境リモートセンシング研究センター, ² 国立環境研究所)
P-19		スーパーコンピュータ「富岳」を用いた大アンサンブル・高解像度大気環境シミュ レーション研究 *八代尚 ¹ (¹ 国立環境研究所)
P-20		超小型衛星搭載テラヘルツセンシングシステムの火星大気観測感度検討 *山田崇貴 ¹ , 笠井康子 ¹ (¹ 情報通信研究機構)
P-21		つくばFTIRで観測されたオゾン高度分布の検証 *村田功 ¹ , 中島英彰 ^{2,1} , 森野勇 ² , 武田真憲 ^{1,2} (¹ 東北大学大学院環境科学研究科, ² 国立 環境研究所)
P-22	•	自動車排気ガス中に含まれる亜硝酸濃度の測定(2) *須藤潤 ¹ , 近藤美則 ² , 今野秀徳 ² , 中嶋吉弘 ¹ (¹ 東京農工大学, ² 国立環境研究所)
P-23	•	郊外とトンネル内における大気中揮発性有機化合物の比較 *辰巳紘奨 ¹ , 加藤俊吾 ¹ (¹ 東京都立大学)
P-24	•	能登半島珠洲でのVOC長期測定 *矢田茂久 ¹ , Hon-Lam-Hong Sandra ¹ , 加藤俊吾 ¹ , 定永靖宗 ² , 松木篤 ³ (¹ 東京都立大 学, ² 大阪府立大学, ³ 金沢大学)
P-25		オゾン反応性計測に基づく植物由来揮発性有機化合物の放出把握に関する在宅研究 *松本淳 ¹ (¹ 早稲田大学人間科学学術院)
P-26	•	東京都江東区での大気中水素濃度変動要因の検討 *橋間美弥 ¹ , 加藤俊吾 ¹ , 小谷野眞司 ² , 齊藤伸治 ² , 鶴丸央 ² (¹ 東京都立大学, ² 東京都環 境科学研究所)
P-27		日本周辺における大気中ラドン濃度の短周期変動 *石島健太郎 ¹ , 坪井一寛 ¹ , 松枝秀和 ^{2,1} , 田中泰宙 ¹ , 眞木貴史 ¹ , 中村貴 ³ , 丹羽洋介 ⁴ (¹ 気象研, ² 独協大, ³ 気象庁, ⁴ 国環研)
P-28	•	富士山頂での火山性ガス越冬モニタリングシステムの構築 *高橋智樹 ¹ ,加藤俊吾 ¹ ,三浦和彦 ² ,大河内博 ³ ,鴨川仁 ⁴ ,土器屋由紀子 ⁵ ,荒島謙治 ⁶ ,西 出葵嘉 ⁶ ,尾花文一 ⁶ (¹ 東京都立大学, ² 東京理科大学, ³ 早稲田大学, ⁴ 静岡県立大学, ⁵ 富士山環境研究センター, ⁶ ソニーセミコンダクタソリューションズ)

P-29	飛騨高山冷温帯落葉広葉樹林サイトにおける大気中メタン濃度の連続観測 *村山昌平 ¹ , 石戸谷重之 ¹ , 堀知行 ¹ , 吉竹晋平 ² , 前田高尚 ¹ (¹ 産業技術総合研究所, ² 早 稲田大学)
P-30	東京スカイツリーにおける酸素観測に基づく化石燃料起源CO ₂ の推定法の検討 *遠嶋康徳 ¹ , 寺尾有希夫 ¹ , 丹羽洋介 ¹ , 白井知子 ¹ , 曾継業 ¹ (¹ 国立環境研究所)
P-31	陸・海CO ₂ フラックスの長期変動推定に向けた逆解析実験 *丹羽洋介 ¹ , 伊藤昭彦 ¹ , 飯田洋介 ² (¹ 国立環境研究所, ² 気象庁)
P-32	中部山岳域におけるカラマツ人工林の炭素収支の気候変動応答と森林管理の効果に 関するモデル解析 *栗林正俊 ¹ , 伊藤昭彦 ² (¹ 長野県環境保全研究所, ² 国立環境研究所)

口頭発表 要旨

Impact of atmospheric radiocarbon and stable isotope measurements on understanding the global CH₄ budget over 1750–2015

Ryo Fujita¹ and Heather Graven¹

¹Department of Physics, Imperial College London, South Kensington Campus, London, United Kingdom

Despite the advantage of stable isotope measurements in atmospheric CH₄ (δ^{13} C-CH₄, δ D-CH₄) for separating the contributions of individual CH₄ sources and sinks to the atmospheric CH₄, recent estimates of the global atmospheric CH₄ budget using the stable isotopes are still inconclusive when given the uncertainty in their source and sink isotope signatures. Radiocarbon measurements $(\Delta^{14}C-CH_4)$ could provide stronger additional constraint on the fossil-fuel CH₄ sources (i.e., ¹⁴C-free), but the uncertainty of ¹⁴CH₄ emissions from nuclear power facilities and a lack of data have limited such utilization. Here we describe a new approach to estimate plausible global CH₄ source and sink scenarios over 1750-2015 using historical observations and one-box model simulations of atmospheric CH₄, δ^{13} C-CH₄, δ D-CH₄, and Δ^{14} C-CH₄. As inputs to the model, we prepare a priori bottom-up CH₄ emission inventories, total atmospheric CH₄ lifetime, source and sink isotope signatures, nuclear power facility database and their uncertainties. We then run a Monte Carlo simulation of atmospheric CH₄, δ^{13} C-CH₄, δ D-CH₄, and Δ^{14} C-CH₄ over the period using the inputs with the uncertainties. By using the observational CH₄ and three isotope constraints, we derive the best combinations of the source and sink parameters. First, with our default source isotope signatures setting following Sherwood et al. (2017), we find that reconciling δ^{13} C-CH₄, δ D-CH₄, and Δ^{14} C-CH₄ observations indicates that (1) natural geologic emissions are less than half of the current bottom-up estimates, 45 [27–63] Tg CH₄ yr⁻¹, (2) biomass burning and anthropogenic fossil emissions are larger than current bottom-up estimates, (3) biogenic emissions are slightly smaller than current bottom-up estimates, and (4) sink-weighted total KIE^C is higher than 1.007. suggesting a contribution of CH₄-Cl reactions. However, if we apply a different combination of source isotope signatures from within their prior uncertainties, the obtained plausible source and sink scenarios become still uncertain, except the natural geologic emissions. We also investigate how much respective three isotope observations can constrain each source and sink parameter. The results indicate that historical Δ^{14} C-CH₄ observations can strongly constrain the geologic CH₄ emissions, but without additional δ^{13} C-CH₄ and δ D-CH₄ observations, modern anthropogenic CH₄ emissions cannot be estimated robustly.

地上観測データによる国内メタンインベントリ検証可能性

速水 洋

早稻田大学

1. はじめに

メタン CH₄は,二酸化炭素に次ぐ放射強制力を有 する重要な温室効果ガスであり,対流圏オゾンの原 因物質でもある。ゆえに CH₄の濃度削減は気候変動 と全球的な大気汚染の軽減につながると考えられる。 CH₄は大気中での寿命が約9年のため大気中濃度が 一様化するので,全球的な収支が重要である。しか しながらそれには放出源と吸収源をできるだけ詳細 に把握する必要がある。そのため,フラックス測定 や地上・衛星観測,インバースモデリングによる排 出量推計など多くの取り組みがなされている。

こうした解析で用いられる地上データは落石,波 照間,綾里,南鳥島,与那国島といった遠隔地のみ である。遠隔地での観測は全球的な濃度監視が目的 であり,できるだけ局所的な影響を排除し広域的な 濃度変動の把握に努めている。一方,わが国では光 化学オキシダント対策の一環として非メタン炭化水 素濃度が常時監視局(以下,常監局)で測定されて いる。この測定では同時に CH4 も分析されるから, 全国 500 弱の地点で CH4 の1時間濃度が蓄積され続 けていることになる。しかしながら,このデータを 活用した事例はわずかである(たとえば,前田ら, 2007;前田と山本,2000;小峯と上野,2004)。

GOSAT/GOSAT-2 や遠隔地のデータを用いてアジ アの排出量を逆推計するように、常監局データを用 いて国内排出量を逆推計できるのではないか。それ により排出量モデルを高精度化できれば、全球的な 排出量推計にも貢献できるのではないか。その可能 性を探るべく、予備的な検討を行った。

方法

地上濃度データは、全国の常監局において水素炎 イオン化検出器付きガスクロマトグラフ法により測 定された CH4 濃度(1時間値)を国立環境研究所環 境数値データベース(http://www.nies.go.jp/igreen/)よ り入手した。15 分×4 回や6 分×10 回の計測から1 時間値が算出され、0.01 ppmC 単位で記録されてい る。参考のため上記遠隔地点のデータも使用した (http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/data/report/data お よび http://db.cger.nies.go.jp/portal/geds)。

排出量データは EDGAR (The Emissions Database for Global Atmospheric Research; https://edgar.jrc.ec. europa.eu)v5.0 を使用した。EDGAR は農業, 廃棄物, 燃焼・漏出などの人為源が対象で, 湿地, 森林火災, シロアリなどの自然源を含まない。空間解像度は緯 度経度 0.1 度であり, 今回は月間値を使用した。

解析対象期間は最新データの揃う 2015 年の1年間とした。この年は488常監局でCH4が測定された。

3. 結果と考察

CH4の日最低濃度は通常,混合層の発達する午後に記録され,その値はバックグラウンド濃度に近いと考えられる(前田ら,1997)。Fig.1 左は各局における日最低濃度の月平均値のいわゆる箱ヒゲ図である。7月を極小とする季節変化が認められ,遠隔地点の特徴と一致する。第一四分位から第三四分位(箱の部分)はほぼ落石(上の〇)と南鳥島(下の〇)の間に挟まれており,多くの地点で日最低値は広域的な濃度を示していると考えられる。その一方で6月が5月より高かったり,7月や8月が南鳥島より低かったりするが,その理由は未検討である。

日最低濃度がバックグラウンド濃度を近似するの であれば、日較差(=日最高濃度-日最低濃度)は局 所的な影響を反映すると考えられる(前田ら,1997)。 日較差の月平均値の全局平均値は、常監局の位置す るグリッドにおける月間排出量と同様の季節変動を 示した(Fig.1右)。しかしながら局別にみると、排 出量に比べて日較差が極端に大きい局が複数確認さ れた(Fig.2)。上述のように EDGAR は人為源のみ なので、こうした局は自然源の影響を強く受けた可 能性がある。ちなみに両月とも月平均日較差が 1 ppmC を越えたのは、北海道の遠浅局と千葉県の鷺 沼局の2局であった。前者は勇払原野の牧場地にあ り、後者は畑地が混在する住宅地で南関東ガス田の 上に位置し、自然源の影響が示唆される。



Fig. 1 月平均日最低濃度の分布(左)と観測濃度の 日較差と EDGAR 排出量の月変化(右)





小峯と上野(2004)都環研年報2004,18-23. 前田ら(1997)大気環境学会誌,32,109-1115. 前田と山本(2000)大気環境学会誌,35,170-182.

大気中アルゴン・窒素比を用いた大気ポテンシャル酸素の 変動要因の評価 – 季節変動と緯度分布 –

*石戸谷重之¹,遠嶋康徳²,石島健太郎³,菅原敏⁴,丹羽洋介²,後藤大輔⁵,村山昌 平¹,坪井一寛³,青木伸行¹,中村貴⁶

1 産業技術総合研究所,2 国立環境研究所,3 気象研究所,4 宮城教育大学,5 国立極地研究所,6 気象庁

1. はじめに

大気中アルゴン (Ar)・窒素 (N₂) 比 (δ(Ar/N₂)) は海水温の変動に伴い Ar と N2の溶解度が変動する ことで駆動され、広域平均の海水温変動の指標にな ると期待される (e.g. Keeling et al., 2004; Ishidoya et al., 2020)。一方、大気中酸素 (O₂) · N₂ 比 (δ(O₂/N₂)) と二酸化炭素 (CO2) 濃度から求められる大気ポテン シャル酸素 (APO=O₂+1.1xCO₂) は陸上植物活動に 対する保存量であり、大気海洋間のO2交換と、陸上 植物と O₂/CO₂ 交換比が異なる化石燃料消費および 大気海洋間 CO₂ 交換を反映して変動する (e.g. Tohjima et al., 2015)。このうち大気海洋間の O₂ 交換 は溶解度変動と海洋生物活動の両者により駆動され るが、Ar と O₂溶解度の比は知られており、 δ (Ar/N₂) と APO の同時観測から APO 変動に占める溶解度変 動の寄与を評価できる。併せて、化石燃料消費や大 気海洋間 CO2交換の寄与を大気輸送モデルを用いて 評価し、APO 変動に占める海洋生物活動の寄与を分 離評価できると期待される。本報告では日本国内と 南極昭和基地におけるδ(Ar/N2)および APO の観測結 果と、モデルによるシミュレーション結果から、APO の季節変動および緯度分布の変動要因を検討する。

2. 観測とモデル

大気観測は北海道落石岬、茨城県つくば市、岐阜 県高山市、沖縄県波照間島、東京都南鳥島および南 極昭和基地において行なった。つくば市では質量分 析計による連続観測により、他のサイトでは同分析 計によるフラスコ採取試料の分析によりδ(Ar/N₂)、 δ(O₂/N₂)および CO₂ 濃度を観測した (Ishidoya & Murayama, 2014)。また自然起源および実験上の問題 によるAr、O2、N2の分子拡散分離の評価の指標とし て、N2の安定同位体比δ¹⁵N も同時に観測した。 $\delta(Ar/N_2)$ 、 $\delta(O_2/N_2)$ 、 $\delta^{15}N$ および CO₂ 濃度フラスコ試 料の繰り返し分析精度は約±7,±3,±1.5 per meg およ び±0.1 ppm であり、標準ガスの長期安定性(年平均 値) は約±1.6, ±1.5, ±0.5 per meg および±0.05 ppm で ある。3 次元大気輸送モデルは NICAM-TM (Niwa et al., 2017) と GSAM-TM の2 種類を用いた。大気海 洋間ガス flux については、ERA5 による heat flux に 基づく大気海洋間 Ar および N₂ flux と、TransCom の 大気海洋間 O₂および N₂ flux、および Takahashi et al. (2009)による CO₂ flux を用いた。化石燃料 CO₂ flux には CDIAC 統計データを使用した。また、大気の拡 散分離の評価に分子拡散を考慮した 2 次元モデルを 使用した (Sugawara et al., 2018; Ishidoya et al., 2020)。

3. 結果と考察

観測された $\delta(Ar/N_2)$ と APO はいずれも夏季に極大 となる季節変動を示した。ただし波照間および南鳥 島での $\delta(Ar/N_2)$ 季節変動は中高緯度のサイトに比し てやや不明瞭である。また、ERA5 heat flux に基づく シミュレーションは $\delta(Ar/N_2)$ 季節変動をよく再現し た。APO 季節変動から、 $\delta(Ar/N_2)$ に基づく溶解度変 動の寄与(APO_{therm})と、モデルから評価した化石燃 料消費および大気海洋間 CO₂交換の寄与を差し引く ことで、海洋生物活動の寄与による APO 季節変動 (APO_{netbio})を推定した。季節振幅比で見た場合に、 APO 季節変動に占める APO_{therm}の寄与は約 2 割、 APO_{netbio}の寄与はその4倍程度であることから、APO 季節変動は主に海洋生物活動(表層生物+深層水湧 昇)により駆動されていると考えられる。

APO 年平均値の緯度分布について、Tohjima et al. (2012, 2015)による西太平洋域での赤道域の極大と 北半球中緯度の極小がよく知られている。そこで本 研究では、限られた観測点ではあるが、落石(43°N)、 高山 (36°N)、波照間 (24°N) および昭和 (69°S) の δ(Ar/N₂)と APO 年平均値について、分子拡散分離の 影響をδ¹⁵N で補正し、APO 緯度分布の変動要因を評 価した。本研究の 24-43°N における APO 年平均値 の分布は Tohjima et al. と整合的であり、APO_{therm}の 寄与がその7割を占める結果となった。一方、ERA5 heat flux に基づくシミュレーションでは同 APO_{therm} の寄与は3割程度であり、ERA5は、海洋から大気 への強い熱放出域である日本周辺の年平均 heat flux を過小評価しているのかもしれない。また、昭和の δ¹⁵N は他サイトに比して約 1 per meg 低く、2 次元モ デルで予測される差よりも1桁大きい。極渦内の重 力分離や極夜の逆転層内での温度拡散分離など、極 域の拡散分離には2次元モデルで表現できない複雑 な過程が存在すると考えられ、今後の高度な評価が 待たれる。仮にδ¹⁵N補正とAPOtherm観測値が妥当と 考えた場合には、昭和の APO_{nethio} 年平均値は日本周 辺より 15 per meg 強低く、南極域の深層水湧昇によ る海洋O2吸収の大きな寄与が示唆される。 謝辞:本研究は環境省地球環境保全等試験研究費、JSPS 科研 費 JP19H01975 等により実施された。観測にご協力頂いた一 財) 地球・人間環境フォーラム、日本南極地域観測隊、およ び気象庁 地球環境・海洋部の皆様に御礼申し上げます。

Study the methane interhemispheric transport pathway using observations by the GOSAT/TANSO-FTS thermal infrared sensor

*Dmitry A. Belikov¹, Naoko Saitoh¹, and Prabir K. Patra^{2,1}

1 Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, Chiba, 263-8522, Japan

2 Research Institute for Global Change (RIGC), Japan Agency for Marine-Earth Science and

Technology (JAMSTEC), Yokohama, 236-0001, Japan

1. Introduction

Observations of long-lived tracers indicate that mixing tropospheric air between the Northern Hemisphere (NH) and Southern Hemisphere (SH) extratropics is about 1-1.5 yr. The importance of the seasonal migration of the zonally averaged Hadley circulation on interhemispheric (IH) transport of tracers has been recognized. The mechanisms for transport through the tropics and the role of the monsoonal circulation, however, are not well understood. This study aiming to identify the transport pathways that connect NH and SH by analyzing measurements from the thermal infrared (TIR) band observations by the Thermal And Near-infrared Sensor for carbon Observation-Fourier Transform Spectrometer (TANSO-FTS) onboard the Greenhouse gases Observation SATellite (GOSAT).

2. Method

The GOSAT satellite performs simultaneously measures greenhouse gases CO_2 and CH_4 on a 666 km sun-synchronous orbit with a 3-day revisit cycle, a 12-day operation cycle, and the local solar time of $13:00 \pm 15$ min [1]. Equipped with the TANSO-FTS instrument GOSAT detects short-wavelength infrared (SWIR) light reflected from the earth's surface, and the TIR radiation emitted from the ground and atmosphere [2]. Therefore, GOSAT/TANSO-FTS can simultaneously observe column averaged dry-air mole fractions and profiles of CH₄ in the same field of view, corresponding to a nadir footprint diameter of 10.5 km.

This study used instantaneous along-track profiles of the GOSAT-TIR V1 CH₄ product [3] on 22 fixed pressure levels (from the surface to 0.1 hPa) retrieved using temperature and water vapor profiles provided by the Japan Meteorological Agency Grid Point Values (JMA-GPV) dataset, and the a priori profiles simulated by the National Institute for Environmental Studies (NIES) transport model [4]. The product is released for the period from April 23, 2009, through May 24, 2014.

3. Results

In this study, we have investigated the transport pathway from the NH to the SH and the underlying mechanism using GOSAT-TIR CH₄ observations.

We found several tropical zones of active IH transport located at the upper troposphere and lower stratosphere (UTLS) level (300– 200hPa). Amazonia, the tropical Atlantic and tropical Africa support exchange both for boreal winter and summer. While the Asia regions is experiencing significant seasonal variability.

Presented results confirm the role of monsoon zonally asymmetric heating on interhemispheric transport and highlight that the monsoon-induced eddy circulation plays an important role in the interhemispheric transport of long-lived chemical constituents. The dual role of the Asian Summer Monsoon (ASM) has been revealed. On the one hand, its influence blocks IH in the tropical zone of the Indian Ocean and Southeast Asia. On the other hand, it enhances vertical ventilation in northern India, where significant CH4 fluxes are concentrated. Fast convective transport caused by ASM accelerate the saturation of the middle and upper troposphere with methane-rich surface air. These stratospheric levels are origin of two west directed jets the upper-level Tropical Easterly Jet (TEJ), the mid-level African Easterly Jet (AEJ) transported air mass to the tropical Atlantic.

Overall, these results indicate that there are excellent opportunities for investigating the impact of ASM on global UTLS chemical and aerosol composition over tropical regions and in SH via aircraft-based research campaigns, other satellite missions, and model (backward trajectory) simulations. As the Asian continent is projected to be a major contributor to the emission of reactive gases and aerosols during the course of this century.

- References
- T. Yokota et al., "Global concentrations of CO2 and CH4 retrieved from GOSAT: First preliminary results," Sci. Online Lett. Atmos., 2009, doi: 10.2151/sola.2009-041.
- [2] A. Kuze *et al.*, "Level 1 algorithms for TANSO on GOSAT: Processing and on-orbit calibrations," *Atmos. Meas. Tech.*, 2012, doi: 10.5194/amt-5-2447-2012.
- [3] N. Saitoh *et al.*, "Comparisons between XCH4 from GOSAT Shortwave and Thermal Infrared Spectra and Aircraft CH4 Measurements over Guam," *Sola*, vol. 8, pp. 145–149, 2012, doi: 10.2151/sola.2012-036.
- [4] T. Saeki, R. Saito, D. Belikov, and S. Maksyutov, "Global high-resolution simulations of CO₂ and CH₄ using a NIES transport model to produce a priori concentrations for use in satellite data retrievals," *Geosci. Model Dev.*, vol. 6, no. 1, pp. 81–100, Jan. 2013, doi: 10.5194/gmd-6-81-2013.

GOSAT 及び GOSAT-2 短波長赤外プロダクト検証の進捗

*森野勇¹,堤之智¹,内野修¹,大山博史¹,齊藤龍²,Tran Thi Ngoc Trieu¹, Frey Matthias Max¹,酒井哲³,永井智広³,奥村浩⁴,新井耕平⁴,Ben Liley⁵,山崎明宏³,吉田幸生¹,

松永恒雄¹, 亀井秋秀¹, 齊藤誠¹, 野田響¹, TCCON partners⁶

1国立環境研究所,2国際航業,3気象研究所,4佐賀大学,5NIWA Lauder,6

https://tccon-wiki.caltech.edu

主要な温室効果ガスである二酸化炭素 (CO₂) や メタン (CH₄) の全球分布とその変動特性等を明ら かにすることを目的に、温室効果ガス観測技術衛星 (GOSAT、Greenhouse gases Observing SATellite) が 2009 年 1 月 23 日に打ち上げられた。現在も後期観 測運用中で、これまで 11 年以上の観測データが蓄積 されている。この GOSAT プロジェクトは、環境省、 宇宙航空研究開発機構、国立環境研究所の三者で共 同推進されている。

GOSAT に搭載されたフーリエ変換分光計 (TANSO-FTS, Thermal And Near-infrared Sensor for carbon Observation - Fourier Transform Spectrometer) による短波長赤外域 (SWIR, Short-Wavelength InfraRed) スペクトルから CO₂、CH₄ 及び水蒸気 (H₂O) のカラム平均濃度 (XCO₂、XCH₄ 及びXH₂O、 GOSAT データ) が導出される。GOSAT データは一 般に公開されている。

Full physics 法による GOSAT レベル 2 (L2) プロダク トの最新バージョンは V02.90 及び V02.91 であり、 V02.90 の陸域観測に対するバイアス及びそのバラ ツキは、地上設置型の高分解能 FTS 観測ネットワー ク (TCCON, Total Carbon Column Observing Network) データを用いて、XCO₂は-0.35 ppm 及び 2.19 ppm、 XCH₄は-2.2 ppb 及び 13.4 ppb、XH₂O は-0.8%及び 32.3%と算出されており、前バージョン V02.81 と同 等の結果を得ている。更なる高精度化を目指して、 lidar や skyradiometer 観測データを用いた GOSAT デ ータの雲やエアロゾルによる影響の調査を継続し、 対流圏エアロゾル、火山噴火等による成層圏エアロ ゾル、高高度巻雲等に分類して評価を進めている。 更に、可搬型 FTS 観測ネットワーク (COCCON, Collaborative Carbon Column Observing Network) デー タを用いた GOSAT データの検証解析を進めており、 TCCON による検証解析と同等の結果を得ることが できている。この COCCON データによる衛星観測 温室効果ガスデータの検証解析が行えるようになっ たことにより、経費や観測運用の難しさのために TCCON による検証範囲の拡大が滞っている問題を ある程度克服することができると考えている。

GOSAT の後継機である GOSAT-2 は、2018 年 10 月 29 日に打ち上げられ、現在観測運用中である。 GOSAT と同様に FTS (TANSO-FTS-2) が搭載され、 SWIR スペクトルから、これまでのガス種に加えて 一酸化炭素 (CO) も導出されることになっている。
 解析手法は full physics 法に加えて、proxy 法により
 XCH₄、XCO の導出も行われる (以後、GOSAT-2 による XCO₂、XCH₄、XCO 及び XH₂O を"GOSAT-2 データ"と呼ぶ)。
 GOSAT-2 データは、研究公募で採択された研究者に公開されている。

TCCON データを用いた GOSAT-2 データの検証解 析結果は、以下の通りである。Proxy 法による V01.03 の陸域観測 (2019年3~10月) に対するバイアス及 びそのバラツキは、XCH4は-3.0 ppb 及び 12.7 ppb、 XCO は 11.0 ppb 及び 8.2 ppb と算出されている。 Proxy XCH4は GOSAT full physics XCH4と同程度の データ質で、proxy XCO は初期の TROPOMI XCO と 同程度のデータ質である。一方、full physics 法によ る V01.02 の陸域観測 (2019 年 3 月) に対するバイ アス及びそのバラツキは、XCO2 は-5.98 ppm 及び 3.77 ppm、XCH₄は-33.6 ppb 及び 17.7 ppb、XCO は 13.6 ppb 及び 7.7 ppb、XH₂O は-0.63%及び 25.1%と 算出されている。Full physics V01.02 XCO₂ 及び XCH₄ が2%弱の負のバイアスとなっているが、装置関数 の差し換えと微修正された L2 アルゴリズムを用い て導出された V01.04 は、バイアスが大幅に改善され ていることがわかっており、検証解析を進めている。

更に、航空機観測で得られた CO₂ 濃度の高度分布 データをもとに計算された XCO₂ を用いた検証解析 も 試 み て い る 。 CONTRAIL (Comprehensive Observation Network for TRace gases by AIrLiner) デー タを用いた full physics XCO₂ の検証解析結果は、 TCCON データを用いた場合と同様の結果を得てい る。CONTRAIL データを用いた場合、TCCON デー タを用いた検証では容易に行えない海域観測の検証 も可能であるので、海陸の観測の違いによる GOSAT-2 データの差異の調査を行う予定である。

GOSAT-2 データの一般への公開後は、GOSAT と 同様に GOSAT-2 データの雲やエアロゾルによる影 響についても調査する計画である。

発表では、GOSAT 及び GOSAT-2 の観測結果とプ ロダクト検証の進捗状況等について報告する。

謝辞

航空機観測データを用いた GOSAT-2 full physics XCO₂の検証のために、CONTRAIL データをご提供 頂いた。CONTRAIL プロジェクトに感謝致します。

グローバル・ストックテイクに向けた人為起源 CO2 排出量 推定に貢献する衛星観測計画と大気輸送モデル開発の展望

*山下 陽介¹, 谷本 浩志¹,小田 知宏² 1 国立環境研究所, 2 USRA

1. はじめに

2015 年に国連気候変動枠組条約(United Nations Framework Convention on Climate Change: UNFCCC) 第 21 回締約国会議においてパリ協定(Paris Agreement)が採択され、すべての締約国が温室効果 ガス(greenhouse gases: GHGs)排出インベントリ (emission inventories: EIs)を提出することになった (松永・横田 2019).パリ協定の目標達成度を測る ために、国際社会全体の温暖化対策の達成度を5年

ごとに評価する仕組みとしてグローバル・ストック テイクが行われることとなり,その第1回が2023年 に,それ以降は5年毎に実施されることとなった. 参加各国は,このストックテイクを踏まえて NDC

(Nationally Determined Contribution, 自国が決定する 貢献)を定期的に更新・強化する必要がある.この ため,国別 EI を正確に求める重要性はますます高ま っている.EIの正確性を保証することは緩和策の策 定にとって重要であるが,国別 EI は報告ベースのボ トムアップ法により構築され,GHG 排出量の国別推 定値には,収集されるデータの質・量とデータ処理 技術等に違いが生じ,先進国と比較して途上国では 不確実性が大きい(Jonas et al. 2010; Oda et al. 2019). また,小規模な排出源,未知の排出源,未確認の排 出変化や途上国等の報告ベースの把握が困難な地域 における排出推計等の問題が知られている.

報告ベースで構築された国別 EI の他に研究系の EI も作成され,国別 EI の評価・検証に用いられる. 都市の人間活動を解像する最低ラインとして,水平 高解像度(約1km)・高時間分解能(1時間)が提案 されており(Ciais et al. 2015),研究系の EI プロダク ト作成の動きがある(例えば Oda et al. (2018)によ る全球の ODIAC).また,EI と大気情報から排出量 を推定するトップダウン法も用いられており,複数 の排出推定手法を相補的に適用することで,特定の 都市域では高い信頼性を確立しつつある(例えば,

Bun et al. (2019) によるポーランド領域の GESAPU 1×1km 排出量). しかしながら,作成に手間がか かるため先進国の特定の都市圏でも定期的な更新は 困難で,途上国等では作成自体が難しいため,従来 の手法に全球規模の広範囲をカバーできる高解像度 の観測手法を取り入れていく必要がある.

2. 衛星観測による排出量推定

全球的に均質かつ高精度で準リアルタイムな排出

量推定を行う手法として、現在、炭素観測衛星による排出量推定が行われており、都市圏全体や点源から排出される化石燃料由来のCO2排出量推定への利用が議論されている.しかし CO2 単独の測定では、 生物起源の影響等を受け排出量の推定を困難にしている.そこで、生物圏の影響を受けない NO2等の大気質を同時計測することで CO2排出量推定精度を向上させる GHG と大気質 (GHG-Air quality: GHG-AQ) 同時計測の試みが進められている.2023 年度打ち上 げ予定の GOSAT-GW では、GHG に加え NO2の高解 像度観測が予定されており、衛星観測ミッションを サポートし排出量推定を行うための大気化学輸送モ デルの選定と開発を進める必要がある.

3. 大気輸送モデルの展望

領域モデル WRF で CO2 輸送を扱うモデルでは, 特定の都市圏において水平高解像度(約1km)・高 時間分解能(1時間)で CO₂排出量変化の検出を実 現しているが,このモデルではNO2を扱っていない. 一方で、NO2を扱うことができる領域モデルとして WRF-CMAQ, 及び WRF-Chem が広く使われており, 将来的にはCO2輸送を扱うモデルと統合される必要 がある. 領域モデルの他に、全球モデルの利用可能 性も検討した.全球一様の高解像度計算は、最先端 の計算機を用いても挑戦的な課題である.一方,全 球モデル NICAM ではストレッチグリッドが利用可 能で、特定の都市圏のみを局所高解像度化すること ができる.NICAM においても CO2 輸送を扱うモデ ルとNO2の化学反応を扱うモデルの統合は課題であ るが、ストレッチグリッドを用いれば現実的な計算 コストで排出量推定に利用できる可能性が高い.こ のように、将来の GHG-AQ 同時計測を行う衛星観測 ミッションをサポートするモデルとして、領域モデ ルの他にストレッチグリッドの全球モデルの利用可 能性がある.

4. まとめ

将来の衛星観測ミッションにおける GHG-AQ 同時 計測をサポートする大気輸送モデルの展望について レビューした.現状の領域モデル,全球モデル共に CO2輸送を扱うモデルと NO2を扱うモデルを統合す る必要があるものの,領域モデルの他にストレッチ グリッドの全球モデルがあり,それぞれの特性を生 かせる用途に利用していくことが望ましい.

福岡都市圏での2地点同時 MAX-DOAS 観測による TROPOMI 対流圏 NO2データの検証

*植木洗亘¹,高島久洋²,Martina M. Friedrich³ 1 福岡大院理,2 福岡大理,3 ベルギー宇宙航空研究所

1. はじめに

窒素酸化物 (NOx = NO + NO₂) は対流圏内の大気 質にとって重要な微量ガスの一つであり、衛星観測 をはじめ、様々なリモートセンシング観測によって 行われてきた。対流圏内の微量ガスを観測するリモ ートセンシング観測手法の 1 つである MAX-DOAS (Multi Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy) は地表付近の NO₂に強い感度を持ち、 日中の連続的な鉛直分布測定が可能である。都市域 において NOx は、排出源の空間的複雑さと NOx の 短寿命性によって、不均質に分布することが知られ ている (e.g., Martin et al., 2006)。

我々は、都市域の NO₂の空間不均質性を明らかに するため、福岡市内の 2 地点で同時に MAX-DOAS 観測を行っている。2 地点間の MAX-DOAS は約 4.5 km 離れた地点に設置し、(3.5~7.0 km ×7.0 km)の空 間分解能を持つ人工衛星 Sentinel 5-Precursor に搭載 された TROPospheric Ozone Monitoring Instrument (TROPOMI) データのピクセル毎の検証に利用でき る。今回は、約1年間分の2 地点 MAX-DOAS デー タを使った、TROPOMIの対流圏 NO₂の比較検証結 果について示す。

2. 観測·解析

MAX-DOAS 観測は福岡市内の福岡大学 (33.55°N, 130.36°E)、祖原 (33.58°N, 130.35°E) の2地点で行っ た (図 1)。福岡大学は都市中心部の南西側から都市 中心部方向を観測し、祖原では都市部の中から海方 向を観測した。両地点において NO2の鉛直分布及び NO2 Vertical Column Density (NO2VCD)を時間分解能 4 分で観測した。今回、福岡大学における MAX-DOAS は 2019 年 6 月~2020 年 6 月、祖原における MAX-DOAS は 2020 年 3 月~2020 年 6 月までの期 間のデータを解析に使用し、福岡上空を TROPOMI が通過する時間の±15 分 NO2VCD 平均値を比較に用 いた。また、TROPOMI によって観測された NO2VCD は、緯度 33.55°~33.65°、経度 130.34°~130.44°の範 囲を比較対象に用いた。

3. 結果·考察

福岡大学における MAX-DOAS で観測された1年 間分の NO₂VCD と TROPOMI の NO₂VCD を比較す ると、TROPOMI には平均して約4割程度の負のバ イアスが確認された(図2)。先行研究においても TROPOMI の NO₂VCD には、25~50%負のバイアス があることが報告されている (e.g., Kanaya et al., 2014; Compermolle et al., 2018)。また、TROPOMIの NO₂VCD を 2 地点の MAX-DOAS の NO₂VCD と比 較した結果、祖原と比べた場合より、福岡大学と比 べた場合の方が負のバイアスが大きい傾向がみられ た。本発表では、2 地点同時 MAX-DOAS と TROPOMI の比較検証から得られた、衛星観測の負のバイアス を引き起こす要因について報告する予定である。



130.3130.4130.5図1MAX-DOAS 観測は福岡市内の福岡大学、祖原の2地点で行った。矢印は MAX-DOAS の観測方位、濃淡は海抜高度 [m] を示す。



図 2 2019 年 6 月から 2020 年 5 月の期間に福岡大 学の MAX-DOAS と TROPOMI によって観測された 対流圏 NO₂VCD [10¹⁵ molecule/cm²] の散布図。

【謝辞】本研究はベルギー宇宙航空研究所の QDOAS (Danckaert et al., 2013)ソフトウェアを使用し ました。TROPOMIのNO2データは、KNMI(Koninklijk Nederlands Meteorologisch Institute) Level 2 データを 使用しました。

光吸収のエアロゾル光学的厚さに及ぼすブラックカーボン とブラウンカーボンの寄与率の定量的評価: 千葉でのスカイラジオメーターによる長期観測より *山口航大¹,入江仁士¹, Alessandro Damiani¹

1日机入¹,入江仁士¹, Alessandro Damian 1千葉大学

研究の背景

将来の気候変動の予測において、エアロゾルは最 大の不確実性をもたらしている(IPCC, 2013)。その 不確実性を低減させるためには、エアロゾルの光学 特性の理解が不可欠である。主要なエアロゾルのひ とつである有機エアロゾルは光吸収が弱く、その放 射強制力はほとんどの気候モデルで負とされてきた。 しかしながら、近年の室内実験や観測から、特に紫 外から可視域において強い光吸収性を有すブラウン カーボン(BC)があることが確認され、ブラックカ ーボン(BC)以外の正の放射強制力に寄与するエア ロゾルとして注目されている。

2. 研究の目的

光吸収のエアロゾル光学的厚さ(AAOD)に及ぼ すBCとBrCの寄与率を実大気の長期観測データか ら定量的に評価する。

3. 使用データ

SKYNET の千葉の観測サイト (35.625°N, 140.104 °E) における、我々のアルゴリズムパッケージ SR-CEReS (Mok et al., 2018) によってリトリーバルされ たスカイラジオメーターのデータ (340-870 nm, 6 波 長)を用いた。期間は観測を始めた 2005 年 9 月から 最新の 2020 年 8 月までの約 15 年間で、その内の、 欠損している期間(2013 年 1 月~4 月、2014 年 7 月) や検定定数の誤差が比較的大きく信頼度の低い期間 (2015 年 7 月~9 月、2018 年 8 月) は除いて解析を

(2015年7月~9月、2018年8月)は除いて解析を 行った。

4. 解析方法

BC が示すと考えられる光学特性(例えば、複素屈 折率の虚部の波長依存性が有意ではないなど)を考 慮して、BC 卓越環境下のデータを抽出するための



図1: AAOD_{BC}、AAOD_{BrC}の導出の概念図

条件(BC Conditions)を作成した。15年間のスカイ ラジオメーターからこの BC Conditions を満たすデ ータを抽出し、BC の AAE を求めた(AAE_{BC})。この AAE_{BC} を用いて、各観測で得られた AAOD から AAOD_{BC}を推定した。さらに全体の AAOD からこの AAOD_{BC}を引くことで AAOD_{Brc}を導出し、BC と BrC の光吸収の割合を求めた。

5. 結果

BC Conditions で抽出したデータから求めた AAE の平均値は 1.117 ± 0.134 (=AAE_{BC}) であった。この AAE_{BC} を用いて、算出した AAOD_{BC} (550 nm) と AAOD_{BC} (550 nm) の割合の結果を図 2 に示す。図 2 で示してある結果は 15 年間の平均した割合と考え られる。ここでの Mean、Max、Min はそれぞれ AAE_{BC} の誤差を考慮した AAE_{BC}=1.117、AAE_{BC}=1.251、 AAE_{BC}=0.983 の時の結果を表している。これらの結 果から、AAOD (550 nm) における BC の寄与は 88.2~91.4%、BrC の寄与は 8.6~11.8%と推定された。 また、AAE_{BC}の誤差を考慮しても AAOD (550 nm) における比率の変動幅は 3.2%以内で収まることが 分かった。



図 2: AAOD_{BC} と AAOD_{BrC}の割合 (550 nm)

この結果は同地点の別の観測機器・手法で求めら れた結果 (AAOD_{BC}: AAOD_{BrC}=92.3:7.7,550 nm, Cho et al., 2019) とも近い値を示しており、本研究の結果 を支持した。本研究ではさらに、より短波長側の AAOD (340 nm) では BC の寄与は 72.2~80.1%、BrC の寄与は 19.9~27.8%と推定され、エアロゾルにおけ る光吸収の寄与率において BrC は無視できない値で あることが分かった。

つくばにおける CO 高度分布観測による発生源の推定

*鈴木大将¹,中島英彰^{2,1},村田功¹,森野勇² 1 東北大学大学院環境科学研究科,2国立環境研究所

1. はじめに

-酸化炭素 (CO) は主に化石燃料の燃焼やバイオ マス燃焼、炭化水素の酸化によって生成される. CO は対流圏オゾン発生の前駆物質であるとともに, OH ラジカルとの反応によって様々な大気微量成分の存 在量に影響を与えるため大気化学において極めて重 要な物質である.大気中では数週間~2ヶ月程度の 寿命を持ち、その存在量や発生源には地域的な偏り がある.近年 CO の全球的な濃度変化に大きな影響 を与えているアジア地域ではより正確な変動の理解 が必要であり、日本での観測はアジア地域の CO の 理解に貢献できる.つくば (36.05°N, 140.12°E) では、 2001 年 5 月から高分解能フーリエ変換赤外分光計 (FTIR) による大気微量成分の観測を行っている. FTIR はその高波数分解能(0.0035cm⁻¹)を生かし, 観測した吸収スペクトルの線形から存在量の高度分 布のリトリーバルが可能である.本研究では、つく ば上空の CO の発生源および発生地域を明らかにす ることを目的として, CO およびシアン化水素 (HCN)

の高度分布を用いた CO 発生源の推定を行った.大 気中の HCN は数年程度の寿命を持ち、主にバイオ マス燃焼によって生成される.本解析において HCN をバイオマス燃焼のプロキシとして用いた.

2. データと解析手法

2010 年 4 月-2019 年 5 月の期間について, つく ばの FTIR 観測スペクトルによる CO および HCN の 高度分布の導出を行った. 観測スペクトルの解析に はロジャーズの最適推定法(Rodgers, 2000)を基に 開発されたインバージョン解析プログラム"SFIT4" を使用した.また同期間について, CO, HCN 高度分 布の相関解析, 火災データ, 粒跡線解析を用いて, つくば上空の CO の発生源および発生地域の推定を 行った.発生地域の推定には人工衛星 Terra/Aqua 搭 載の MODIS センサによる火災データと環境研 METEX による後方粒跡線解析の結果を使用した.

3. 解析結果

リトリーバルで得られた CO の高度分布ついて高 度 0-5km, 5-18km の二層に分解し,同じ日時,高度 に対応する HCN 気柱量との相関解析を行った.解 析の結果、春季および秋季の CO と HCN の気柱量 において、高度 5-18km におけるそれぞれの値の間 に有意な相関関係が確認された (図 1).また高度 0-5km においては有意な相関関係が認められなかった. 相関解析から得られた CO/HCN 比から,高度 5-18km 春季および秋季の気柱量について,大気中の CO 気 柱量 (total-CO) におけるバイオマス燃焼起源 CO の 存在量の割合を求めた.高度 5-18km の 3-5 月および 9-11 月においてバイオマス燃焼起源の CO (biomass-CO) の割合はそれぞれ平均で 54%, 52% 程度であ ると推測される (図 2).火災データと後方粒跡線解 析の結果,有意な相関関係が見られた春季および 秋季において,中国北東部のバイオマス燃焼起源の CO である可能性が示された (図 3).



図1 秋季 (9,10,11 月) 高度 5-18km における CO 気柱全量 (月平均) と HCN 気柱全量 (月平均) の相関関係



図 2 秋季 (9,10,11 月) 高度 5-18km における total-CO と biomass-CO の存在量



図 3 2015 年 10 月における火災データ と後方粒跡 線 (5days, 起点: 2000m, 36.05°N, 140.12°E)

超伝導サブミリ波リム放射サウンダ(SMILES)の広範囲観測 による塩化水素の鉛直分布プロファイルの妥当性検証

*奈良誠大^{1,2}, 佐藤知紘¹, 山田崇貴², 久野成夫², 笠井康子^{1,2} 1 情報通信研究機構, 2 筑波大学

1 背景・目的

大気中の無機塩素化合物は80%以上が人為起源で あり、オゾン層破壊の一因であることから継続的な 観測が行われている。その中でも塩化水素(HCl)は成 層圏中で全体の95%の占め、リザーバーとしての役 割を担う。衛星観測に基づいた HCl の全球スケール での研究が盛んに行われている一方、絶対量の少な さに起因する観測の困難さから、中間圏から熱圏下 部では観測に基づいた研究例は報告されていない。

国際宇宙ステーション搭載超伝導サブミリ波リム 放射サウンダ(SMILES)は、超伝導ミキサを受信シス テムに用いることで、従来の同種測器よりも 10~20 倍低ノイズのスペクトルを受信した。これにより、 初めて中間圏以上で塩素化合物の検出に成功してい る[Sato et al., 2012]。本研究では、HCIの振る舞いに ついて、下部成層圏から下部熱圏までの広範囲を包 括的に議論するため、SMILES 観測によって導出さ れた HCI の鉛直分布を他の観測やモデルと比較し、 観測値の妥当性を検証する。

2 方法

2.1 先行研究との比較

SMILES L2 研究プロダクト v3.0.0 の HCl データ を、高度 20-60 km の高度領域で検証が十分実施さ れている Aura 衛星搭載 Microwave Limb Sounder (MLS)と SCISAT-1 衛星搭載 Atmospheric Chemistry Experiment - Fourier Transform Spectrometer (ACE-FTS) による観測値、及び気候モデル Whole Atmosphere Community Climate Model (WACCM)によ る計算値と比較を行った。

2.2 誤差解析

SMILES では、最大事後確率推定法により、観測 スペクトルとフォワードモデルによる疑似スペクト ルを比較することで、最も確からしい HCI 高度分布 を推定する[Baron et al., 2011]。この際に使用したパ ラメータの誤差によって存在量にも系統誤差が生じ る。そこで実際に使用したパラメータの値と予想誤 差分だけ増加させた値、各々の条件値で推定された 存在量の差分を求めることで、SMILES による HCI 存在量データ中の系統的な誤差を定量的に評価した。

3 結果・考察: 先行研究との比較

気候モデル WACCM との比較を行った結果、どの 緯度・高度範囲でも HCl の分布は定性的に再現され ており、特に高度 80 km 以上では HCl の紫外光によ る光分解(HCl+h ν (λ <220 nm)→H+Cl)によって高度 の上昇とともに存在量の減少を確認した。一方で定 量的には高度 70 km 以 上で SMILES による観 測値が徐々に過大に なる傾向が見られた。

また他観測との比 較では、高度 40 km 付 近までは 1 σ 以内で一 致している一方、40 – 60 km では 徐々に SMILES の観測値が過 小になる傾向が見ら れた(図1)。この他観測 値とのバイアスは緯 度・時期に依存しない



ことから系統的なものと考え、誤差解析によって原 因の特定を試みた。

4 結果・考察

解析の結果、支配的 となってくる誤差は、 高度 30 km 以下では圧 力幅係数(γ_{air})とその 温度係数(n_{air})及び輝 線強度、30 – 60 km で は圧力幅係数、高度 60 km 以上では分光計 (AOS)に由来した誤差 であることを確認し た(図 2)。高度 80 km 付 近での HCl の観測値は 3.0 ppbv 程度であり、



これは最大 0.4ppbv の系統誤差よりも有意に大きかった。SMILES により、中間圏及び熱圏下部における HCl の振る舞いを始めて観測により示した。

また、ACE-FTS と MLS が導出する HC1存在量 との差が高度 50-60 km で大きくなる原因として、 存在量推定時にパラメータとして用いている温度プ ロファイルの値の差異が 0.1-0.2ppbv 程度寄与して いることを明らかにした。

5 結論

以上より、SMILES の HCl の観測値は、温度プロ ファイルと圧力幅係数のパラメータの値によって過 小評価されている可能性があると結論付けた。

本発表では他研究との間に見えた共通点と相違点 の詳細、誤差解析によって得られたプロファイルの 特性の詳細、今後の課題等について発表を行う。

CHASER(MIROC-ESM)における 雲の対流圏光化学場への影響

*松田涼樹¹,須藤健悟^{1,2}

1名古屋大学大学院環境学研究科,2海洋研究開発機構

1. はじめに

大気中の化学反応は、オゾン(O₃)やメタン(CH₄)、 窒素酸化物(NO_x)、硫黄酸化物(SO_x)やエアロゾ ルの生成・消滅に直接関与し、大気環境や気候変動 に与える影響も大きい。このような大気化学反応は O₃等の紫外線による光解離反応によって駆動され るため、雲分布に大きく左右されると考えられる。 本研究では主に対流圏の大気化学場に対して、雲が 光解離過程を介してどのような役割を演じているか、 全球化学輸送モデル(化学気候モデル CHASER)と 観測(衛星・航空機)データ、再解析データを組み 合わせることで、定量的な推定・検証を行った。

方法

雲による対流圏光化学場への影響を推定する前段 階として、モデル中の雲の再現性について、衛星観 測データや再解析データを用いて検証を行った。モ デルの雲分布の検証には、CALIPSO-GOCCP や ISCCPのD2データ、JRA-55など、複数のデータセ ットを用いた。この際、総雲量だけでなく上・中・ 下層雲量のそれぞれについても検証を行った。また、 モデルの雲の放射強制力についてもJRA-55や CERESのデータを用いて検証を行った。

次に CHASER による感度実験により、光解離過程 に対する雲の放射影響を検証した。その後、NASA に よって行われた航空機による広域大気化学観測のデ ータ(ATom-1,2,3,4)を用いて、モデル中の雲に対 する大気化学場の応答を検証した。

3. 結果·考察

雲が存在する環境下において、モデルは衛星観測 データや再解析データに見られる総雲量や雲の放射 強制力の全球分布を概ね良く再現していることが確 認された。しかし、下層雲量については、高緯度域 で過大評価する傾向がみられた。

モデル中で雲の光解離定数への影響を考慮する、 またはしない2種類の感度実験の結果、雲の存在は OH ラジカル濃度を全球平均で地表面付近では約 5%減少させるとともに、上空では約 15%増加させ ることが示された(図1)。これは主に低中層雲によ る太陽光の散乱・反射効果を反映した結果と考えら れ、先行研究とも整合的である。大気の酸化能力の 指標でもある全球平均 OH 濃度は、雲の存在により 約 17%増加することが示された。この OH 濃度の増 加傾向には、雲の放射影響だけでなく、一部は CH4 の減少によるフィードバックを含んでいる可能性が ある。また、対流圏 O₃濃度は全球平均で地表面付近 では約3%減少し、上空では約0.5%増加した。これ らの変動の要因についてはNO_xやOH濃度の変動を 踏まえ、検証を行っている。

航空機観測データを用いた検証では、モデルにおいて雲が適切に考慮された方が、より正確にモデルが観測された OH や O3 濃度を再現することが示された。また、モデルは衛星観測と整合的な雲場を示す領域の方が、雲に対する応答が OH 濃度では約 2%、O3 濃度では約 8%拡大することが示された。

以上より、雲の存在による光解離過程への影響は 全球大気化学場、特にOH濃度場を大きく左右する ことが定量的に示された。OHはCH4や一酸化炭素 (CO)、CFCs等、気候やオゾン層に影響を及ぼす重 要物質の濃度を支配しているため、雲分布の変動が これらの物質分布を大きく変化させ、気候・大気環 境変動に付加的な影響を及ぼす可能性が本研究結果 から示唆される。

現在、最新版の MIROC によって計算された予報 型の雲シミュレーション結果を、CHASER モデルに ナッジングする実験も実施中であり、気候モデル中 の雲表現の違いが大気化学場にどの程度の影響をも たらすのか検証を行っている。この結果についても 発表時に議論したい。

4. 謝辞

本計算の一部は、国立環境研究所が保有するスー パーコンピュータ (NEC SX-Aurora TSUBASA)を用 いて行われました。



対流圏一酸化窒素の窒素及び三酸素同位体組成の定量

*平野一哉¹,角皆潤¹,中川書子¹,伊藤昌稚¹

1名古屋大学大学院環境学研究科

1. 背景·目的

大気中に排出された一酸化窒素(NO)は、大気中 のオゾン(O₃)やヒドロペルオキシルラジカル(HO₂)、 有機過酸化ラジカル(RO₂)などと反応して二酸化窒 素(NO₂)となり、さらに硝酸(HNO₃)に酸化され 地表に沈着する。ただし、NO₂は紫外線を受けると 光解離して NO を再生成するため、NO-NO₂間には いわゆる NO_x循環が成立することがある(図 1)。

この NO₂ の光解離反応は、対流圏 O₃ を生成する 重要な反応である。NO+O₃ 反応によって生成した NO₂ が光解離する場合は正味の O₃ 生成はゼロとな るが、NO+HO₂/RO₂ 反応によって生成した NO₂ が光 解離する場合、正味の O₃ 生成となる。従って、各大 気環境下における、①全 NO に占める NO₂ 由来の NO の混合比、②全 NO₂ に占める NO+HO₂/RO₂ 反応由来 の NO₂ の混合比、の定量化は極めて重要である。

そこで本研究は、NO 及び NO2の窒素安定同位体 比(δ¹⁵N値)と酸素安定同位体比、特に三酸素同位 体異常 (Δ^{17} O 値) に着目した。 Δ^{17} O 値とは酸素同位 体分別の影響を補正した指標で、Δ¹⁷O(NO₂)値は NO から NO2 へ至る反応経路上で加わった O3 由来の O 原子数を直接反映する。したがって、共存する NO の Δ^{17} O 値も同時に定量することで、 Δ^{17} O(NO₂)値か ら①及び②を見積もることができる。また、NOから のNO2生成反応が不可逆反応であった場合は、動的 同位体効果によって $\delta^{15}N(NO) \ge \delta^{15}N(NO_2)$ となる のに対して、NO_x循環が活発化し、NO_x間で窒素同 位体交換反応平衡が成立すると、δ¹⁵N(NO) < $\delta^{15}N(NO_2)$ となることが知られており (Frever et al., 1991; Freyer et al., 1993)、両者間の δ¹⁵N 値の差 α (=(δ¹⁵N(NO₂)+1)/(δ¹⁵N(NO)+1))から、各大気環境下 における NO_x循環を推定できる。しかし、過去に報 告された NO の δ¹⁵N 値は NO₂の δ¹⁵N 値の日変化か ら推定されたものであり(Freyer et al., 1991)、さら に Δ¹⁷O 値は定量法が未開発であったため、いずれも 実測値が存在しなかった。

そこで本研究では、NO 及び NO₂の δ^{15} N 値と Δ^{17} O 値の同時定量法を開発し、都市大気中における NO_x 循環の解明に挑戦した。

2. **方法**

まず、NO₂を多段 Triethanolamine (TEA) 含浸フィ ルター上に捕集して 90%以上を除去した上で、NO を 残 っ た NO₂ と と も に 2-Phenyl-4,4,5,5tetramethylimidazoline-3-oxide-1-oxyl (PTIO) 及び TEA 含浸フィルター上に NO₂ として捕集し、純水に 抽出した。抽出した NO 及び NO₂ 由来の NO₂-はアジ 化水素と反応させて N_2O に変換し、質量分析計に導入して $\delta^{15}N$ 値を定量した。さらに、 N_2O を熱分解に よって O_2 に変換した上で質量分析計に導入して Δ^{17O} 値を定量した。

3. 結果·考察

フィルター上に捕集した NO 及び NO₂の同位体比 は、捕集時の同位体分別やブランクとの混合の影響 を受けることが明らかとなった。そこで、多段フィ ルター上の NO_x捕集過程をモデル化し、それを実測 値に適用することで NO 及び NO₂の同位体比の真値 を求めた。

2020年4月及び5月に名古屋大学構内で実施した 二回の測定において、NOに比べてNO₂が有意に高 い δ^{15} N値(α >1)を示し、NO_x循環が活発に進行し ていることが明らかとなった。しかし、両者の δ^{15} N 値から算出したNO_x間の窒素同位体分別(α)は、い ずれも同位体交換平衡より有意に低い値を示した (図 2)。これは、昼夜連続で試料を捕集したことで、 高い δ^{15} N値を示す夜間(NO-NO₂間が不可逆)の NOが、捕集された NOの大部分を占めたことが原 因である可能性が高い。

今後は Δ^{17} O 値の解析を進め、NO_x間の各酸化反応 の寄与率、及び全 NO に占める直接排出由来の NO と、NO₂由来の NO との混合比を算出する。さらに、 昼夜を分けて捕集を行い、NO_x間の反応の日変化に ついて評価する。



図1 窒素酸化物の光化学反応系とΔ¹⁷O値



航空機排ガス中の不揮発性ナノ粒子の粒径分布

*竹川 暢之¹,村島 淑子²,伏見 暁洋³,三澤 健太郎¹,藤谷 雄二³, 齊藤 勝美^{3,4},桜井 博²

1 東京都立大学,2 産業技術総合研究所,3 国立環境研究所,4 イサラ研究所

1. 背景

航空機排ガスは、地上から上空に至るまで幅広い 領域に粒子を直接供給し、各領域において複雑な影 響を及ぼす (Masiol and Harrison, 2014)。気候影響に おける第一義的な重要性は、上空で排出される煤 (BC)からの飛行機雲・巻雲 (contrail cirrus)の生成 である (Kärcher, 1999)。また、モデル計算では航空 機排ガスがエアロゾル粒子数へ大きな影響を及ぼす ことが示されている (Righi et al., 2016)。一方、地表 付近では空港周辺への健康影響が懸念されている。 特に、不溶性ナノ粒子は血中に移行し循環器系に影 響を与えることが示唆されているが、不確実な部分 が多い (Oberdörster et al., 2005)。

航空機排気粒子の主要部分は超微小粒子 (UFPs: 100 nm 以下) にある。数濃度では粒径 10 nm 付近に 多く存在することが特徴である。エンジンテストセ ルにおける排ガス測定法は SAE 規格で定められて おり (SAE, 2018)、350℃加熱と触媒除去装置 (CS) で揮発性粒子を除去した後に、不揮発性粒子数濃度 を測定する。ただし、長いサンプリング配管中にお ける粒径 10 nm 付近の粒子損失が大きく、さらに粒 径 20 nm 程度以下では粒径分布測定自体の難しさも ある (Wiedensohler et al., 2012)。このため、粒径 10 nm 付近の排出特性については不確実性が大きい。

我々は、2018 年 2 月に成田国際空港の A 滑走路 近傍で集中観測を実施した (Fushimi et al., 2019; Takegawa et al., 2020b)。2019 年の大気化学討論会で は集中観測の概要について発表した。本発表では、 粒径 10 nm 以下の不揮発性粒子について発表する。

2. データ

本研究では、エアロゾル粒子数濃度 (TSI 社 UCPC・CPC)、粒子数粒径分布 (TSI 社 EEPS・SMPS)、 CO₂ (LICOR 社 LI-840) のデータを用いた。UCPC と CPC は航空機搭載観測用のシステム (Takegawa et al., 2020a) を改良したものである。以下では、粒径 2.5 nm 以上の粒子数濃度を $N_{2.5}$ 、粒径 10 nm 以上の粒子 数濃度を N_{10} とする。UCPC、CPC、SMPS の上流に 希釈器および加熱管を設置し、非加熱と 350°C加熱 を切り替えた。これにより、総粒子の $N_{2.5}$ と N_{10} 、不 揮発性粒子の $N_{2.5}$ と N_{10} の定量を行った。

本研究で用いた加熱管は単純な SUS 管であり、拡 散損失を低減するためにデニューダや CS は用いて いない。このため、加熱に伴う核生成の有無や揮発 性粒子の除去効率について詳細な検討を行った。核 生成については、本観測条件では排ガス plume は十 分に希釈されており、理論計算によれば核生成の影 響は無視できると推定される。除去効率については、 産総研において SAE 規格と同じテトラコンタン (C40H82) 粒子を発生させて試験を行い、SAE 規格と 同等の性能であることが確認された。

3. 結果·考察

図1は2018年2月15日にEEPS(非加熱)および 加熱SMPSで同時測定された不揮発性粒子の粒径分 布の例である。まず、EEPSと加熱SMPSに大きな 差があることから、航空機排ガス粒子のほとんどが 揮発性粒子であることが分かる。この点は先行研究 と整合的である。一方、従来の研究では不揮発性粒 子のモード粒径は20-60 nmに見られ、いわゆる soot mode として明確に現れていた。しかしながら、本研 究ではそれとは全く異なる分布を呈しており、粒径 10 nm 程度以下にモード径が存在する可能性が示唆 された。発表では、先行研究との類似性と相違点に ついて詳しく議論する。



図1 2018年2月15日に EEPS (非加熱)および加熱 SMPS で同 時測定された不揮発性粒子の粒径分布の例。

謝辞:本研究は環境研究総合推進費 (5-1709) により行われました。また、成田国際空港株式会社 (NAA)、成田国際空港振興協会 (NPF)、宇宙航空研究開発機構 (JAXA) のご協力を頂きました。

参考文献

- Fushimi, A., Saitoh, K., Fujitani, Y., and Takegawa, N., Atmos. Chem. Phys., 19, 6389-6399, 2019.
- Kärcher, B., Surveys in Geophysics, 20, 113-167, 1999.
- Masiol, M., and Harrison, R. M., Atmos. Environ., 95, 409-455, 2014.
- Oberdörster, G., Oberdörster, E., and Oberdörster, J., Environ. Health Perspect., 113, 823-839, 2005.
- Righi, M., Hendricks, J., and Sausen, R., Atmos. Chem. Phys., 16, 4481-4495, 2016.
- Society of Automotive Engineers, 2018, https://saemobilus.sae.org/ content/ARP6320/#scope.
- Takegawa, N., et al., J. Geophys. Res. Atmos., 10.1029/ 2019JD031448, 2020a.
- Takegawa, N., Murashima, Y., Fushimi, A., Misawa, K., Fujitani, Y., Saitoh, K., and Sakurai, H., *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, https://doi.org/10.5194/acp-2020-395, 2020b (under review for ACP).
- Wiedensohler, A., et al., Atmos. Meas. Tech., 5, 657-685, 2012.

新型コロナ流行・経済活動低下時の福江島での大気ブラッ クカーボン濃度応答:中国での家庭起源排出割合の評価

*金谷有剛¹,山地一代^{2,1},宮川拓真¹,竹谷文一¹,Yongjoo Choi¹,朱春茂¹,近藤豊³, 宮崎和幸^{4,1},Zbigniew Klimont⁵,山田大地⁶,成田大樹⁶,池田恒平⁷,谷本浩志⁷ 1海洋研究開発機構,2神戸大学,3国立極地研究所,4NASA JPL, 5国際応用システム分析研究所(IIASA),6東京大学,7国立環境研究所

1. はじめに

ブラックカーボン(BC)粒子は、人間活動による化 石燃料等の燃焼や森林火災等によって大気中に放出 される。太陽光の直接吸収や沈着後の雪氷面反射率 低下を引き起こすため、BC 濃度・排出の増加は地球 温暖化を引き起こす一要因と考えられている。中国 からの BC 排出量は世界の人為的排出の 30%にも上 るとされてきたが、大気輸送の風下域に位置する長 崎県・福江島での観測を用いた解析から、2009年以 降の10年間で約4割もの減少を遂げ、現在では各 種インベントリ推計値のばらつきの範囲の下限値に 近いことを我々は前報で明らかにした(Kanaya et al., 2020)。しかしながら減少後の中国からの排出量は、 人口当たりで比較した場合、日本の3倍程度と依然 として高く、さらなる排出削減を検討すべき状況に ある。その際、今後の対策を有効なものとするため には、主な排出部門が家庭起源なのか、産業・輸送 起源なのかに関する確かな情報が鍵となる。しかし ながら、社会経済情報に基づく各種排出インベント リでも、家庭起源割合に関しては20-60%と大きな不 確定性があり、検証はなされてこなかった。2020年 2-3月、新型コロナの流行により、予期せぬ形で中国 での経済活動低下が起こった。その際、産業・輸送 部門からの排出が大幅低下する一方、家庭部門から の排出は維持されていたと考えられた(Forster et al., 2020)。我々はこの期間の福江島での観測データを利 用して、家庭起源排出割合を評価した。

2. 方法

福江島大気環境観測施設(32.75°N, 128.68°E)にお いて 2009 年から継続して取得している BC (Thermo MAAP, Kanomax BCM の二種の機器からのデータを 統合したもの)、一酸化炭素(以降 CO, Thermo, 48C) 観測データを解析した。その際、中国本土の海岸線 を経て福江に直接流入した気塊を計測した時間で、 風上での湿性除去の影響が無視できるデータのみを 選択し、2020 年と 2019 年の 2-3 月を対比した。東 アジア地域大気化学輸送モデル WRF/CMAQ を、気 象場の時間ごと~年々変動の影響を補正するために 用い、排出量変化の影響度を 1 時間毎の観測/モデル 濃度比の統計から推定した。そのために、モデルシ ミュレーションでは排出量を敢えて 2008 年 REASv2.1 の値(以降基準排出量と呼ぶ)に固定した。

3. 結果と考察

2019年2-3月、2020年2-3月の該当データでの観 測/モデル比の中央値は、BCでは0.53±0.05,0.44±0.09 と算出され、これらの補正係数を基準排出量に乗じ ればそれぞれの年で観測された BC 濃度をモデルが 再現しうることがわかった。2020年の2019年に対 する比は 0.82±0.18 となり、この 18%の減少分が家 庭以外の部門(産業・輸送部門など)からの排出量 減少に結び付けられるものと考えた。なお、家庭以 外部門のこの時期の活動は全停止したわけではなく、 その活動低下度が50%程度と見積もられているため (Forster et al., 2020)、18%の2倍の36%が2019年に は家庭以外部門から排出されていたものと推定し、 残りの 64±35%が家庭部門からの排出であると算出 した。このことから、直近の平時において、中国で の BC 排出の主な排出部門は家庭起源であることが 結論づけられた。公表されているインベントリの中 では、ECLIPSEv6b(2015年)が家庭部門寄与を 63%と 推定しており、22%と見積もっている EDGAR5.0(2015 年)より実態を正しく反映している ことが示唆された。

同様の解析を Δ CO (ベースライン濃度差し引き後。 モデルも同様)にも適用したところ、2020年の 2019 年に対する排出比は 0.65±0.07 となり、コロナ流行 時に BC の場合の 2 倍近い、35%もの排出量低下が あったことが推定された。また、同様の考察から、 家庭以外部門の寄与が 70%と大きいことがわかった。 BC よりも CO で家庭以外部門寄与が大きい傾向は REASv3.1(2015年), MEICv1.3(2017年), ECLIPSEv6b(2015年)、CEDS(2014年)とも整合的で あったが、両化学種での家庭以外部門寄与が同程度 としている EDGAR5.0(2015年)では修正が必要であ ると考えられた。

以上により、さらなる中国からの BC 排出削減には 家庭起源 BC を対象とすることが有効であることが 示された。同部門における限界削減費用を評価した 経済分析結果についても発表では触れる予定である。

引用文献

Forster, P. M. et al., Nature Climate Change, (2020). https://doi.org/10.1038/s41558-020-0883-0

Kanaya, Y. et al., Atmos. Chem. Phys., (2020). https://doi.org/10.5194/acp-20-6339-2020, 2020.

小型で安価な大気計測装置の開発とインド北部の稲藁燃焼が 現地やデリーの大気質・健康へ及ぼす影響解明の計画

*松見豊⁻¹,林田佐智子^{2,3},中山智喜⁴,荒木晶²,上田佳代⁵, Prabir Patra⁶,須藤重人⁷及び 総合地球環境学研究所 Aakash プロジェクトの日本・インドのチームメンバー

1名古屋大,2総合地球環境研,3 奈良女子大,4長崎大,5京都大,6 JAMSTEC,7 農研機構

1. 緒言

総合地球環境学研究所 (RIHN) にて「大気浄化、公 衆衛生および持続可能な農業を目指す学際研究:北 インドの藁焼きの事例(略称 Aakash)」というプロ ジェクト(リーダー:林田)が2020年4月より正式 に開始された [1]。インド北西部に位置するパンジ ャーブ州およびハリヤーナー州において、10-11月に 行われる稲藁収穫後の大規模な野焼きによって発生 する大気粒子・ガスにより、周辺地域やデリー首都 圏では深刻な大気汚染が引き起こされている。この 問題解決のため、以下の3つの方向で取り組む。

1) 大気汚染物質の発生場所・量・移流を解明する。 科学的知見で人びとに藁焼きの影響の自覚を促す。

2) 大気汚染と健康の関連の調査や健康教室を通して、健康への意識を変革する。

3) 稲藁を焼かない有効利用法を、文化的社会的背景 を見ながら、農村での実験を通して提案する。

1)2)のアプローチでは、科学的で綿密な大気計測 が不可欠である。ローコスト(< \$1,000)でかつ精度 の高い計測装置をインド北部からデリーまで地域に 多数設置して大気汚染物質の移動と変質の動態解明 を行う(図1参照)。さらにコンパクトな携帯型の計 測器を多数の住民に装着してもらって大気汚染物質 の個人暴露量と健康状態の関連を解明することを計 画している。そのため、現地や人々の状況に合わせ た機能を有する小型計測装置を独自に開発して、現 地で活用する準備を進めている。コロナで往来が不



自由な状況下で、インド側メンバーに設置・計測してもらうため、インドへの輸送を準備している。

2. 固定型の小型大気計測装置

名古屋大学とパナソニック(株)で独自に開発した高精 度な PM2.5 センサを使用している [2]。図 2 に固定型 の大気計測装置の内部を示す。ラズベリーパイ CPU で制御・記録している。リアルタイムの小型表示器 があるが、外部に液晶モニタを HDMI ケーブルでつ なげば、グラフ表示が見れる。また、電源が無いと ころでも 50 cm角の太陽光発電パネルで、24 時間 1 年間欠損なく計測ができている。

3. 個人曝露量測定用の計測器

コンパクトな PM2.5 センサを胸に取り付け、携帯電 池で 24 時間以上作動する装置を開発している。



図 2 開発した固定型大気計測器。PM2.5 センサを搭載。また電気化学ガスセンサ(NO, NO₂, CO, Ox など), CO₂センサの搭載も可能。



図 3 各所に設置予定の固定型大気計測装 置外観。データは携帯電話回線で毎日転送。

[1] 総合地球環境学研究所 Aakash プロジェクトの紹介ホームページ https://aakash-rihn.org/ [2] Nakayama et al. (2018), *Aerosol Science and Technology*, http://doi.org/10.1080/02786826.2017.1375078

氷晶核となるエアロゾル粒子の探索

*木名瀨健¹,足立光司¹

1 気象研究所

1. 氷晶核と気候システム

気候に大きな影響をもたらす雲の理解は、人類の 将来にとって問題となる気候変動予測の重要なカギ になる。雲は放射収支や対流・降水に大きく影響す るが、特に氷雲粒成長の科学的理解が不足しており、 気候変動を評価する際の大きな不確定要因となって いる。雲は雲凝結核(CCN)による水雲粒子と、氷晶核 (IN)による氷雲粒子からなり、それぞれで反射率や 近赤外放射の吸収率といった光学的性質に加え、対 流・降水への影響も全く異なる。特に、水雲粒子と 氷雲粒子のどちらもが共存している混合相雲の形成 に関する理解は不足している。

通常、純粋な水は-38℃以下まで凍らない。IN 生成 の過程には、液滴が-38℃以下で凍る均一核生成と、 それよりも高温条件で IN のもととなるエアロゾル 粒子(INP)から成長する不均一核生成がある。不均 一核生成は氷晶成長速度も速く、INP が存在する環 境下では、雲過程や気候に対する影響は大きい。

一般的に鉱物粒子やバイオエアロゾルの一部が有 効な INP として認知されてきている。しかし氷の成 長は単純な物理化学プロセスで説明できず、INP が 持つ物理・化学的特徴や氷核形成過程の詳細など未 解明が多く残されており、これらを理解することが 重要である。

本研究では各種エアロゾルサンプル中の INP を探索し、その物理・化学的特徴や IN 生成メカニズムを 理解することを目的とする。

研究手法と結果

実験には光学顕微鏡 (Axio Imager M2m, Carl Zeiss, Tokyo, Japan) と温湿度制御付冷却加熱ステージ (Rh10002L, Linkam Scientific Insturument Ltd., Water field, UK)を用い、顕微鏡観察下でエアロゾル試料を 冷却し、-40℃以下で IN 生成する粒子を探索した。 エアロゾル試料は、下記二つの手法で採取した。

- A:アンダーセンサンプラー(AN200, Sibata Scientific Technology Ltd., Saitama, Japan)で撥 水加工を施したカバーガラスと Cu グリッド 上に捕集する方法
- B: 二段式インパクター(Arios Inc., Tokyo, Japan)でCuグリッド上にエアロゾル粒子 を捕集する方法

A 手法では、ガラス板に複数のサンプルスポット を形成することができる。そのため、A 手法ではま ず、ガラス板上のサンプルスポットに超純水を滴下 し、その液滴の凍結温度を測定することで、有効な INP が多く存在すると予想されるサンプルの抽出を 行った。この時の凍結温度を目安とし、グリッド試料を十分な過飽和条件のもとゆっくりと冷却し(1~5°C/min)、IN 生成する粒子を探索し、その凍結過程を観察した。この手法では、INP が多いサンプルの簡便なスクリーニングが可能であり、最も IN 能が高い粒子を効率的に探索でき、その時の凍結温度も0~+5°C程度の誤差で導くことができる。

一方、B 手法の場合には細かい時間分解で定期サ ンプリングすることが可能である。また、装置設定 や準備が比較的簡便であるため、様々な地点でサン プリングすることができる。実験に使用したグリッ ド試料は-15℃程度で過飽和になるように調湿した 条件で-40℃まで急速に冷却(30℃/min)し、-40℃到 達時点で凍結する粒子を探索した。この手法では純 水凍結温度以前で凍る全粒子を抽出することが可能 である。サンプルは気塊イベントごとに複数選定し、 異なるエアロゾル混合状態で IN 生成がどのように 異なるかを調べた。

上記手法で特定した INP はガラス板試料の場合に は走査型電子顕微鏡 (SEM; SU3500, Hitachi High-Technologies Co., Tokyo, Japan)、グリッド試料の場合 には透過型電子顕微鏡 (TEM; JEM-1400, JEOL Ltd., Tokyo, Japan)を用いて、詳細構造を観察した。また粒 子の化学組成や元素分布は、、それぞれの顕微鏡が備 えているエネルギー分散型 X 線分光器 (EDS; E-Max 50, Horiba Ltd, Kyoto, Japan 及び X-Max 80, Oxford Instruments, Tokyo, Japan) により分析した。本発表で は上記実験で特定できた INP と、それらの詳細分析 結果について紹介する。



図 1. ガラス板上の粒子が凍結する様子。 (a)バイオエアロゾルの凝結凍結過程と、 (b)鉱物粒子の昇華成長過程を示す。

都市大気中非吸湿性スス粒子の表面状態: 臨界過飽和度および TEM 観察による評価

*上田紗也子¹,森樹大²,岩本洋子³,丑久保裕太²,三浦和彦² 1名古屋大学,2東京理科大学,3広島大学

1. はじめに

化石燃料の燃焼から排出されるススは強い光吸収 性を有する非吸湿性物質である。ススは、燃料や排 出時の酸素濃度によって親水性・疎水性の程度が異 なる 1)。このような粒子表面の性質の違いは、表面 における化学反応や粒子の氷晶核能に関係する要素 であり、その粒子の大気中での変質や寿命、輸送距 離を左右する可能性がある。しかし、様々な排出源 のある大気中のススの表面状態がどのようであるか は明らかでない。非吸湿性粒子が雲凝結核 (CCN) となる臨界過飽和度 Scは、粒子の直径と、水との接 触角 θ に依存する²⁾。親水性粒子に比べ、θ が大きい 疎水性粒子ほど Scは高い。一方、吸湿性物質を含む 粒子のS。は、吸湿性物質の組成と量が強く影響する。 僅かな吸湿性付着物でも、非吸湿性粒子の Scを大き く低下させる。本研究では、都市大気エアロゾル粒 子に対し、非吸湿性粒子の S。付近の CCN 能を測定 することで、表面状態別の非吸湿性粒子の個数測定 を試みた。さらに、透過型電子顕微鏡(TEM)によ る分析と比較し、測定の整合性、およびスス粒子の 表面状態の違いの要因を明らかにした。

2. 測定方法・観測

拡散乾燥器と電気移動度別粒子サイズ分級器 (DMA3081, TSI)により乾燥直径 203 nmに分級し た試料大気を、CCN 計(CCN-100, DMT)と凝結核 (CN)数測定器(CPC3775, TSI)に分岐して、CCN 濃度とCN 濃度を同時に測定した。CCN 濃度は、過 飽和度 0.88, 1.04, 1.18, 1.36, 1.85%SS を 12 分毎、1 時 間サイクルで測定した。CCN 計の過飽和度は硫酸ア ンモニウム粒子を用いて校正した。203 nm の非吸湿 性粒子の場合、親水性($\theta=0^\circ$)であれば S_c は 1.05%SS である。本測定上限の 1.85%SS は、 $\theta=6^\circ$ の 203 nm 非 吸湿性粒子の S_c 、下限の 0.88%SS は、非吸湿性物質 に微量(粒子体積に対し 0.04%)の硫酸アンモニウ ムが付着した 203 nm 粒子の S_c に相当する。

観測は、東京都新宿区の東京理科大学神楽坂キャンパスで2019年12月12日から2020年1月4日まで実施した。CCN/CN測定に加え、乾燥粒子の粒径別粒子数濃度(SMPS3034、TSI、10-500nm)とインパクター(*d*_{50%cut}=0.25, 0.46, 1.3µm)で分級した光吸収係数(PSAP, Radiance Research)の測定、およびTEM用の試料採取を行った。採取した試料は、水透析法により水溶性物質を抽出する前後について、TEM(IEM 2100nbus IEOL)を用いて TEM 像とSTEM

(JEM-2100plus, JEOL)を用いて、TEM 像と STEM 像の撮影、およびエネルギー分散型 X 線(EDS)分 析を行った。

3. 結果

図1に全期間とラッシュアワー時の過飽和度別の CCN/CN 比の箱ひげ図を示す。CCN/CN 比の期間平 均値は、過飽和度が高いと僅かに高い傾向があった。 親水性非吸湿性粒子 Sc相当の 1.04%SS の CCN/CN 比は 0.987 であった。これは水溶性物質の付着の無 い粒子が1.3%であることを意味する。光吸収係数と 粒子体積濃度から概算した 500nm 以下の粒子に対 するススの質量割合は1~2%程度で、CCN/CN比か ら推定される非吸湿性粒子の割合と同程度であった。 ラッシュアワー時の CCN/CN 比は、期間平均より低 く、特に 1.04%SS 以下の過飽和度で差が顕著であっ た。これは、ラッシュアワー時、疎水性粒子と比べ、 親水性や僅かな水溶性付着物のある非吸湿性粒子が より増えたことを示唆する。図2に、ラッシュアワ ー時に採取した試料中粒子の STEM 像を示す。スス と見られる鎖型粒子が観察された。その殆どが Crich だが、部分的に Na, K, S, Fe が検出される粒子も 多かった。水透析後に同じ箇所を EDS 分析したとこ ろ、Naの検出値が低下した粒子もあった。Naの一 部が水溶したと考えられる。Na, K, Fe はガソリン添 加剤に含まれることもある成分である。個々の自動 車の利用条件の違いが、排出直後からススの水溶性 物質付着の有無にばらつきを生じさせている可能性 が考えられる。





図 2 12/18 ラッシュアワー時(午前 8 時)に 採取した試料の STEM 像

Reference

- 1) Han et al., J. Phys. Chem., 116, 4129–4136, 2012.
- Dusek, et al., Environ. Sci. Technol., 40, 1223–1230, 2006.

Temperature and acidity dependence of secondary organic aerosol formation from α-pinene photooxidation under low NOx conditions

*Yange Deng¹, Satoshi Inomata¹, Kei Sato¹, Sathiyamurthi Ramasamy¹, Yu Morino¹, Shinichi Enami¹, and Hiroshi Tanimoto¹ 1National Institute for Environmental Studies

1. Introduction

 α -Pinene is one of the most important biogenic volatile organic compounds (VOCs) that contributes to the formation of secondary organic aerosol (SOA). Photooxidation reactions accounts for 42% of the sink of α -pinene in the global scale (Capouet et al., 2008). Nevertheless, the influence of environmental factors (e.g., temperature and acidity of preexisting particles) on the yields and products of α -pinene photooxidation SOA are not well understood. In this study, the temperature- and acidity-dependence of SOA yields from α -pinene photooxidation was studied based on laboratory chamber experiments. The possible reasons and mechanisms that caused the differences are discussed.

2. Experimental

α-Pinene photooxidation experiments were carried out in a compact type Teflon chamber (volume 0.7 m³) under low NOx (ppbv[α -pinene]/ppbv[NOx]>1) and varied temperature (room (~25 °C) and low (~11 °C)) and seedparticle acidity (neutral and acidic) conditions. H₂O₂ was used as the OH radical source. The SOA yield is defined as the ratio of the mass of SOA formed to the mass of the reacted a-pinene. The SOA mass concentration was derived from the aerosol volume-size distributions measured by a scanning mobility particle sizer (SMPS 3938L72, TSI) assuming a particle density of 1.34 µg cm⁻³. The concentration of α -pinene was measured using transfer reaction time-of-flight а proton mass spectrometer (PTR-TOF-MS 1000, Ionicon Analytik GmbH). In addition, aerosols under different settings of temperature and seed-particle acidity conditions were sampled onto Teflon filters. They will be analyzed using electrospray ionization liquid-chromatography time-offlight mass spectrometry (ESI-LC-MS) for detailed chemical information soon.

3. Results and discussions

Figure 1 presents the mass yields of SOA as a function of SOA mass loadings from α -pinene photooxidation experiments under different temperature and seed-particle acidity conditions. The SOA yields at low temperature were higher than those at room temperature under both neutral and acidic seed conditions. Further, they increased under acidic seed conditions compared with neutral seed conditions at both low and room temperatures.

It is expected that the temperature dependence of SOA

yields is mainly caused by the temperature dependent partitioning of oxidized organic compounds from α pinene photooxidation; and the enhanced SOA formation under acidic seed conditions is mainly driven by acidcatalyzed esterification reactions between organic acids and alcohols considering the fact that hydroxy radical is a main chemical function of photooxidation SOA products (Gaona-Colmán et al., 2017). Future detailed chemical analysis by ESI-LC-MS will help to illustrate these assumptions and/or supply more insights into these tendency of SOA yields.



Figure 1. Mass yields of SOA for increasing SOA mass loadings. Markers are measured data and curves are fitting of measured data using a four-product VBS model (Donahue et al., 2006). Panel (a) presents results under neutral seed conditions, and panel (b) presents results under acidic seed conditions.

References: Capouet et al., JGR, 113, D02308, 2008; Donahue et al., EST, 40, 2635-2643, 2006; Gaona-Colmán et al., RSC Adv., 7, 2733, 2017

原子間力顕微鏡を用いた個別エアロゾル粒子の 付着力測定法の開発と大気エアロゾルへの応用

*大野耕平¹,水島悠希²,古家正規¹,國久亮太¹,

土屋望¹,福間剛士³,岩田歩⁴,松木篤⁵

1 金沢大学自然科学研究科,2 金沢大学理工学域,3 金沢大学ナノ生命科学研究所, 4 慶応義塾大学理工学部,5 金沢大学環日本海域環境研究センター

1. はじめに

大気エアロゾルは様々な発生源から放出されるため、多種多様な化学組成を持つ。例えば黄砂や海塩などの粒子は大気中の微量成分(粒子や気体)との 衝突・化学反応を通じて元の状態から変質し、多様 な混合状態を取ることが知られている(Trochkine et al., 2003; Matsuki et al., 2005; Kojima et al., 2006; Miura, 2007)。

これらの大気エアロゾルは、地表面への沈着後に 太陽光パネルの発電効率の低下(Sayyah et al., 2014) や黄砂に吸着された放射性セシウムの再飛散現象 (Fukuyama and Fujiwara, 2008)、沿岸域での海塩粒子 による塩害(例えば Shibata and Usuki, 2018)など、 大気の枠を超えて起こる環境問題と密接に関わって いる。このようなエアロゾル粒子の環境中および粉 体制御過程における沈着挙動を解明するには、長年 見過ごされてきた、付着力(物体に対して粒子が付 着し続ける力)の影響を考慮する必要がある。しか し、従来のエアロゾル粒子の付着力測定は間接的、 かつバルク的な測定手法が一般的であったため、大 気エアロゾルの複雑な混合状態を個別粒子レベルで 反映できない問題があった。

そこで本研究では、原子間力顕微鏡(AFM)を用 いた個別エアロゾル粒子の付着力を定量的に評価す る新しい手法として、付着力マッピング(フォース カーブマッピング)法を開発した。これにより、先 行研究が各粒子に対して1点のみの測定で付着力を 代表させていたのに対し(De Falco et al, 2015; Tan et al., 2014)、単一粒子上の多地点から網羅的に付着力 を取得することが可能となった。加えて日本へ飛来 した黄砂を対象にこの手法を適用し、実大気試料に 応用した。

2. 実験手法

インパクターを用いてシリコンウェハー上に粒子 を 捕 集 し 、 AFM (TOKYO INSTRUMENTS, Nanofinder®HE) で形態測定と付着力測定を行った。 使用したプローブは、それぞれ OMCL-AC240TS (Olympus)とAdvancedTECTM(NANOSENSORSTM) である。AFM による測定は、湿度の影響を防ぐため に、RH20%前後の条件下で実施した。本研究ではま ず、粒径 1 μ m の PSL を対象にフォースカーブマッ ピングを行い、取得されたデータを R 言語により解 析し、付着力の抽出アルゴリズムを最適化した (Ono et al., 2020)_°

実大気試料は黄砂が飛来した 2018 年 4 月 7 日と 17 日に金沢大学角間キャンパス内で捕集し、SEM-EDX(HITACHI, S-3000N; HORIBA, EMAX-500)およ び 顕 微 ラ マ ン 分 光 (TOKYO INSTRUMENTS, Nanofinder®HE) により種類を同定した。大気中での エイジングを考慮するため、同サイズ (直径数 \Box m 程度)の標準鉱物粒子 (石英砂、ATD、CJ-1)、一般 的な無機塩エアロゾル (硫酸アンモニウム、人工海 塩)を変質前の粒子として扱い、比較の対象とした。

3. 結果·考察

捕集された実大気試料は、海塩粒子、シリケイト 主体の黄砂、Ca-rich な黄砂に分類された。シリケイ ト主体の黄砂と Ca-rich な黄砂は化学分析の結果よ り大気中で硫酸塩あるいは硝酸塩により変質を受け たことが示唆された。標準鉱物粒子の付着力と比較 した結果、シリケイト主体の黄砂は変質後も標準鉱 物粒子と同等の付着力を保つが、Ca-rich な黄砂は標 準鉱物粒子よりも顕著に付着力が高く、むしろ無機 塩エアロゾルに近い値を持つことが分かった。これ らの結果より、黄砂の付着力は粒子ごとの主成分の 違いと大気中での変質過程に応じて差が生じること が明らかになった。

また本発表では、有機物を含むエアロゾル試料の 付着力ついても報告する。



瀬戸内海および周辺地域におけるガス状・粒子状硫黄物質の 動態に関する研究

*田内萌絵¹,川本雄大²,山地一代¹,中坪良平^{3,4},大下佳恵⁴,板野泰之⁵ ¹神戸大学大学院海事科学研究科,²高松地方気象台観測予報管理官室,³兵庫県農政環境 部環境管理局環境整備課,⁴兵庫県環境研究センター,⁵大阪市立環境科学研究センター

1. はじめに

近年、中国や国内における大気汚染物質の排出量 抑制対策強化により、全国的に PM_{2.5}の環境基準達 成率や粒子状物質の前駆物質である SO₂やNO_xの濃 度レベルが改善している。他方、瀬戸内海沿岸地域 は、越境汚染のみならず、周辺の工業地帯や船舶の 排気ガスなど地域的な汚染も関係しており、越境影 響が減少する一方で地域汚染の寄与が相対的に増大 する可能性が指摘されている(Uno et al., 2017)。

本年に関しては、2020年1月以降に導入された燃料油中硫黄分を3.5%以下から0.5%以下へ制限強化する船舶排ガス規制(IMO, 2020)に加え、COVID-19の世界的流行に伴う経済活動の制限による人為起源の硫黄酸化物の排出量の低減が期待できる。

本研究では、2020年以降の大気環境に影響を及ぼした可能性のある船舶排ガス規制やCOVID-19による経済活動の鈍化に注目し、大気中のガス・粒子状物質の硫黄成分を中心とした成分濃度の動態変化を定量化することを目的とした。

2. 全国及び瀬戸内海周辺地域の SO2 濃度の変動

2020 年1月~5月の全国及び瀬戸内海沿岸地域に おける SO₂ 濃度月平均値は、いずれの月も過去2年 間(2018~2019 年)の同月と比較して低くなった。 また、PM_{2.5}は1月頃、NOx は2020 年5月頃より同 様の傾向が確認され、国内や中国のロックダウンに よるものと考えられる。

瀬戸内海に面する垂水局(一般大気測定局)にお ける SO₂ 濃度の日内変動(図 1)は、2018、2019年 の冬季(1~3月)は午前9時頃から午後7時ごろま で、夏季(6~8月)は午前8時ごろから午後7時ご ろまで高濃度となる一山形を示したが、2020年は冬 季・夏季ともに前年までと比較して濃度が著しく低 く、濃度変動が不明瞭であった。



また、神戸大学が所有する練習船深江丸を利用し

て大阪湾付近の海上で観測した SO₂濃度の冬季の一時間平均値(2018 年~2020 年の1月~3月の期間)のうち、5 ppb 以上の濃度を観測した割合は 2018 年から 2020 年にかけて 27%、8%、1%と減少傾向にあることが確認された(図 2)。



図 2 大阪湾付近における SO2 濃度の空間分布

これらの全国的・局所的な SO2 濃度の減少の主要 因は、①船舶排ガス規制、②火力発電量の減少、③ 製造工業の稼働率指数の減少であると考察した。日 本の火力発電量は、季節的な周期性はあるものの、 全体として漸減傾向である。また、製造工業の設備 の稼働状況を示す稼働率指数(ICUR、2015 年平均 値を100とする)は、2020年2月ごろまでは100程 度で推移していたが、2020年3月以降減少の一途を たどり、5月には約70まで落ち込んだ。これらが要 因となり、SO2を含む排出ガスが全国的かつ局所的 に減少した可能性が示唆された。一方で、海風の主 風向である南西方向に主要な SO₂の固定発生源がな い垂水測定局でも、2020年以降、冬季・夏季ともに SO2濃度が大幅に減少した。2020年1月から開始さ れた船舶燃料油規制により、周辺を航行する船舶か ら排出される SO2 濃度が低減した可能性が示唆され た。

3. まとめ

2020年1月以降、全国的にSO2濃度の低下が確認 された。火力発電量と稼働率指数の全国的な減少の ほか、瀬戸内海に面する地域では、船舶排ガス規制 が主要な要因であることが示唆された。洋上及び瀬 戸内海沿岸部の大気汚染状況の把握のため、今後も 継続的な監視が必要であると考える。
有機トレーサーとの比較による長崎における秋季・冬季の 粒子中イミダゾール化合物の起源推定

*新拓実¹,池盛文数²,前田卓磨³,高尾雄二¹,中山智喜¹

1長崎大学水産・環境科学総合研究科,2名古屋市環境科学調査センター,3長崎県環 境保健研究センター

1. 目的

五員環上に窒素原子を1,3位に含む複素環式芳香族 化合物であるイミダゾール化合物は、近紫外から短 波長可視領域の太陽光を吸収し、大気の放射収支や 光化学反応過程に影響を及ぼしている可能性がある。 反応チャンバーを用いた室内実験ではグリオキサー ルやメチルグリオキサールとアンモニアやアンモニ ウムイオンとの水溶液相や粒子表面での反応により、 イミダゾール類が二次的に生成することが知られて いる。一方で、実大気中の濃度の観測例は非常に少 ない。

そこで本研究では、長崎市内で秋季から冬季に比較 的高い時間分解でPM_{2.5}を捕集し、定量したイミダゾ ール化合物の濃度を、有機トレーサー(発生源推定 に利用可能な指標分子)やイオン成分等の濃度と比 較することで、イミダゾール化合物の発生源につい て明らかにすることを目的とした。

2. 方法

長崎市街地にある長崎大学文教キャンパスの屋上 において、2019年11月18日~28日および12月16日~ 25日に、自動交換式ハイボリュームエアサンプラー を用いて、6時間毎に石英繊維フィルターにPM_{2.5}を 捕集した。また、捕集時間の違いがイミダゾール類 の濃度に及ぼす影響を調べるために、2台の手動交換 式ハイボリュームエアサンプラーを用いて、24時間



図:イミダゾール類のクロマトグラムの例

および120時間の粒子捕集も並行して実施した。

採取したフィルターは分割し、イオン成分、水溶 性有機炭素(WSOC)、元素状炭素/有機炭素(EC/OC)、 各種有機トレーサー、イミダゾール類の分析を行っ た。

イミダゾール類は、固相カラムを用いて濃縮した 後、高速液体クロマトグラフ/四重極-飛行時間型質 量分析(HPLC/Q-TOF-MS)により分析した。図に標準 試薬を測定した際のクロマトグラムの例を示した。 大気中濃度はサロゲートおよび内部標準物質として 4-メチルイミダゾールの重水素化体 (4MI-d)を用い て算出した[Takao *et al.*, 2019]。

レボグルコサン(バイオマス燃焼の指標成分)や 4-メチルフタル酸(人為起源二次有機エアロゾルの 指標成分)などの有機トレーサーは、シリル誘導体 化後に、ガスクロマトグラフ質量分析計(GC/MS)に より定量した。

3. 結果及び考察

4-メチルイミダゾール(4MI), 2-エチルイミダゾー ル(2EI), 1,2-ジメチルイミダゾール(1,2-DMI), 2,4-ジ メチルイミダゾール(2,4-DMI)が期間を通じて継続 的に検出され、概ね類似した濃度変化を示した。6 時間と24時間の捕集時間の違いにより、定量された イミダゾール化合物濃度に有意な違いがみられなか ったことから、24時間以内では捕集中のイミダゾー ル化合物の損失の可能性は限定的であることがわか った。

後方流跡線解析を行った結果、アジア大陸からの 越境由来の気塊が飛来していない時期でも比較的高 濃度のイミダゾール類が検出されており、国内から の排出の影響があることが示唆された。また、11月 に採取されたPM_{2.5}中のイミダゾール類の濃度は、4-メチルフタル酸に比べて、レボグルコサンと強い相 関関係があり、バイオマス燃焼由来の寄与が大きい ことが示唆された。今後、イミダゾール類の濃度の 日内変動や越境汚染気塊の寄与について、詳細に検 討する予定である。

(参考文献)

Takao, Y., Atarashi, T., Kubo, T., Nagae, M., Nakayama, T., Quantification of imidazole compounds in ambient aerosols at suburban and forest sites in western Japan, *Asian J. Atmos. Environ.*, 13, 259-265 (2019).

小型センサーを用いた 二酸化窒素 (NO₂)の鉛直分布観測

*高島久洋¹,原圭一郎¹,乙部直人¹,田代尚輝¹, Frederik Tack², Alexis Merlaud² 1:福岡大学, 2: Royal Belgian Institute for Space Aeronomy (BIRA-IASB)

1. はじめに

二酸化窒素 (NO₂) の鉛直分布を知ることは、地表付 近で発生した大気汚染物質の鉛直拡散過程を明らか にする上で重要であるとともに、リモートセンシン グ観測で鉛直分布導出の際の先験情報として重要で ある。しかし、これまで鉛直分布の観測は限られて いた。近年 Electrochemical センサーと呼ばれる小型 センサーによる観測が広くなされるようになった。 そこで本研究では、その小型ガスセンサーを用いて、 地表近傍の NO₂鉛直分布およびその変動・要因を明 らかにすることを目的とした観測的研究を行った。

2. 観測·解析

本研究では、Alphasense 社の NO₂ センサー (NO2-B43F)を用いた。NO₂センサーに加えて、気温・気 圧・相対湿度センサーによる同時観測を行った。装 置総重量はバッテリー、シールド込 80 g 以下で、 データは MicroSD カードに 1 秒ごとに記録した。

NO₂ センサーデータと環境データから、Horiba APNA-370 (化学発光方式 NOx 計) を参照して線形 回帰モデルを作り、NO₂濃度を導出した。2019年11 月 21 日、2019年11月 29 日、2020年 2月 20 日、早 朝(日の出前)から10時過ぎまで、係留気球により 福岡大学18号館屋上(標高約43m)から上下を繰 り返す(屋上から120m程度)観測を行った。また ドップラーライダーによる境界層内の風観測を同時 に実施(北向きに仰角約3度でPOINT観測:高鉛直 分解能)した。



図 1. 観測に用いた小型 NO₂ センサー (左; シールドとバッテリー込みで 80g 以下)、気 球観測の様子 (右)。

3. 結果

図2に得られたNO2の鉛直分布の例を示す。観測し

た建物から約 60 m 付近 (標高約 100 m) より上空で は濃度が低く 10 ppbv でほぼ一定の濃度であるが、 地表付近では濃度が 20-30 ppbv で高度とともに減 少している様子が見られた。さらに 9 時以降は全体 的に濃度が下がり高度 60 m 付近に見られた変化が みられなくなった (図無し)。この変化はドップラー ライダーの境界層の鉛直構造と一致する (図 3)。



図 2. 観測した NO₂ [ppbv] の鉛直分布 (2020 年 2 月 22 日に福岡大学 18 号館屋上にて観測。 縦軸は屋上 (標高 43 m) からの高度)。



図 3. ドップラーライダーによる POINT 観測 (北向き仰角 3°のドップラー速度 [m/s])。時間高 度断面図。

謝辞:地上 NO2 観測は環境省によって行われた。NOX 観測 (CAPS) について Michel Van Roozendael 博士の協力を得た。係留 気球観測について林政彦教授の協力を得た。福岡大学推奨研究プ ロジェクト (NO. 197103)、領域別研究 (NO. 205001)の補助を受 けた。図の作成には地球流体電脳ライブラリを用いた。

NO, NO₂, O₃の同時高時間分解能計測装置の開発と 富士山山岳道路五合目における計測

*和田龍一¹,松見豊²,山田裕之³,鈴木央一⁴,板野泰之⁵,米村正一郎⁶,森吉泰生⁷,戸野倉賢一⁸ 1 帝京科学大,2名古屋大,3東京電機大,4交通安全環境研,5大阪市立環境科学研究セ 6 広島市立大,7千葉大,8東京大

1. 緒言

窒素酸化物はオゾン(O_3)の前駆体であり、また それ自体に毒性があることからその濃度を減少させ ることは重要である.主な排出源である自動車から の窒素酸化物(NO_x)については規制が進んでいる. しかしその規制値は試験室内で規定の運転パターン を走行した際の排出ガスを対象としており、気温や 標高の違いによって NO_x の排出量が増加している可 能性がある.国内には高い標高に位置する国立・国 定公園が存在する.このような自然への配慮が求め られる場所では、実態を把握して影響を注視する必 要がある.しかしながら標高の高い国立公園内の道 路において、車両からの NO_x の排出量や二酸化窒素 (NO_2)の一次排出比($\alpha:NO_2/NO_x$)に関する正確 な知見はない.

2. 方法

沿道における大気の計測は、富士山五合目から約5 km下った山岳道路路傍駐車場(標高 2250 m)に て行った.道路の傾斜は約5度である.計測は2019年10月6日に実施した.高時間分解能での一酸化窒素(NO)とO₃の計測には化学発光の原理を用いた 自作の計測装置を用いた.NO₂濃度はレーザー誘起 蛍光法の原理を用いた計測装置を用いた.共に応答 速度は0.5秒程度である.市販のNO_x計とO₃計で同 時に計測し、応答速度を合わせるため高時間分解デ ータを時間平均することで校正を行った.大気は車 両の屋上(地上から4.5m,道路中央から10mの位 置)に設置した取り込み口からPFA 製チューブと車 両内部の分析装置を通して、3 台のロータリーポン プで高速に吸引した.カメラを設置し、1 秒毎に観 測地前の道路を撮影した.

3. 結果と考察

NO, NO₂, O₃ 濃度の大型車両通過時の変動を図に 示す.ここで NO のピークが表れた時間に NO₂の正 のピークと O₃ の負のピークが観測された.NO と NO₂濃度の上昇のタイミングは一致し,O₃は負のピ ークを示していることがわかる.O₃が負のピークを 示すのは大気中のO₃が NO と反応して消失している ためである.車両の通過時刻と比較すると,車両通 過 11 秒後にピークが表れており,車両から排出され た窒素酸化物が観測されている.沿道にてαを測定 する場合,車両から排出された NO が大気中の O₃ と反応して NO₂濃度が増加するため,その影響を考 慮する必要がある.本研究では2つの方法でαを推 定した.1つ目は車両通過後に観測された NO, NO₂, O₃のピーク面積を用いる方法である.2つ目はポテ ンシャルオゾンを用いて推定する方法(松本,大気 環境学会誌,2013)である.計測した4台の大型車両 の α の平均値はともに 0.32±0.19 と得た.また NO_x 濃度と車両通過から計測されるまでの遅れ時間を用 いて車両の NO_x排出量を推定した. α が大きいほど 車両の NO_x排出量が大きいことが示された.沿道に おける NO, NO₂, O₃の同時高時間分解能計測に成 功し, α と NO_x排出量を1台毎に推定できることを 明らかにした.また,排出から測定までの各成分の 反応過程を Runge-Kutta 法で解析した.



図 大型車両(上)が通過する前後の2分間に おける高速応答測定 NO, NO₂, O₃信号の時間変化

ジャカルタ大都市圏におけるオゾン濃度の特徴

*西橋政秀¹,向井人史¹,寺尾有希夫¹,橋本茂¹,Rizaldi Boer²,

Muhammad Ardiansyah², Bregas Budianto², Adi Rakhman², Gito Sugih Immanuel²,

Rudi Nugroho³, Nawa Suwedi³, Anies Marufatin³, Muhammad Agus Salim³,

Dodo Gunawan⁴, Eka Suharguniyawan⁴, Asep Firman Ilahi⁴, Muharam Syam Nugraha⁴, Ronald Christian Wattimena⁴, Bayu Feriaji⁴, Qoriana Maulani⁴

1 国立環境研究所,2 ボゴール農科大学(IPB),3 インドネシア技術評価 応用庁(BPPT),4 インドネシア気象気候地球物理庁(BMKG)

1. はじめに

インドネシアの首都ジャカルタは東南アジア最大 の大都市圏を形成しており、近年急速な経済成長を 遂げている。しかし、大気環境のモニタリング体制 は不充分であり、その実態はほとんど把握されてい なかった。そこで国立環境研究所は、ボゴール農科 大学(IPB)、インドネシア技術評価応用庁(BPPT)、イ ンドネシア気象気候地球物理庁(BMKG)の3機関と 共同で大気汚染物質・温室効果ガスの総合観測シス テムを2016~2017年に設置し、連続観測を実施して いる(図1)。本発表ではオゾンの発生源推定および気 象要素との関係について報告する。

2. 使用データ

Serpong、Bogor、Cibeureum の3ヶ所で2017年7 月~2019年6月の2年間の12~18時に観測された オゾン濃度と気象要素の1時間値を使用した。

3. データ解析

Conditional probability function (CPF)解析(75 パーセ ンタイル以上の高濃度)の結果を図2に示す。Serpong と Bogor は北方向の CPF 値が大きく、海陸風循環に よるジャカルタ中心部や沿岸工業地域からの寄与が 推定される。一方、Cibeureum は西風 1m/s 以下の場 合に 0.5 程度の CPF 値が見られ、サイト近隣からの 寄与が考えられる。図3に日最高気温と日最高オゾ ン濃度との関係を示す。Cibeureum は標高 1160m の 山間部にあるため気温レンジが他よりも低いが、ど のサイトにおいても 100ppb 前後の比較的高濃度の オゾンが観測されるのは最高気温の高い日であり、 気温上昇とオゾン濃度との関係が示唆される。



図1 観測サイトの位置と観測開始日







富山県における上空大気中の過酸化水素およびホルムアル デヒド濃度の測定:寒候期と2020年8月上旬の観測

*渡辺幸一1,楊柳1,長堀友1,尾形佳行1,中村賢1,大谷卓也1,

森絢三朗1,荒木幸洋1,

1富山県立大学

1. はじめに

大気中の過酸化水素 (H₂O₂) は、主にオゾン (O₃) を介した光化学反応によって生成され、二酸化硫黄 (SO₂) の液相酸化を促進させるなど極めて重要な 役割を果たしている。ホルムアルデヒド (HCHO) は、化石燃料の不完全燃焼などにより一次排出され たり、メタン等の酸化過程において二次生成された りしている。また, HCHO は SO₂の硫酸への液相酸 化を抑制する働きをもち、H₂O₂が不足している状況 下では SO₂ と HCHO の液相反応によりヒドロキメ タンスルホン酸塩の生成が卓越する。そのため、両 者の測定データの蓄積が重要となるが、国内での同 時測定例は非常に少なく、東アジア域上空での H₂O₂ と HCHO の同時観測はほとんどなされていない.

本研究では、アジア大陸からの越境汚染の影響を 受けやすい北陸地方において、小型ヘリコプターを 利用した上空大気中のH2O2とHCHOの測定を行い、 大気中の濃度変化やSO2の液相酸化能力および粒子 生成への影響について考察した。また、2020年8月 上旬には西之島の噴火活動の影響が、沖縄・九州地 方を経て北陸まで輸送されており、火山噴煙由来の SO2やその酸化能力について検討した。

2. 方法

本研究では、(有)アドバンスドエアー社 (https://www.addair.jp/)保有のR44型4人乗りヘリ コプターを利用して富山県射水市上空の大気観測を 行った。目的高度(4000ft および 8000ft)において 10分間旋回水平飛行し、ミストチャンバー法により 大気中の過酸化物やアルデヒド類を採取した。各高 度での試料採取終了後、直ちに富山県立大学(富山 県射水市)構内へ下降し、捕集液を入れたポリ瓶を 超低空で投下させ実験室へ運び、速やかに HPLC・ ポストカラム・蛍光法により分析を行った。学内へ サンプルを輸送した後、次の高度へ上昇し、再び試 料採取およびサンプル輸送、分析を行った。また、 ヘリコプターの後部座席にO₃, SO₂測定器およびパ ーティクルカウンター(OPC)を設置し,自動計測 を行った。

上空大気中の H₂O₂ と HCHO の同時測定は、2016 年 11 月 30 日,2017 年 3 月 17 日,2018 年 3 月 28 日 および 2019 年 12 月 25 日 (いずれも寒候期) および 北陸地方が西之島の噴煙の影響を受けていた 2020 年 8 月 5 日に実施した。

3. 結果と考察

H₂O₂ は地上よりも紫外線が強い上空で高くなる 傾向がみられ、2018 年 3 月の観測時以外は高度 8000ft(約 2400m)で最も高かった。HCHO および SO₂は通常地上で高く上空で低かったが、2019 年 12 月 25 日においては上空 8000ft で最も高かった。後 方流跡線解析の結果から、2019 年 12 月の観測日は 上空の方が中国からの越境汚染の影響を受けやすい 状況であり、酸性物質と共に HCHO の越境輸送が示 唆される。

寒候期では、SO₂よりもH₂O₂濃度が低く、酸化剤 が不足している状況であり、SO₂の硫酸への液相酸 化が抑えられていたものと考えられる。2014~2016 年の3月に実施した観測(HCHO 測定は行っていな い)においても同様の結果であった。また、H₂O₂よ りもHCHO 濃度の方が高、SO₂とHCHOによるヒド ロキメタンスルホン酸生成が硫酸生成よりも卓越し やすい条件であったと考えられる。

図1に、2020年8月5日の観測結果を示す。8月 4~7日頃まで、西之島の噴火活動の影響を受け、富 山県内の $PM_{2.5}$ や SO_2 が高濃度であった。計測した 粒子個数濃度は地上および高度 4000 ft (約 1200m) で非常に高かったが、上空 8000 ft では大きく低下し た。 O_3 濃度についても上空 8000 ft で大きく減少し (約 5 ppb)、 H_2O_2 も低濃度であった。また、 H_2O_2 濃 度は夏季としては低濃度であり、 SO_2 の酸化のため に消費されていたものと考えられる。さらに、寒候 期での観測結果と同様に、 H_2O_2 よりも HCHO の方 が高濃度であった。



図 1 2020 年 8 月 5 日の富山県射水市上空における H₂O₂, HCHO, O₃および SO₂ 濃度(ppb)の鉛直プロ ファイル

Linking BC and PM2.5 surface concentrations with aerosol optical properties jointly estimated by skyradiometer and MAX-DOAS instruments

*Alessandro Damiani¹, Hitoshi Irie¹, Kodai Yamaguchi¹, Hossain Mohammed Syedul

Hoque^{1,2}, Tomoki Nakayama³, Yutaka Matsumi², and Yutaka Kondo⁴

1 Chiba University, 2 Nagoya University, 3 Nagasaki University,

4 National Institute of Polar Research

1. Introduction

Although estimates of aerosol absorption optical depth recorded by skyradiometers are among the few constraints of the global radiative forcing of black carbon (BC), relatively few studies analyzed them along with the associated aerosol concentrations. Here, we report the results of a recent campaign linking surface mass concentrations of BC and fine particulate matter (PM2.5) with aerosol optical properties recorded at Chiba University during the 2019-2020 winter, with an emphasis on the ultraviolet (UV) spectral region.

2. Data and methods

Ambient mass concentrations of BC were estimated by the continuous soot-monitoring system (COSMOS; Kondo et al., 2009), which is a filter-based optical instrument. A photometer measures the transmittance of light at 565 nm while particles sediment on it. The accuracy of BC measurements by COSMOS was estimated to be about 10%.

PM2.5 observations were carried out by means of a compact PM2.5 instrument (Nakayama et al., 2018). The computation of the PM2.5 mass concentration is based on the distribution of light scattering intensity by accounting for the relationship between scattering intensity and particle size. Data from this sensor have been shown to be in good agreement with data from standard instruments.

To compute aerosol optical properties, the skyradiometer measures direct and angular sky radiance with a resolution of 10 min. Here, we used observations at 340, 380, 400, 500, 675, 870 nm retrieved through the SR-CEReS (Center for Environmental Remote Sensing) version 1 (Mok et al., 2018). The SKYRAD.pack version 5 (Hashimoto et al., 2012) was implemented within the SR-CEReS for near-real-time data purpose.

The MAX-DOAS instrument measures scattered sunlight at various elevation angles with a time step of 15 min. The off-axis elevation angles are restricted to below 10°. High-resolution spectra are recorded from 310 to 515 nm with a full width at half maximum (FWHM) of 0.4 nm at 387 and 476 nm. The retrieval of aerosols and their gaseous precursors is based on DOAS and optimal estimation methods. Details of procedures and error estimates were reported in Irie et al. (2008, 2015).

Here, we joined the aerosol profile information from MAX-DOAS and the columnar aerosol optical properties from the skyradiometer as follows:

 $fAAOD_{\lambda}[0-1km] = AOD_{\lambda}[0-1km] \times [F2.5] \times [1-SSA_{\lambda}] (1)$

 $fAOD_{\lambda}[0-1km] = AOD_{\lambda}[0-1km] \times [F2.5]$ (2) with AOD = aerosol optical depth, AAOD = aerosol absorption optical depth, SSA = single scattering albedo, and F2.5 = fine-mode fraction of aerosol particles with a diameter of less than 2.5 µm. In our approach, the AOD[0-1km] is retrieved from the MAX-DOAS instrument and corresponds to the AEC[0-1km] at 357 nm, while F2.5 and SSA are retrieved from the skyradiometer.

3. Discussion and conclusion

Mostly due to the inherent difficulty of comparing the surface layer with the column of air, the correlation between the aerosol absorption optical depth (aerosol optical depth) of the fine fraction, i.e. fAAOD (fAOD), and the BC (PM2.5) concentration was moderate when only skyradiometer data were used. Although BC dominates the total absorption in the NIR spectral range, we found higher (lower) [fAAOD, BC] correlations in the VIS-UV (NIR) range, along with no wavelength dependence of the [fAOD , PM2.5] correlation. Nevertheless, by combing skyradiometer and MAX-DOAS retrievals at UV wavelengths (1,2), we showed that the fAAOD (fAOD) of the lowest 1 km layer is better related to the variability of the BC (PM2.5) than the corresponding column-based estimates (Fig. 1). After removing the potential brown carbon (BrC) influence, the ratio of the fAAOD to a uniformly distributed 1 km layer of BC resulted in being comparable to the expected mass absorption cross-section of the BC. Overall, our results stress the well-known sensitivity to the aerosol absorption in the UV spectral region and highlight the efficacy of combined MAX-DOAS & skyradiometer observations.



Fig. 1. (a) Scatter plot between daily COSMOC BC mass concentration and fAAOD[0-1km] at 357 nm (black) and at 550 nm (red) for days with SSA < 0.95 and AE > 1.

北極域のブラックカーボンの放射強制力に対する 雲内上昇流の扱いの重要性について

*松井仁志¹,茂木信宏² 1名大院環境,2東大院理

1. 研究背景と目的

ブラックカーボン (BC) は、太陽放射の吸収を通 して正の放射強制力を持つ。また、BC が雪氷に沈着 してアルベドを低下させると、雪氷の融解を促進し、 雪氷アルベドフィードバックの強化と北極域の温暖 化にも寄与すると考えられている。しかし、数値モ デルによる北極 BC のシミュレーションには非常に 大きな不確定性があるため、BC の北極気候への影 響を正確に理解することは難しい。

BC粒子は、雲の最大過飽和度(SSmax)が粒子の 臨界過飽和度 (SScrit) を超えると雲粒の核として活 性化するが、現在の全球エアロゾルモデルでは SSmax と SScrit の表現に大きな不確定性がある。一 般的なモデルでは、雲内で活性化しない BC (放出直 後の SScrit が大きい疎水性 BC) と活性化する BC(+ 分に変質過程を経た SScrit が小さい親水性 BC) を 単一の閾値を用いて表現する。これまでの先行研究 では、北極域の BC 濃度が、この閾値の決め方や BC の変質過程のモデル表現に大きく依存することが示 されてきた。しかし、この表現では、SSmax に依存 せずに BC 粒子が活性化するかしないかが決まって しまう。実際の雲では SSmax は雲内の上昇流やエア ロゾル濃度によって変わるため、SSmax の不確定性 やそれが BC の空間分布や放射強制力に与える影響 を明らかにする必要がある。

全球モデルでは雲の微細な構造を解像することが できないため、雲内での格子スケール以下の上昇流 速度(subgrid vertical velocity, SVV)を直接表現・計 算することができない。そこで、多くのモデルでは、 パラメタリゼーションを用いて雲内での代表的な上 昇流速度や上昇流速度の頻度分布を推定している。 SVV の扱いには大きな不確定性があり、SVV が SSmax への影響を通してエアロゾルの空間分布にど のような影響を与えるのかはよくわかっていない。

本研究では、エアロゾルの空間分布と放射強制力 に対する雲内の SVV の扱いの重要性を調べる。

2. 数値モデル計算と手法

全球気候—エアロゾルモデル CAM5-ATRAS を用 いる。このモデルでは、エアロゾルの粒径を12 ビン (1nm~10µm)、BC の混合状態を8 ビンで解像する。 個々のビンについて SScrit を理論に基づいて計算す るため、疎水性 BC と親水性 BC の単一の閾値を定 義する必要はない。SSmax は SVV(後述)とエアロ ゾル濃度を用いて計算する。各ビンのエアロゾルは SSmax が SScrit より大きい場合に活性化する。 CAM5では、SVV は以下の式で計算される。

SVV = max $(\overline{w} + c \sqrt{TKE}, w_{min})$

wは格子の平均上昇流速度、*TKE* は乱流運動エネル ギー、*c* は定数、 w_{min} は SVV の最小値である。本研 究では、先行研究で使用されている *c* と w_{min} の値か ら、これらの値の不確定性幅(*c*: 0.10–1.0、 w_{min} : 0.1– 0.4 m s⁻¹)を定義し、その不確定性幅の範囲で*c* と w_{min} の値を変える感度実験を行った。SVV が最も大 きい計算(HighSVV, *c* = 1.0 and w_{min} = 0.40 m s⁻¹) と最も小さい計算(LowSVV, *c* = 0.10 and w_{min} = 0.10 m s⁻¹)に着目し、その結果を示す。

3. 結果・結論

全球平均のエアロゾル各成分の大気中量(鉛直積 算濃度)は、LowSVVとHighSVVの計算であまり変 わらず、SVVに対する変化は小さい(<40%)。一方、 北極域ではBCの大気中量はLowSVVの方が約5倍 も多く、BC以外の他のエアロゾル成分についても 1.5~2.5倍多い。BCの大気中量について2つの計算 の比率(LowSVV/HighSVV)の全球分布を見ると、 放出源付近では比率が小さい(<1.5)のに対し、エア ロゾル濃度が輸送・除去過程によって決まる外洋域 や高緯度域では、比率が大きい(>3)ことがわかっ た。この結果は、SVVの扱いが、BCの長距離輸送 や除去過程、放出源から離れた領域でのBC濃度を 推定する上で重要になることを示している。

BCの大気中量と同様に、BCの地表濃度、沈着量、 放射強制力についても全球平均ではLowSVV/ HighSVV比が低く(1.0–1.4)、北極域では高い(2.0– 4.4) ことがわかった。SVVの不確定性幅の範囲で、 BCの放射強制力は全球平均で0.31–0.43 W m⁻² (LowSVV/HighSVV = 1.4)、北極域では0.091–0.40 W m⁻² (LowSVV/HighSVV = 4.4)と推定された。ま た、全エアロゾルの直接放射強制力についても、北 極域でSVV に対して高い感度を持つことがわかっ た(LowSVV/HighSVV = 5.3)。これらの結果は、北 極域における BC と全エアロゾルの放射強制力は、 SVV の扱いに強く依存することを示している。そし て、SVV が北極域のエアロゾルのシミュレーション において最も大きな不確定要因の1つとなり得るこ とを示している。

発表では、このような結果が得られる要因や、観 測との比較等についても紹介する予定である。

Matsui, H. and N. Moteki (2020), *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2020GL088978, https://doi.org/10.1029/2020GL088978.

北極域における無機イオン沈着の経年変動:化学気候モデ ル実験とグリーンランド SE-Dome 氷床コアデータの比較

*須藤健悟^{1,2},白土緋那子¹,大西貴都¹,飯塚芳徳³

1名古屋大学環境学研究科,2海洋研究開発機構,3北海道大学低温科学研究所

1. はじめに

大気中の物質のうち、短寿命成分(O₃, CH₄, NOy, CO, VOCs, NHx, SOx, BC/OC など) については、光 化学オキシダントや PM/PM2.5、また短寿命気候汚 染・影響物質(SLCPs/SLCFs)として、大気汚染・気 候影響の両側面から、今後の濃度変動とその影響が 注目されている。しかしながら、これらの大気成分 の全球分布は人為・自然起源のエミッションソース にくわえ、輸送場・気温・水蒸気・雲など気象場変 数の影響を強く受けながら時間的に変動しているた め、過去から現在までの分布・収支の変動とそのメ カニズムについて、定量的に十分な理解が得られて いるとは言い難い。本研究では、IGAC/SPARCの下 に実施された化学気候モデルについてのモデル間相 互比較プロジェクト(CCMI)の枠組みにおいて、 CHASER モデルを用いて行われた過去再現実験に ついて、とくに無機イオン(SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺) 沈着 量の経年変動を、グリーンランド(SE-Dome)氷床 コアの長期データにより検証すると同時に、その変 動要因の解明を試みた。

2. モデル・実験設定とアイスコアデータ

本研究では、成層圏・対流圏化学過程や化学・エ アロゾル過程を詳細に含む化学気候モデル CHASER (MIROC-ESM)^{1,2)}を用い、CCMI 実験³⁾の 標準過去実験を実施した。本 CCMI 実験では、気象 場(モデル緩和)に客観解析データ(Era-Interim)を、 前駆体エミッション (NOx, CO, CH₄, SO₂, NH₃, etc.) に MACCity インヴェントリを与え、1970~2010 年 の再現計算を行った(成層圏化学計算用に火山性エ アロゾルや QBO のデータも入力として導入した)。 ここでは、当該期間について、エミッションを含む 全 forcing の経年変動を考慮する標準実験(C1SD) と、エミッションを 1970 年値に固定する感度実験 (C1SD-fEmis)を用い、両者の差分からエミッショ ンの長期変動の寄与を抽出した。また、成層圏にお ける火山性エアロゾルについては、AOD の形で考慮 されているものの、SOx トレーサーとしては扱われ ていない。本研究では、CCMI 実験の検証として、 グリーンランド SE-Dome における氷床コアによる 長期データ4を用いた。

3. 経年変動・トレンド

SE-Dome 氷床コア中濃度の比較(図1)によれば、 モデルは各種無機イオンの沈着量の季節性や経年変 化を定量的にもよく捉えていることが確認された。 また、感度実験の結果から、SO4²⁻イオンの経年ト レンド(0.20 μmol L⁻¹ dec⁻¹)には、エミッション変動 が大きく寄与している一方で、NO3⁻や NH4⁺の経年ト レンドついては、エミッション変動の影響は限定的 であり、気象場・輸送場変動の寄与が大きいことが 示された。

4. 1992 年5月の沈着ピーク

本モデル計算は、1992 年 5 月の濃度増大をよく再 現している(図 1)。当該時期の輸送場アノマリを解 析したところ、この濃度増大は、おもに、北米・ヨ ーロッパからグリーンランドへの輸送量が増加した ことに起因していることが判明した。



図1 SE-Dome アイスコア中の各種無機イオン濃 度の時系列(月平均)変動(1979~2010)。

参考文献

- Sudo et al. (2002) J. Geophys. Res., 107, doi:10.1029/2001JD001113.
- Watanabe et al. (2011) Geosci. Model Dev., 4, 845-872, doi:10.5194/gmd-4-845-2011.
- 3) Eyring V., J.-F. Lamarque et al. (2013) SPARC News Letter, 40, 48-66.
- Iizuka et al. (2018) J. Geophys. Res.,: Atmos., 123, 574–589. doi:10.1002/2017JD026733.

気象研究所地球システムモデルを用いた人為起源気体と エアロゾルによる有効放射強制力の推定

*大島長¹, 行本誠史¹, 出牛 真¹, 神代 剛¹, 川合秀明¹, 田中泰宙¹, 吉田康平¹ 1 気象研究所

1. はじめに

人為起源気体やエアロゾルは、地球の放射収支を 変化させ、産業革命以後の気候変動を引き起こす。 しかしながら、これまでに実施された従来の気候モ デルによる放射強制力の推定では、特にエアロゾル や雲に関する推定で、大きな不確定性が含まれてい た。このため、気象研究所では、従来のモデルに数 多くの改良を実施することで、第6期結合モデル相 互比較計画(CMIP6, Eyring et al., 2016)に向けた新 しい気象研究所地球システムモデル ver.2.0(MRI-ESM2.0, Yukimoto et al., 2019)を開発した。

2. 有効放射強制力の推定

産業革命前(1850年)を基準とした現在(2014年) における人為起源気体とエアロゾルによる有効放射 強制力(effective radiative forcing, ERF)を MRI-ESM2.0を用いて推定した。MRI-ESM2.0は大気モデ ル(水平解像度約 120 km)、海洋モデル、エアロゾ ルモデル(同約 180 km)、大気化学モデル(同約 280 km)が結合して構成され、大気の鉛直解像度は 80 層

(上端 0.01 hPa) である。本研究は、CMIP6 を構成 する放射強制力モデル相互比較計画(RFMIP, Pincus et al., 2016)とエアロゾルおよび大気化学に関するモ デル相互比較計画(AerChemMIP, Collins et al., 2017) の枠組みで実施された。

大気上端における全球平均の全人為起源合計の正 味の ERF は 1.96 W m⁻² と推定され、これは主に二酸 化炭素(1.85 Wm⁻²)、メタン(0.71 Wm⁻²)、ハロカ ーボン類 (0.30 Wm⁻²) による正の強制力と全エアロ ゾル (-1.22 Wm⁻²) による負の強制力で構成されて いた。全エアロゾルによる ERF への寄与は、エアロ ゾルー放射相互作用(−0.32Wm⁻²)が23%、エアロ ゾルー雲相互作用(-0.98Wm⁻²)が71%、残りがエ アロゾルを要因とする地表面アルベド変化(0.08 W m⁻²) であった。エアロゾルー放射相互作用による ERF は、太陽放射を吸収する特性を持つ黒色炭素 (BC) (0.25 W m⁻²) による正の強制力と散乱特性を 持つ硫酸塩(-0.48 Wm⁻²)と有機エアロゾル(-0.07 Wm⁻²)による負の強制力の合計で構成され、エアロ ゾルとその前駆物質が排出される発生源域で顕著で あった。エアロゾルー雲相互作用による ERF (ERFaci) は発生源域とその風下域で顕著であり、これらは下 層雲の雲凝結核や雲粒の数濃度の増大に起因してい た。同時に MRI-ESM2.0 では、主に人為起源 BC を 要因とする上層雲(-38℃以下の気温)の氷晶数濃 度の増大により、特に熱帯対流域において、顕著な

負の短波 ERFaci および顕著な正の長波 ERFaci が推 定された。放射収支の観点では、これらの大きな正 負の強制力は互いに大部分が相殺されるが、上層の 氷雲は顕著な長波放射による大気加熱を引き起こす ため、この結果はエアロゾルと氷雲の相互作用のさ らなる研究の重要性を示唆している。

全人為起源合計の正味の ERF は北極域のほぼ全 ての領域で正であり、BC を要因とする地表面アル ベド低下の効果が寄与していた。北極域では BC は 二酸化炭素に次いで二番目に大きい正の ERF を持 つことが明らかになり、この結果は北極温暖化にお いて BC が重要な役割を果たす可能性を示唆してい る。

なお、本研究成果の詳細については、Oshima et al. (2020) に記述されている。

3. 引用文献

- Collins, W. J., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Boucher, O., Eyring, V., Hegglin, M. I., Maycock, A., Myhre, G., Prather, M., Shindell, D., and Smith, S. J.: AerChemMIP: quantifying the effects of chemistry and aerosols in CMIP6, Geosci. Model Dev., 10, 585–607, https://doi.org/10.5194/gmd-10-585-2017, 2017.
- Eyring, V., Bony, S., Meehl, G. A., Senior, C. A., Stevens,
 B., Stouffer, R. J., and Taylor, K. E.: Overview of the Coupled Model Intercomparison Project Phase 6 (CMIP6) experimental design and organization, Geosci.
 Model Dev., 9, 1937–1958, https://doi.org/10.5194/gmd-9-1937-2016, 2016.
- Oshima, N., Yukimoto, S., Deushi, M., Koshiro, T., Kawai, H., Tanaka, T. Y., and Yoshida, K.: Global and Arctic effective radiative forcing of anthropogenic gases and aerosols in MRI-ESM2.0, Prog. Earth. Planet. Sci., 7, 38, https://doi.org/10.1186/s40645-020-00348-w, 2020.
- Pincus, R., Forster, P. M., and Stevens, B.: The Radiative Forcing Model Intercomparison Project (RFMIP): experimental protocol for CMIP6, Geosci. Model Dev., 9, 3447–3460, https://doi.org/10.5194/gmd-9-3447-2016, 2016.
- Yukimoto, S., Kawai, H., Koshiro, T., Oshima, N., Yoshida, K., Urakawa, S., Tsujino, H., Deushi, M., Tanaka, T., Hosaka, M., Yabu, S., Yoshimura, H., Shindo, E., Mizuta, R., Obata, A., Adachi, Y., and Ishii, M.: The Meteorological Research Institute Earth System Model Version 2.0, MRI-ESM2.0: Description and Basic Evaluation of the Physical Component, J. Meteor. Soc. Japan, 97, 931-965, 10.2151/jmsj.2019-051, 2019.

気象研究所地球システムモデルを用いた黄砂発生量予測

*眞木貴史¹,田中泰宙¹,関山剛¹,梶野瑞王¹,大島長¹

1 気象研究所

1. 背景

黄砂は東アジアの乾燥地域で発生し、主に春季に 日本付近に飛来する。日本付近での影響は主に交通 障害や生活被害等にとどまるが、発生源付近では死 者も出るなど大きな社会的・経済的影響をもたらす。 黄砂は人間活動のみならず気候・天候にも影響を与 えるといわれており、先進的な数値予報センターは 黄砂を含むエアロゾルの数値モデルへの導入試験等 を積極的に進めている。このように重要な社会・経 済・科学的影響を持つ黄砂であるが、将来の気候変 動に伴い発生量や下流域への輸送量がどのように変 化するかについてはまだ十分な知見が得られていな い。黄砂の発生は地表面付近の風速や地表面の状態 (積雪、土壌水分、砂質、植生等)に非常に敏感で あり、これらの正確な予測が非常に難しいためであ る。今回、気象研究所が開発した地球システムモデ ル(MRI-ESM2)の結合モデル相互比較計画(CMIP6) の予測結果を用いて、黄砂の発生量とそれに関わる 各種パラメータの将来予測結果の解析を試みた。

2. 解析手法

MRI-ESM2 (Yukimoto et al., 2019) は大気、海洋、 陸域、エアロゾル、大気化学等の各種モジュールが カップラーを経由して結合された地球システムモデ ルである。MRI-ESM2 は気候予測を主なターゲット としているが、モジュールの組み合わせを変えるこ とにより、気象庁の黄砂予測(大気+エアロゾル)、 紫外線予測(大気+大気化学)等にも用いられてい る。CMIP6 実験における MRI-ESM2 の解像度は大気 が TL159 (水平格子間隔約 120km)、エアロゾルが TL95 (同約 180km)、大気化学が T42 (同約 280km) である。メンバー数は5で1850年1月から2014年 12 月までの過去再現実験を行い、それ以降は 2100 年12月まで7種のsspシナリオ実験を行った(その うちやや高温側シナリオ (ssp370) のみは 5 アンサ ンブルメンバー)。エアロゾルモデルは気象研究所が 開発を行ってきた MASINGAR mk-2 (Tanaka and Chiba, 2005) である。このモデルはダスト(黄砂)、 海塩、硫酸塩、BC、有機エアロゾルを外部混合とし て取り扱っている。これらのうち、自然起源エアロ ゾルのダスト、海塩については MRI-ESM2 で計算さ れた各種地表面状態を基に発生量を計算している。 今回のテーマであるダストに関しては摩擦速度、土 壌水分、植生、積雪等のパラメータよりダスト放出 量を計算するスキームを採用している。本予稿では、 2050 年代の東アジアにおける黄砂発生量に関する 解析結果を示す。

3. 結果・考察

2050年代における4月の日平均黄砂発生量の各シ ナリオ実験における結果を図1に示す。左上が過去 再現実験における 1980 年~2010 年までの 30 年平均 を示しており、それ以外の図が30年平均との差を示 している。図を見ると、温暖化があまり進まないシ ナリオ(図1最上段)と温暖化が最も進むシナリオ (図1最下段)で黄砂発生量に大きな変化は見られ ない。一方、ssp370の5個アンサンブル結果(図1 中央付近)のばらつきが大きく、あるアンサンブル メンバーでは黄砂放出量が最大となる一方、あるシ ナリオでは放出量が最小に近くなった。月ごとの変 化を見ると(図略)、1月から3月に関してはどのシ ナリオや ssp370 のアンサンブルメンバーも黄砂放 出量が 1980~2010 年の平均より小さくなる傾向が 見られた。その一つの要因としては黄砂発生域にお ける積雪量の増加(図略)が考えられる。



図1 2050年代における黄砂の発生量変化

各年代の黄砂発生量等について更に解析を進め、学 会当日に発表を行う予定である。

4. 謝辞

本研究は環境研究総合推進費(5-2001)および科学 研究費補助金(19H04316)の支援を受けて行われた。

5. 引用文献

Yukimoto et al., JMSJ, 2019.

Tanaka and Chiba, JMSJ, 2005.

MRI-ESM2.0 を用いた気候実験による自然強制力に起因する 20 世紀前半の北極温暖化と海氷減少

*相澤拓郎^{1,2},石井正好²,大島長²,行本誠史²,羽角博康³ 1国立極地研究所,2気象研究所,3東京大学大気海洋研究所

1. 序文

地球温暖化は、1910~1940年にかけての20世紀 前半の温暖化と、1970年以降現在に至る20世紀後 半の温暖化に分けられる。1970年以降の温暖化は全 球的に起こっているが、20世紀前半の温暖化は、 Early Twentieth Century Warming (ETCW)と呼ばれ、北 極域でのみ顕著に見られたという特徴がある(e.g., Johannessen et al. 2004; Shindell and Falvegi 2009; Yamanouchi 2011)。

20世紀後半の地球温暖化の半分以上は、人為起源 の強制力への応答として見積もられている (Bindoff et al. 2013)。一方で20世紀前半における人為起源の 強制力は、現在と比較してかなり小さいため、それ だけでは ETCW をほとんど説明できない。自然起源 の強制力 (太陽活動の増加と火山活動の減少)、およ び内部変動が ETCW を引き起こしうる要因として 考えられている (e.g., Meehl et al. 2003; Shiogama et al. 2006; Chyrek et al. 2009)。しかし ETCW に対する自 然強制力への気候応答の貢献度については、不確定 性が大きく、現在でも十分吟味されていない。

気象研究所は、Coupled Model Intercomparison Project Phase 6 (Eyring et al. 2016) や Detection and Attribution MIP (DAMIP, Gillett et al. 2016)をはじめと した様々な MIP に参画し、過去・現在・将来の気候 変動を理解するため、地球システムモデル (MRI-ESM2.0, Yukimoto et al. 2019)を開発した。

本研究は、ETCW における北極域の気温変化に対 する様々な外部強制力の寄与度を、MRI-ESM2.0 を 用いた DAMIP 実験とマルチモデル解析から定量的 に評価するとともに、それら外部強制応答が 30 年規 模の内部変動と比較したときに、強固なシグナルか どうかを検証することを目的とする。

2. モデル実験とマルチモデル解析

MRI-ESM2.0 は以下のコンポーネントで構成され る。大気モデルはMRI-AGCM3.5、解像度は水平1.125 度、鉛直 80 層 (T_L159L80)、海洋モデルは MRI-COM4.4 (Tsujino et al. 2017)、解像度は東西 1 度、南 北 0.5 度 (赤道付近は 0.3 度)、鉛直 61 層である。ま た MRI-ESM2.0 には、エアロゾル化学輸送モデルと 大気化学モデルが含まれており、エアロゾルやガス の強制力への気候応答について評価することが可能 である(Oshima et al. 2020)。

本研究では、全強制力を 1850 年に固定した piControl (CNTL) 実験を1メンバー600 年間、時間 変化する全ての強制力を与えた historical (HIST) 実 験を5メンバー165年間 (1850-2014)、温室効果ガス のみを与えた hist-GHG (GHG) 実験、人為起源エア ロゾルのみを与えた hist-aer (AER) 実験、自然起源 強制力(太陽と火山) のみを与えた hist-nat (NAT) 実 験を各3メンバー165年間 (1850-2014) 行った。ま た自然強制応答をさらに詳細に分析するために、太 陽活動のみを与えた hist-sol (SOL) 実験を3メンバ ー165年間行った。

マルチモデル解析に用いたモデルは、BCC-CSM2-MR、CanESM5、CESM2、CNRM-CM6-1、FGOALSg3、GFDL-ESM4、GISS-E2-1-G、HadGEM3-GC31-LL、 IPSL-CM6A-LR、MIROC6、NorESM2-LM、 MRI-ESM2-0 である。

3. 解析結果

MRI-ESM2.0 の HIST 実験は、20 世紀に観測され た北極域の気温変動について、ETCW を含め 1940 年 から 1970 年にかけて続く寒冷化および 1970 年以降 現在に至る急速な温暖化の再現に成功した。

ETCW に対する各外部強制応答からの要因を定量 的に見積もるために、GHG、AER、NAT についてア ンサンブル平均した 5 年移動平均地上気温(SAT)と 海氷面積の時系列について 1911~1940 年の 30 年間 における線形トレンドを計算した(図 1)。SAT は、時 系列を計算する前に北緯 70~90 度で空間平均され ている。内部変動の振幅も示してある。ETCW に対 する北極 SAT の自然強制応答は、0.88 (°C/30yr)と 見積もられ、内部変動の振幅 0.68 (°C/30yr)と比較し て 1.3 倍であり、強固な応答であることが分かる。 ETCW に対する太陽活動強制力への応答は弱いため、 低火山活動が ETCW の一要因であると考えられる。

マルチモデル解析の結果、自然強制応答は ETCW の主要因の一つであることが分かった。また、観測 された ETCW がある種の内部変動の影響を受けて いると仮定すると、自然強制応答と内部変動は同程 度の大きさであると見積もられた。



図1 各強制応答の大きさ(1911~1940の30年の線 形トレンド)と内部変動の振幅(各 panel 左の棒)。

春季の中部太平洋域におけるバイオエアロゾルの 時空間分布および起源同定

*川名華織¹、松本和彦¹、竹谷文一¹、宮川拓真¹、金谷有剛¹ ¹ JAMSTEC

1. 序

海洋表層中に存在する海洋生態系由来の有機態粒 子は風による巻き上がりによって大気中へ輸送され、 雲凝結核 (CCN) や氷晶形成粒子 (INP) として作用 する。特に INP 形成において、生物起源エアロゾル (バイオエアロゾル)は他の IN 活性粒子(鉱物粒子、 ダスト)と比べて高温条件下で IN 活性をもつ事か ら、高緯度域での氷雲中のみならず、中緯度での混 合層雲や低層雲中の INP 形成の起源として重要と考 えられる。しかし海域での観測は陸域に比べて稀少 であり、バイオエアロゾルの挙動や海洋一大気間で の相互作用、雲形成への寄与等の学術的知見は乏し い。

バイオエアロゾルの計測法として、アミノ酸や補 酵素といった生物細胞の発光・励起に由来する自家 蛍光を検出する方法が開発されてきた。また生物起 源粒子の識別・同定法として蛍光染色剤を用いて核 を染色し顕微鏡観察で数密度を測定する、生物学的 手法も合わせて用いられてきた。

本研究では大気中の蛍光性粒子について蛍光パタ ーンから起源を推定し、発生源と考えられる海水中 の生物起源有機態粒子や生物指標(クロロフィル、 バクテリア)との対応性をもとに、(1)海洋生物起源 物質や生物指標のうち何がバイオエアロゾルの起源 として作用しているか?(2)バイオエアロゾルの発 生量は定式化可能か?の2点について、取得された データを用いて検証を行った。

2. 観測概要

船舶観測は2019年3月6日~3月25日まで、中 部太平洋域(タヒチ~日本)を対象として、海洋地 球研究船「みらい」のMR18-06Leg4航海で実施され た。大気中蛍光性粒子の測定は、WIBS(Waveband Integrated Bioaerosol Sensor)-4Aを用いた自家蛍 光法でのオンライン連続測定と、DNA 染色法と顕微 鏡観察を組み合わせたオフライン測定の2つの方法 で行われた。海水中のゲル状有機態粒子(含多糖類 (TEP)、含タンパク質 (CSP))の濃度測定は、メン ブレンフィルタ上に海水をろ過してフィルタ上に粒 子を捕集し、フィルタを染色後、ろ液を吸光度測定 することによって行われた。また化学組成分析のた めに甲板上に設置したハイボリュームサンプラを用 いて、1サンプルにつき2日間、石英フィルタ上に 大気粒子の捕集を行った。

結果および考察

5日間の後方流跡線解析より、3/6~3/18は海洋性 気塊、3/19~3/25は中国大陸や日本などの陸域も含 む海洋・陸域両方の気塊の影響があったことが示唆 された。ハイボリュームサンプラで取得された PM2.5フィルタの化学組成分析では、海洋性気塊が 卓越する期間で0M、nss-sulfate,海塩がそれぞれ 平均で38%、25%、30%であり、海塩と有機態化合物 が多く存在していた。

WIBS で取得された直径 0.95 μm 以上の蛍光性粒 子の蛍光パターンとしては、F1(蛍光波長:280 nm, 励起波長:310-400 nm)とF3(蛍光波長:370 nm, 励起波長:420-650 nm)で69%、F2(蛍光波長:280 nm, 励起波長:420-650 nm)で20%であり、上記蛍 光パターンの粒子群が全体の89%を占めていた。

次に F1, F2, F3 に分類された蛍光性粒子につい て、生物指標(クロロフィル、バクテリア)や生物起 源有機態化合物(TEP, CSP)と相関性があるか検討 した。F1, F2, F3の蛍光性粒子数濃度は TEP あるい は CSP 数濃度との間に中程度の相関を示したが(R: 0.5~0.6)、バクテリア、クロロフィル数濃度とは相 関が低かった。一方、生物指標や生物起源有機態化 合物に風速をかけ合わせることによって風による表 層からの巻き上がりを考慮した場合、蛍光性粒子数 濃度は、TEP やバクテリアとより高い相関(R > 0.7) を示した。

これらの結果から、大気中蛍光性粒子数濃度は、 バクテリアや TEP といった生物粒子あるいは生物起 源有機態化合物と風速で表現可能であり、風速上昇 時、これらの生物起源粒子が巻き上がりとともに大 気中へと輸送され、大気中の蛍光性粒子(バイオエ アロゾル)として存在することが示唆された。

春季プレブルーム期の西部北太平洋亜寒帯域における

エアロゾル粒径分布および CCN 活性

*川名華織^{1,2}、宮崎雄三³、大森裕子⁴、谷本浩志⁵、鏡味沙良¹、鈴木光次⁶、 山下洋平⁶、西岡純³、Yange Deng^{1,7}、矢井ひかり^{1,7}、持田陸宏^{1,7}

¹名大環境学,²JAMSTEC,³北大低温研,⁴筑波大生命環境,⁵NIES,⁶北大地球環境, 7名大 ISEE

1. 序

大気中のエアロゾルは太陽放射を吸収・散乱する 事によって直接的に、また雲凝結核(CCN)として作 用し雲形成に関与することによって間接的に気候に 影響する。雲の形成を通じたエアロゾルの放射影響 の見積もりは不確定性が高く、大気エアロゾルに含 まれる CCN の特徴の解明は、全球の気候を考える上 で重要である。春季は海洋生物活動の活発化にとも なって海洋生物起源有機物を含む一次・二次粒子の 生成放出が起こりやすく、これらがエアロゾル数濃 度や CCN 活性に寄与する可能性がある。

本研究では、春季プレブルーム期に西部北太平洋 亜寒帯域における船舶観測で得られたエアロゾル粒 径分布と CCN 活性を解析し、組成との関係やエアロ ゾルの起源、CCN 活性の変動要因について考察した。

2. 観測概要

船舶観測は 2015 年 3 月 6 日から 26 日までの 21 日間、学術研究船白鳳丸 (KH15-01 航海) にて実施し た。PM2.5 サイクロンを通じてエアロゾル粒子を研 究室内の測定装置に取り込み、走査式モビリティパ ーティクルサイザ(SMPS)を用いて 5 分ごとにエアロ ゾル粒径分布(

14.1~710 nm)を測定した。また、走査式モビリティ CCN 分析システム(SMCA)を用い、20 分ごとに3 つの 過飽和度(0.1%, 0.2%, 0.6% SS)を切り替えて、CCN 効率スペクトルを取得した。同時に NOx 計、オゾン 計、BC モニターでガス(NOx, NOy, オゾン, BC)を、 PTR-QMS で大気・海水中の VOCs(DMS, イソプレン) を合わせて計測した。

また上甲板にハイボリュームサンプラを設置し、 石英フィルタ上に大気を吸引することによって化学 分析用のエアロゾルサンプルを取得した。

3. 結果および考察

自排気等の影響の除外のため風向風速によるデー タのスクリーニングを行った後(除去率45%)、エア ロゾルの発生とその寄与の推定のために、エアロゾ ル個数粒径分布と大気のガス・エアロゾルおよび海 水中成分の濃度を対象に、PMF 解析(EPA PMF ver 5.0)を実施した。粒径分布は基本的にエイトケン・ 累積モードからなる二峰性分布を示したが、期間に よっては3モードの分布を示した。発生源の解析に 用いる因子数は、Q値をもとに6因子を採用した。

6つの因子は、(1)(2)NOx・NOy、(3)BCと無機 成分・WSOC、(4)有機物と無機成分、(5)DMS,イソ プレン(大気)、(6)DMS,イソプレン(表層海水)、 クロロフィルa(表層海水)、海塩との関係が見られ た。粒子個数濃度および形状から、粒径分布は①陸 域からの輸送や船の排気による汚染の影響を受けた もの、②長距離輸送で粒径が成長したもの、③海洋 表層からの寄与、の3つの寄与を受けていると考え られる。

また 3/14 15:00~3/15 15:00 まで約1日間にわ たり、核生成からエイトケンモードに極大をもつ微 小粒子の爆発的な増加と粒径の成長イベントが観測 された。イベント期間中の5日間の後方流跡線解析 では自由対流圏由来ではなく、粒子濃度は 3/14 13:00~15:00 にかけていったん低下した後(~300 個 cm⁻³)、16:00 以降に急増加した(~20000 個 cm⁻ ³)。13:00~15:00 にかけて PMF 解析では③の寄与が 同定されており、また CCN 活性化粒径の低下や高い 吸湿性パラメータ(κ :1.2)からも海洋表層からの大 気への寄与が示唆された。一方で微小粒子の爆発的 な増加直後には過飽和度 0.2%, 0.6% での吸湿性パ ラメータは低く(κ:0.05-0.1)、粒径が小さい低吸 湿性粒子が存在していた。CCN 数濃度、活性化割合 も同期した変動パターンを示した。同期間の大気エ アロゾルサンプルの組成は不溶性有機物が全質量割 合の 50%近くを占めており、イベントにおいて有機 化合物を多く含む低吸湿な微小粒子が存在したこと を示唆する。

これらの結果は、陸域からの輸送や船舶からの汚 染といった人為的要因に加えて、春季の生物起源物 質や海洋表層からの寄与が、海洋大気エアロゾルの 数濃度や粒径分布、吸湿性や CCN 活性の変動要因と して重要である可能性を示している。

鉄安定同位体比に基づく西部北太平洋域エアロゾル中の 鉄の起源別の寄与の推定

*栗栖 美菜子¹,植松 光夫^{2,3},伊藤 彰記¹,坂田 昂平⁴,高橋 嘉夫² 1海洋研究開発機構,2東京大学,3埼玉県環境科学国際センター,4国立環境研究所

1. 背景

大気を介した海洋表層への鉄の供給は、北太平洋 域などにおいて生物生産を活発化させ、炭素循環に も影響を及ぼしうる(Martin and Fitzwater, 1988)。その ため、鉄の地球表層における循環を詳細に理解する ことは重要な課題である。大気エアロゾルのうち、 排出量の多い鉱物塵中の鉄が重要とされる一方、人 為的な高温燃焼などで発生する燃焼起源鉄は、排出 量は少ないものの溶解性が高いため、生物生産に寄 与しうる重要な鉄供給源と考えられている(Jickells et al., 2005; Sholkovitz et al., 2009)。大気輸送モデルに よってそれぞれの成分の寄与の推定が行われている 一方で(Ito et al., 2019)、観測から起源別の寄与を推定 することは難しく、特に外洋域における燃焼起源鉄 の寄与は未解明であった。

これまで筆者らは、人為的な高温燃焼により発生 する燃焼起源鉄が、-4‰程度の鉄安定同位体比 (δ⁵⁶Fe)を持ち、鉱物塵(0.0‰)や他の天然物質よりも 非常に低い δ⁵⁶Fe を示すことを明らかにしてきた (Kurisu et al., 2016; 2019)。この δ⁵⁶Fe の違いを指標に することで、海洋上においても、鉄の起源を明確に 区別した上でそれぞれの寄与や溶解性を議論できる と期待される。本研究では、西部北太平洋域におけ るエアロゾルの鉄安定同位体分析から、(i)鉄の起源 別の寄与推定を行い、大気輸送モデルによる推定と の比較を行うこと、(ii)燃焼起源鉄の存在が海洋エア ロゾルの溶解性にどの程度寄与するのかを考察する ことを目的とした。

2. 試料·手法

白鳳丸 KH-13-7,14-3 次航海(西部北太平洋域)において PTFE フィルター上に採取された粒径 2 分画エアロゾル試料を用いた。エアロゾル試料は酸分解による全体成分、または超純水で抽出された溶解性成分それぞれに対して、誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)を用いて鉄や微量元素の濃度分析を行った。また、鉄安定同位体分析は多重検出器型 ICP-MS を用た。さらに、溶解性や起源、大気中での反応を理解するため、X 線吸収微細構造(XAFS)法を用いた鉄化学種分析も行った。

3. 結果·考察

後方流跡線解析の結果から、エアロゾルを含む空 気塊のおおまかな由来を東アジア由来、中央・東太 平洋由来、北太平洋由来に大別した。東アジア由来 の試料では鉄濃度が太平洋由来の試料よりも高かっ た。同様の傾向は、地殻に多いチタン、人為起源物 質の指標となるバナジウムや鉛濃度についても見ら れ、東アジア由来の試料は自然・人為起源両方のエ アロゾルの影響を受けた試料であることが分かった。

鉄安定同位体比は、東アジア由来の試料の微小粒 子(<2.5 μm)が-0.5‰から-2.2‰程度で、粗大粒 子(平均 0.1‰)に対して非常に低い値を示した。人為 起源物質である一酸化炭素の濃度や鉛の濃縮係数が 高い時に微小粒子のδ⁵⁶Fe が低い値を示すことから、 この微小粒子の低いδ⁵⁶Fe は燃焼起源鉄の存在によ るものであると示された。海洋エアロゾルの全体成 分に対して燃焼起源鉄由来の低いδ⁵⁶Fe を検出した のは本研究が初めてである。一方、太平洋由来の空 気塊を得た試料は、粗大・微小粒子ともに地殻の平 均値0‰に近い値を示すものが多かったが、一部試 料では地殻よりも最大0.7‰高いδ⁵⁶Fe を示した。こ の理由としては①エアロゾルの輸送過程における同 位体分別、②燃焼起源鉄や鉱物塵以外の起源の鉄の 影響が考えられる。

東アジア由来の空気塊を得た試料では、 δ^{56} Fe が低いほど高い溶解率を示す傾向が見られた。このことは、燃焼起源鉄の寄与が見られる海域においては、その存在が鉄の溶解率を左右する大きな要因であることを示唆する。一方で太平洋由来の試料では溶解率は δ^{56} Fe との関連性はなく、他の要因が寄与することが示唆された。XAFS 法により推定された主要な鉄化学種のうち、比較的溶解性が高い ferrihydriteは、陸域と比較してその割合が高かった。これは大気輸送中の酸性物質との反応によると考えられ、鉄溶解率の増加に一部寄与したと考えられる。

Kurisu et al. (2019)から推定した燃焼起源鉄の同位 体比-4.3±0.4‰を用いた混合式により、エアロゾル 中の鉄全体に占める燃焼起源鉄の寄与は、最大 20% 程度と推定された。この結果と、大気輸送モデル (IMPACT)によって推定された燃焼起源鉄の寄与率 を比較すると、両者の傾向は類似しているが、特に 外洋域においてはモデルが燃焼起源鉄の寄与を大き く見積もる傾向が見られた。海洋(特に外洋域)にお ける観測データに同位体比を加え、起源に関する情 報を加えることで、より詳細な鉄循環の理解、定量 的な評価につながると期待される。

三酸素同位体組成(Δ¹⁷0)から示唆された東南極における 特徴的な大気硫酸生成反応

*石野咲子^{1,2}, 服部祥平¹, Legrand Michel³, Chen Qianjie⁴, Alexander Becky⁴, Shao Jingyuan⁴, Huang Jiayue⁴, Jaeglé Lyatt⁴, Jourdain Bruno³, Preunkert Susanne³, 山田明憲⁵, 吉田尚弘^{1,6}, Savarino Joël³

1 東京工業大学物質理工学院、2 情報・システム研究機構国立極地研究所、

3 IGE, Université Grenoble Alpes/CNRS, France, 4 Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, USA, 5 豊島電気製作所, 6 東京工業大学 地球生命研究所

1. 背景

大気中の硫酸(SO4²⁻)の三酸素同位体組成(Δ¹⁷O = δ^{17} O - 0.52× δ^{18} O)は、SO₂が酸化されて SO₄²⁻が 生成される過程において、オゾン (*Δ*¹⁷O ≒ 25-35‰)、 過酸化水素、OH ラジカル (Δ¹⁷O ≒ 0‰) などの各 種酸化剤との反応の寄与率を反映して変動する。こ の性質を利用して、南極アイスコア中の4¹⁷O(SO4²⁻) 値を制約条件とした大気化学輸送モデルを用いるこ とで、過去の大気酸化剤の変遷を復元する方法が提 案されている。しかし、実際に西南極のアイスコア 中の⊿¹⁷O(SO4²⁻)値を分析した先行研究 (Sofen et al., 2014) では、観測された変動に対して、現行のモデ ルで考慮していない硫酸生成反応が重要な役割を果 たしている可能性が指摘されている。本研究では、 東南極内陸 Dome C および沿岸 Dumont d'Urville に おいて採取されたエアロゾル中の△17O(SO42-)値を分 析し、その時間的・空間的変動をもとに、見落とさ れている硫酸生成反応の解明を試みた。

2. 試料と分析

エアロゾル試料は、東南極内陸 Dome C (75°06'S, 123°12'E) および沿岸 Dumont d'Urville (DDU; 66°40'S, 140°01'E) において、週ごとの解像度で継続的に採取 しているもののうち、2011 年の一年間の試料を用い た。 *Δ*¹⁷O 値は、東京工業大学の IRMS を用い硫酸銀 熱分解法によって分析した。

3. 結果と考察

 $\Delta^{17O}(SO_4^2)$ 値は、内陸と沿岸の両地点において、夏 期に最小、冬期に最大となる類似した季節変動を示 した(図1)。この変動は、夏期に日射の増大に伴い SO2酸化反応に対する過酸化水素やOH ラジカルの 寄与が高まることで説明される。一方で、春から夏 の一時期、沿岸よりも内陸で $\Delta^{17O}(SO_4^2)$ 値が特異的 に高くなる傾向が観測された(図1)。同時期に観測 されたエアロゾル中のその他のイオン成分との相関 解析から、南極内陸ではメタンスルホン酸(CH₃SO₃; MSA)の酸化分解反応によって $\Delta^{17O}(SO_4^2)$ 値の高い SO₄²⁻が生成されていることが示唆された。GEOS-Chem モデルによる南緯 60-90°S の MSA 生成プロセ スのシミュレーション結果(Chen et al., 2018)を用 いて MSA の Δ^{17O} 値を推定した結果、観測された $\Delta^{17O}(SO_4^2)$ 値の範囲と比べて約 10 倍高いと推定さ れ、MSA 酸化は SO_4²生成に対する寄与率が 10%程 度と低いにも関わらず、 $\Delta^{17O}(SO_4^2)$ 値の変動要因と して重要であることが示された。MSA の酸化は液滴 中または潮解性のエアロゾル表面で OH ラジカルと の反応により起こることが実験的に確認されている が、本研究の観測結果は、液相が極めて少ない南極 内陸の大気中においても MSA が酸化されることを 示唆する。

さらに、アイスコア中では $\Delta^{17}O(SO_4^2)$ 値がエアロ ゾル中で観測されるよりも2倍高いことが近年明ら かになりつつあるが、この大気-雪氷間の指標の不一 致も、積雪中での MSA 酸化により説明可能である ことを明らかにした。この結果は、アイスコア中の $\Delta^{17}O(SO_4^2)$ 記録の解釈を大きく変化させる可能性が ある。



図1 非海塩性硫酸(nss-SO₄²)の⊿¹⁷O 値観測結果と MSA/nss-SO₄²⁻比との比較

硫化カルボニルの硫黄同位体分析とその応用 -ミッシングソースの特定と全球収支解明-

*服部祥平¹, 亀崎和輝², 吉田尚弘¹ 1 東京工業大学, 2 上智大学

1. 背景

硫化カルボニル(OCS)は、対流圏大気中で最も豊 富に存在する還元性硫黄化合物であり、成層圏硫酸 エアロゾルの主たる硫黄供給源として地球の負の放 射強制力に寄与している。また、OCS は、光合成に おいて CO₂と同時に吸収されるため、植物が吸収す る CO₂ 量(= 一次生産量)を間接的に推定できる指標 としても注目されている。しかし、OCS の対流圏ソ ースについて約 60%の起源が不明、つまりミッシン グソースの存在が知られていた。そこで、このミッ シングソースの由来を理解するため、主要なソース と考えられる人為由来と海洋由来を区別できる硫黄 同位体比(δ³⁴S 値)の適用を着想した。

2. 分析手法の確立と観測地点

OCS のδ³⁴S 値を分析するため、安定同位体比質量 分析計に OCS 直接導入しイオンソース内で生成す る S⁺フラグメント(*m*/*z*: 32, 33, 34)を測定する手法を 開発した[1]。この手法を大気試料に応用するため、 約 200~500 L の大気から OCS を濃縮捕集する装置 も開発した[2]。

本研究ではこれらの分析手法を日本国内の3箇所 (宮古島(北緯24度、東経125度)、横浜(北緯35度、 東経139度)、小樽(北緯43度、東経141度))に適用 し、2019年の冬期と夏期および2020年の冬期に大 気観測を実施した(図1)。



図1 本研究の観測地点

3. 結果と考察

OCS の濃度及びδ³⁴S 値は、冬期に北から南にかけ て勾配が見られ、宮古島の OCS 濃度は高くそのδ³⁴S 値は低かった。キーリングプロット解析によると、 冬期の南北の OCS の濃度及びδ³⁴S 値はキーリング プロット上で直線関係にあり、OCS はバックグラウ ンドと人為ソースの2成分混合であることを示唆し ていた。宮古島には目立った硫化カルボニル発生源 がなく、大気塊の起源が中国の人為活動が活発な地 帯を通過していることから、冬期の南北の濃度及び δ^{34} S値の勾配は、中国の人為活動に由来する OCS の 寄与であると示唆された。

本研究の観測値や、イスラエルとカナリヤ諸島の δ^{34} S値[3]から、北半球の OCS のバックグラウンド δ^{34} S値を 12.0~13.5‰と見積もり、これを用いた全 球 OCS 収支を計算した。この結果、ミッシングソー スを海洋に由来するとする説ではバックグラウンド δ^{34} S値と矛盾し、ミッシングソースの最大 40%が人 為活動に由来すると仮定すると、観測された OCS の δ^{34} S値と一致した(図 2)。以上から、OCS ミッシング ソースにおいて、人為活動に由来する OCS がこれま で考えられていた以上に重要であることが示唆され た[4]。



図2 硫黄同位体比による全球 OCS ソース推定

4. 引用文献

1. Hattori, S., Toyoda, A., Toyoda, S., Ishino S., Ueno, Y., Yoshida, N.: Determination of the Sulfur Isotope Ratio in Carbonyl Sulfide Using Gas Chromatography/Isotope Ratio Mass Spectrometry on Fragment Ions ³²S⁺, ³³S⁺, and ³⁴S⁺, *Anal. Chem.*, 2015, 87, 477–484.

2. Kamezaki, K., Hattori, S., Bahlmann, E., and Yoshida, N.: Large-volume air sample system for measuring ³⁴S/³²S isotope ratio of carbonyl sulfide, *Atmos. Meas. Tech.*, 2019, 12, 1141-1154.

Angert, A., Said-Ahmad, W., Davidson, C., & Amrani,
 A. (2019). Sulfur isotopes ratio of atmospheric carbonyl sulfide constrains its sources. *Scientific reports*, 9(1), 1-8.
 Hattori, S., Kamezaki, K., & Yoshida, N. (2020). Constraining the atmospheric OCS budget from sulfur isotopes. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 117(34), 20447-20452.

日本海に沈着する大気窒素化合物が表層植物プランクトン 濃度へ与える影響評価

*竹谷文一¹,相田真希¹,関谷高志¹,山地一代^{1,2},池田恒平³,松本和彦¹, 本多牧生¹,金谷有剛¹

1海洋研究開発機構,2神戸大学,3国立環境研究所

1. はじめに

西部北太平洋域は、東アジア域の砂漠起源の土壌 粒子および人間活動により放出された大気物質が、 季節風によって輸送される際の風下域に位置してい る。これまで、大気中のエアロゾル粒子の海洋への 沈着においては、海洋表層の植物プランクトンへの 栄養供給過程の一つとして考えられており、窒素化 合物などの栄養塩が少ない貧栄養塩海域では、大気 からの栄養塩供給過程が、海洋の一次生産に影響を 与えている可能性が示唆されている。本研究では、 西部北太平洋域において半閉鎖縁海である日本海に 注目し、大気からの窒素化合物沈着過程が表層のク ロロフィル濃度(植物プランクトン存在量)に与える 影響に関する可能性を評価した。

2. 解析方法

大気化学領域輸送モデル(WRF-CMAQ)と海洋低 次生態系モデル(COCO-NEMURO)をオフライン結 合した数値実験を実施した。

WRF-CMAQ を用いて,2008 年の12 月から計算を 開始し,2009 年から2016 年の7 年間分の粒子状お よびガス状窒素化合物の日本海への沈着量を計算し た。本研究では大気中のガス状硝酸・アンモニアお よび粒子中の硝酸・アンモニウムイオンを区分せず に海洋中では取り扱った。

Flux (NO₃) = Flux (HNO₃(gas)) +Flux (NO₃⁻(aerosol)) Flux (NH₄) = Flux (NH₃(gas)) + Flux (NH₄⁺(aerosol)) また、大気から海洋表面に沈着する窒素化合物(NO₃ および NH₄)は全て生物利用可能な窒素化合物と仮 定した。WRF-CMAQ で計算した 7 年間の月平均値 の Flux (NO₃)および Flux (NH₄)データを COCO-NEMURO に新規栄養塩として導入し,大気からの 沈着過程を考慮した場合と考慮しない場合で,日本 海における海洋表層のクロロフィル a 濃度の変化を 比較した。

3. 結果および考察

図1 大気化学領域輸送モデルから見積もられた 日本海を含む西部北太平洋域に沈着する窒素化合物 の総フラックス(Flux (NO₃)+Flux (NH₄))の年平均値 分布を示した。アジア大陸に近い日本海では西部北 太平洋外洋域によりも窒素化合物の沈着フラックス が高く、大陸の影響を強く受けていることが示され た。日本海への窒素化合物の沈着フラックスの月平 均値は 82 – 302 µmol/m²/day の範囲で変化しており, すべての季節で湿性沈着が支配的であった。図 2 に 海洋低次生態系モデルで見積もられた日本海表層の クロロフィル a 濃度の月・年平均値を示した。月・ 年平均値ともに大気窒素化合物の供給がある場合, 表層クロロフィル濃度が増加することが示された。 年平均値で日本海表層のクロロフィル a 濃度は 0.26 mg/m³ から 0.35 mg/m³ に増加することが示された。 また,季節別の効果に関し,夏季は 2.1 倍,冬季は 1.1 倍になることが示され,特に,大気からの窒素化 合物の供給が夏季に海洋表層のクロロフィル a 濃度 に大きな影響を及ぼす可能性が示された。



図1WRF-CMAQにより計算された海洋に 沈着する窒素化合物の年平均値(破線 で囲まれた海域(日本海)を解析)



12日本海への窒素化台物沈着有無による 表層クロロフィル濃度の月・年平均値

ポスター発表 要旨

Light absorption properties of brown carbon aerosols at Fukue Island based on filter observation and remote sensing

*Chunmao Zhu¹, Takuma Miyakawa¹, Hitoshi Irie², Yongjoo Choi¹,

Fumikazu Taketani¹, Yugo Kanaya¹

1 Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

2 Chiba University

1. Introduction

Brown carbon (BrC) aerosols are highly light absorbing in the ultraviolet to visible spectrum. Global model works indicated that BrC is accounting for ~25% to ~35% of direct radiative forcing by carbonaceous aerosols at the tropopause globally (Zhang et al., 2020). However, the role of BrC in contribution to the radiative balance are still largely uncertain. BrC aerosols are emitted mainly from natural sources such as burnings of biomass and solid fuel. Reaction of ammonia with secondary organic aerosols from biogenic and anthropogenic precursors is another category of BrC source. Recent studies indicated that BrC could also be emitted from biogenic sources. To better constrain the radiative transfer models for more accurate prediction of future climate, it is of fundamental importance to unravel the optical properties of BrC.

China is promoting shift of energy use from fossil fuel to sustainable resources, to which BrC emissions are predicted to increase in the coming years. BrC could also be emitted from crop residue burning in China and forest fires in Russia, the latter is predicted to occur more frequently in 2100 (Veira et al., 2016). However, observation about the light absorption properties of BrC aerosols is very limited. Ground-based remote sensing observation, such as those based on SKYNET network, is a powerful platform to provide long-term optical properties of carbonaceous aerosols including BrC. On the other hand, filter-based observation could provide accurate results which could be used to validate remote sensing observation. In this study, we investigated the light absorption properties of BrC based on filter-bsed observation and ground remote sensing at Fukue Island.

2. Methods

2.1 Filter-based observations

PM_{2.5} samples were collected to Teflon (PTFE) filters automatically using the Continuous Particulate Monitor with X-ray Fluorescence (PX375, Horiba Inc.) by attaching a cyclone in the sampling inlet at Fukue Island. Organic aerosols in the filters were extracted using methanol followed by syringe-filtration to remove black carbon (BC) and mineral particles. The light absorption coefficient and Absorption Angstrom Exponent (AAE) of BrC were quantified based on measurement of light absorption spectra in the UV-visible light (300–800 nm).

2.2 Ground remote sensing observations

The SKYNET observational data at Fukue Island were used to derive the absorptive aerosol optical depth (AAOD) based on the aerosol optical depth and single scattering albedo. AAE of BrC based on remote sensing observations will then be derived based on the light absorption characteristic differences among BrC and BC.

3. Results and discussions

We found that AAOD of BrC agreed well with filterbased estimation of light absorption coefficient (r=0.86, p < 0.01), which co-varied with BC as well. Such results indicated that BrC is mainly from fossil fuel combustion and biomass burning in the source region. Filter-based AAE showed a linear correlation (r = 0.96, p < 0.001) with those derived from SKYNET observation but 43% higher values, suggesting that BrC based on the SKYNET observations should be upward corrected. Further investigations are needed toward the effects of aerosol vertical profile, size distribution, and humidity conditions on the correlations.

Comparison of extraction methods indicated that methanol is more representative for filter-based study of BrC light absorption than using water. Based on atmospheric transport model Flexpart and VIIRS fire hotspots, we identified high BrC event being related to open burning in Northern China. The study adds information to better understand the dynamics of lightabsorbing organic aerosols in East Asia.



340-500 nm without BC

Figure 1. Comparison of AAE of BrC derived from filter-based observation and ground remote sensing.

References

Veira et al., J. Geophys. Res., 121, 3195–3223, 2016. Zhang et al., Atmos. Chem. Phys., 20, 1901–1920, 2020.

福江島における微小エアロゾル元素組成・ブラックカーボンの高時間分解観測:モデルによる人為起源鉄排出量の過小評価に関する知見

*宮川拓真¹, 伊藤彰記¹, 朱春茂¹, 金谷有剛¹ 1海洋研究開発機構 地球環境部門

1. はじめに

エアロゾル粒子中の微量元素成分、特に窒素、鉄、 リン、銅などは大気海洋物質循環を通して、海洋性 生物化学に大きな影響を与える (Mahowald et al., 2018)。また、この中で、ダスト由来の鉄だけでなく、 人為的な燃焼起源の鉄が重要な役割を担っているこ とも明らかとなりつつある (Ito et al., 2019)。

従来、エアロゾル中の微量金属成分は、フィルタ ー採取と事後的な化学分析により定量することがも っぱらであったが、近年準リアルタイムでの計測を 可能とする計測器が開発された(堀場製作所製 PX-375; Asano et al., 2017)。 その他の大気組成成分との 同時計測や化学輸送モデルなどとの連携からエアロ ゾル中微量元素のさらなる動態把握に期待がかかる。

本研究では PX-375 を長崎県福江島において連続 運転し、我々のグループがこれまで継続している大 気組成観測と連携し、放出/消失過程に関する研究を 行うとともに、モデルとの比較から東アジア域にお ける人為起源鉄の排出量評価を進めた。

2. 大気観測

2018 年春季に長崎県福江島大気観測所 (北緯 32.75 度, 東経 128.68 度) の JAMSTEC コンテナに PX-375 を設置し、PM_{2.5}カットのサイクロン (URG) により微小画分に焦点を絞り、夏季7月末まで大気 観測を実施した。今回の解析対象成分は硫黄 (S)、鉛 (Pb)、銅 (Cu)、マンガン (Mn)、鉄 (Fe)、カルシウム (Ca) とする。その他の大気組成として、同時計測さ れた一酸化炭素 (CO, model 48TLE, Thermo Fisher Scientific) 及びブラックカーボン (BC, MAAP model 5012, Thermo Fisher Scientific) も合わせて解析した。

3. モデル

本研究では微小画分なエアロゾル鉄の発生起源解 析を目的に、モデルとの比較を行った。使用したモ デルは IMPACT (Integrated Massively Parallel Atmospheric Chemical Transport Model, e.g., Ito et al., 2019) で、タグ付き計算により鉄についてはダスト 起源・燃焼起源と分離して算出できる。排出インベ ントリとして、CEDS と MEIC を利用した。それぞ れ 2014 年時点および 2017 年時点の人為起源排出量 を基にしており、近年の BC などにおいてはっきり と効果が表れている中国の人為起源排出量の削減の 効果 (Kanaya et al., 2020) を検証した。

4. 結果概要

これまでよく知られている通り、BC や CO と同様 に、解析対象である元素成分についても春季>夏季 の季節変化を示し、季節風の変化に対応して、東ア ジアのアウトフローがこれらの濃度レベルを変えて いることがわかった。Pb や Cu といった成分は BC や CO と良い相関を持つことも分かり、後方流跡線 解析と組み合わせたフットプリント解析からも、中 国中部(北緯 30-40 度)から気塊が輸送される場合 に高濃度となっていた。降水影響を最小限にしたデ ータセットからこの2成分の CO に対する放出比を 算出したところ、Pb で 97.8 (±4.1) µg g⁻¹、Cu で 37.4 (±2.5) µg g⁻¹ であった。

燃焼起源鉄を既往研究 (Yoshida et al., 2018) で示 されている BC との比から算出し、全鉄との比較か ら、微小エアロゾル画分の鉄の主成分はダスト起源 (~82%) であることがわかった IMPACT モデルによ る燃焼起源鉄の算出結果と比較したところ、特に CEDS (2014 年時点の排出量推計) よりも MEIC (2017 年時点の排出量推計) を用いた計算時に燃焼 起源鉄を過小評価する傾向であった。中国における BC の排出量の減少傾向は MEIC で示唆され、我々 の既往研究 (Kanaya et al., 2020) で検証されている が、燃焼起源鉄においても BC と同様に排出量を下 げる処置は誤りである可能性を示唆している。タグ 付き計算から過小評価要因を調べたところ、産業セ クターの燃焼起源鉄の改善が重要であることが分か った。変わりゆく人為起源物質の大発生源である東 アジア域においては、今後も継続的な鉄の人為起源 排出量に関する研究が必要であると考えられる。

謝辞

本研究は鉄鋼環境基金と JSPS 科研費 JP20H04329 の支援を受けました。福江島における大気観測にお いては久保実氏、入江仁博士、PX-375の運用に関し ては、松本絵里佳氏、水野祐介氏に支援をいただき ました。

引用文献

- Asano et al. (2017), Earth Space Chem., 1, 9, 580-590.
- Ito A., et al. (2019), Sci. Adv., 5, eaau7671.
- Kanaya et al. (2020), *Atmos. Chem. Phys.*, https://doi.org/10.5194/acp-20-6339-2020.
- Mahowald N. M., et al. (2018), Nat. Comm., 9:2614.
- Yoshida, A., et al. (2018), J. Geophys. Res.-Atmos., 123, 11194–11209. https://doi.org/10.1029/2018JD028665

人為起源排出インベントリの違いが北極ブラックカーボン のシミュレーションに及ぼす影響

*池田 恒平¹,谷本 浩志¹ 1国立環境研究所 地球環境研究センター

1. はじめに

北極圏は地球上で最も速く温暖化が進行している 地域であり、気温は全球平均のおよそ2倍の速度で 上昇している。ブラックカーボン(BC)は、太陽光 を吸収する性質があり、大気を加熱したり、積雪や 海氷面に沈着して太陽光の反射率を下げ、雪氷の融 解を促進することで、気候変動を加速する可能性が 指摘されている。

北極圏における BC の発生源や気候への影響を理 解するには、モデルによる北極 BC の時空間変動の 再現が不可欠である。しかし、化学輸送モデルや化 学気候モデルで北極域の BC 濃度の季節変動を再現 することは難しく,モデル間のばらつきも大きいこ とが報告されている。モデルによる BC の再現が困 難な理由としては,まず BC 排出量の推計には大き な不確実性があり,特に北極域の BC に対しては, 従来のインベントリに含まれていない発生源からの 影響も挙げられている。また、モデルの不確実性の 原因には,BC の疎水性粒子から親水性粒子への変 質過程や,湿性除去過程が十分に理解されていない ことが指摘されている。

本研究では、全球化学輸送モデル GEOS-Chem を 用いて、複数の人為起源インベントリの BC 排出量 を入力値として与えた計算を行い、北極圏の BC 濃 度への影響を調べた。GEOS-Chem の計算にはタグト レーサー法を用いることで、排出インベントリの違 いによる北極 BC への影響を発生源地域別に分けて 評価した。

2. モデル計算

本研究で使用した GEOS-Chem v9-02 は NASA/GMAOが提供する気象場GEOS-5で駆動する 全球大気化学輸送モデルであり、解像度は2°x2.5°、 鉛直47層で計算した。GEOS-Chemの計算には、タ グトレーサー法(Ikeda et al., 2017)を用い、発生源 の種別は人為起源とバイオマス燃焼を区別している。 人為起源の発生源地域は16領域に分割し、東アジア 内は4地域(日本、朝鮮半島、北・南中国)、ヨーロ ッパ、ロシア、北米等の領域を設定した。

本研究で用いた人為起源の全球排出インベントリ は、HTAPv2, MACCity, ECLIPSEv5a, CEDS, EDGARv4.3.2 である。また、アジア領域を対象とし た REASv2.1 とロシアを対象としたインベントリ (Huang et al., 2015)を全球インベントリ(HTAPv2) と組み合わた実験も行った。バイオマス燃焼起源の インベントリには GEFDv3.1 を使用した。モデル計 算は 2009–2011 年の 3 年間を対象に行った。

3. 結果と考察

北極圏の Barrow, Alert, Ny-Alesund, Tiksi における BC の地上観測値とモデルによる計算結果を比較し た。これらのサイトでは、BC 濃度が上昇し、人為起 源 BC の寄与が大きくなる冬季~春季において、排 出インベントリによる差が大きくなった。Barrow(ア ラスカ)では、モデルの1月平均値は33-110 ng/m³ であり、最大値と最小値で約3倍の濃度差が見られ た(2007-2011 年平均の観測値は 54 ng/m³)。最も高 い濃度を示したのは CEDS を用いた計算で、次いで ECLIPSEv5a が高く、最小値となったのは EDGARv4.3.2 であった。発生源地域別のトレーサー を見ると、冬季に最も大きな差を示したのは、ロシ ア起源の BC であり、1 月平均値は 5-50 ng/m³と最 大値 (CEDS) と最小値 (EDGARv4.3.2) に 10 倍の 差が見られた。Barrowにおいて、東アジア起源のBC は、春季(3月)にピークを示し、モデルの月平均値 は 14-32 ng/m³と最大値(ECLIPSEv5a)と最小値 (EDGARv4.3.2) には約2倍の差があった。東アジ ア起源 BC の濃度差は、主に中国北部の BC 排出量 のインベントリ間の差が反映されたものと考えられ る。

北極圏全域(北緯 66°-90°)で平均した BC の年平 均濃度の鉛直分布について、6 種類の排出インベン トリによるモデル計算の結果を比較した。地表面か ら高度 8 km まで対流圏全体でインベントリの違い によって、20-50 ng/m3の差が見られた。地表面での BC 濃度は、最大値と最小値に 47 ng/m³の差があっ た。ロシア起源の BC には 35 ng/m³の差があり、地 表面の BC 濃度差の主な原因となっていた。対流圏 中層の高度 5 km では、インベントリの違いによっ て 20 ng/m³の差があった。この内 10 ng/m³は、東ア ジア起源の BC の差によるものであった。インベン トリの違いによる BC 濃度差は北極圏内の高度によ って、影響する発生源地域が異なっており、これは 発生源地域による到達高度の違い(ロシア起源 BC は地表付近で輸送され、東アジア起源 BC は対流圏 中層から北極圏に流入する)が反映されている。

引用文献

Ikeda, K. et al. (2017), Atmos. Chem. Phys., https://doi.org/10.5194/acp-17-10515-2017.

クリーギー中間体の反応メカニズムの導入による 化学輸送モデルの硫酸塩再現性の精緻化

*板橋 秀一¹,内田 里沙²,山地 一代³,茶谷 聡⁴ 1 電力中央研究所,2 日本自動車研究所,3 神戸大学,4 国立環境研究所

1. はじめに

大気汚染物質の発生・輸送・化学反応・沈着の一 連の過程を数値的に表現し、大気汚染物質の濃度の 時間変化を計算可能な化学輸送モデルは、微小粒子 状物質(PM_{2.5})等の動態解析に有用な手法である. しかし、一般にはモデルは PM_{2.5} 濃度を過小評価す る傾向にある(Yamaji, 2020).わが国の PM_{2.5}の主要 成分である硫酸塩(SO₄²⁻)に対しては、一般的には 化学輸送モデルは良好な再現性を有しているが、例 えば冬季には過小評価する傾向にある(Itahashi et al., 2019).本研究では、モデル再現性の精緻化を目指し、 クリーギー中間体の反応メカニズムを導入すること を試みた結果について報告する.

2. 手法

米国環境保護庁がオープンソースとして公開している Community Multiscale Air Quality (CMAQ) version 5.2.1 を用いた(EPA, 2018). モデルへの入力データである排出量データおよび気象データは、わが国のモデル間相互比較プロジェクト(Japan's STudy for REference Air quality Modeling; J-STREAM)による配布データを利用した(Chatani et al., 2018).

モデルでは SO_4^2 の生成過程について、気相反応は OH ラジカルとの酸化を、液相反応は H_2O_2 をはじめ 5 種類の酸化過程を考慮している.本研究では、ま ず以下の 9 つの反応式について、クリーギー中間体 を考慮可能なようにした.

 O_3 + ethene $\rightarrow \dots + 0.370 \times SCI1$

 O_3 + propene \rightarrow ... + 0.185×SCI1 + 0.075×SCI2

 $O_3 + 1,3$ -butadiene $\rightarrow \dots + 0.185 \times SCI1$

 $O_3 + OLE1 \rightarrow \ldots + 0.185 \times SCI1 + 0.159 \times SCI3$

- $O_3 + OLE2 \rightarrow \dots + 0.024 \times SCI1 + 0.065 \times SCI2$
- $+ 0.235 \times SCI3$ O₃ + isoprene $\rightarrow \dots + 0.204 \times SCI1$
- O_3 + lumped isoprene products $\rightarrow \dots + 0.100 \times SCI1$ + 0.372×SCI3

 O_3 + terpene \rightarrow ... + 0.172×SCI1 + 0.068×SCI3 O_3 + sesquiterpene \rightarrow ... + 0.172×SCI1 + 0.068×SCI3 ここで SCI1, SCI2, SCI3 は順に CH₂OO, CH₃CHOO, (CH₃)₂COO であり,反応式中の収率は CMAQ で利 用可能な SAPRC-07 気相反応式のギ酸,酢酸,プロ ピオン酸の収率をそれぞれ利用した.OLE1 と OLE2 は OH との反応速度で分類したアルケンを指す.そ の上で, SO₄²生成に係る次の4式を新たに導入した. SCI1 + H₂O →

 $\begin{array}{ll} SCI1 + SO_2 \rightarrow formaldehyde + H_2SO_4 & (R1) \\ SCI2 + SO_2 \rightarrow acetaldehyde + H_2SO_4 & (R2) \end{array}$

 $SCI3 + SO_2 \rightarrow lumped aldehydes + H_2SO_4$ (R3)

```
5C15 + 5C_2 \rightarrow \text{fulliped aldenydes} + 11_25C_4 (K5)
```

ここで $k_1 = 3.9 \times 10^{-11}$ (Welz et al., 2012), $k_2 = 4.55 \times 10^{-11}$ (Taatjes et al., 2013), $k_3 = 1.3 \times 10^{-10}$ (Huang et al., 2015) である. SCI2 の異性体は考慮していないため, k_2 は異性体別の報告値の平均とした. SCI1 と H₂O の 速度定数には 9.0×10^{-17} (Stone et al., 2014) を用いた.

3. 結果と考察

図1には冬季平均のSO₄²濃度と,クリーギー中間 体を導入したことによる濃度の増加率を示す. 韓国 から日本にかけて 5~10%ほど濃度が増加し,モデ ル再現性が向上することが確認できた.

本発表では、文献によってオーダーで異なる速度 定数が報告されている SCI1 と H₂Oの速度定数への 依存性や、他の季節における再現性について、より 詳細な議論を行う予定である.



図1(上) CMAQ の冬季平均 SO₄²濃度,(下)クリ ーギー中間体の導入による SO₄²濃度の増加率

参考文献

EPA (2018) https://doi.org/10.5281/zenodo.1212601 Chatani, S. et al. (2018) *Atmosphere*, **9**, 19.

Huang et al. (2015) PNAS, 112, 10857-10862.

Itahashi, S. et al. (2019) Atmosphere, 10, 544.

Stone et al. (2014) *PCCP*, **16**, 1139.

Taatjes et al. (2013) Science, 340, 177-180.

Welz et al. (2012) Science, 335, 204-207.

Yamaji, K. et al. (2020) Atmosphere, 11, 222.

IMPACT モデルでの粗大ダストエアロゾル放射効果

*伊藤彰記¹, Adeyemi A. Adebiyi², Yue Huang², and Jasper F. Kok² 1海洋研究開発機構, 2カリフォルニア大学

1. はじめに

地球温暖化対策の枠組みを取り決めた「パリ協定」 では、産業革命以前から将来に起こりうる気温上昇 を2度未満に抑えるという目標を掲げている。しか し、地球温暖化を予測する最新の気候モデルでは、 自然起源エアロゾルによる放射効果が適切に表現さ れていない。そのため、過去の気温再現実験でエア ロゾルによる冷却効果をどの程度強く見積るかによ って、将来、2 度を上回る年が数十年異なって予測 される。その一因として、「鉱物エアロゾル」による 放射効果の理解不足が挙げられる。鉱物エアロゾル は、短波および長波の光を吸収・散乱することによ り、領域的に気候へと影響を与える。そこで、領域 ごとに観測される鉱物エアロゾルによる光吸収・散 乱特性の変動要因の解明が、自然起源エアロゾルに よる放射効果の理解不足を補うと考えられる。本研 究では、大気化学輸送モデルに放射伝達モデュール を導入して、様々な感度実験を行った。

2. 手法

大気化学輸送モデルとしては、「IMPACT」を用いた。この数値モデルの予測結果は、数値モデル相互比較プロジェクトなどで大気中のエアロゾル観測結果などを用いて、これまで評価されてきている(Ito et al., Sci. Adv., 2019)。

先に報告したオフラインの放射伝達モデル(Ito et al., Sci. Rep., 2018) は、ダストエアロゾルによる長波の放射効果に関して、非常に簡略化された手法を用いていることが、問題視されていた。本研究では、放射伝達モデュールとして、「RRTMG」(Iacono et al., J. Geophys. Res., 2008) を IMPACT モデルに導入した。この数値モデュールは、様々な気候モデルや大気化学輸送モデルで用いられている。

先に報告した研究 (Adebiyi et al., Atmos. Chem. Phys., 2020) により、IMPACT モデルは、微小粒子を 過大評価し、粗大粒子を過小評価することが指摘さ れた。そこで、観測の制約をより強く考慮に入れた

「DustCOMM」データセット (Adebiyi & Kok, Sci. Adv., 2020) を用いて (図 1)、大気上端における鉱物 エアロゾル放射効果に影響を与えるパラメーターに 関する感度実験を行った。

3. 結果と考察

夏季に、サハラ砂漠から発生した鉱物エアロゾル による放射効率は、観測に基づいた推定値と良い一 致を示した。続いて夏季に着目した解析を行った結 果、観測データによる制約条件を強く加えた場合、 粗大ダストエアロゾルによる温暖化効果を観測によ る制約条件の弱い予測結果と比較して大きく算出し た。同様に、より強い温暖化効果は、より吸収性の 高い放射指標を用いることによっても算出された。 それらに比べて、粒子形態と地表面状態のダストエ アロゾル放射効果への影響は小さかった。

今回得られた結果から、地球規模において、鉱物 エアロゾルによる粗大粒子の温暖化効果が働き、微 小粒子による大気冷却効果は、打ち消されることが 示唆された。ここで、粗大粒子は微小粒子と比べて 大気中での寿命が短く、濃度の空間分布が異なる。 そのため、夏季に、大規模発生源付近において、粗 大粒子がより強い温暖化をもたらし、気候フィード バックに影響を及ぼすことが予想される。従って、 粗大ダストエアロゾルに関する改善は、今後、地球 システムモデルの改良に必要となる。



図1 DustCOMM による粒径別のダスト負荷の制約 前後での比較。DustCOMM を用いて、IMPACT モデ ルでの、微小粒子の過大評価、および、粗大粒子の 過小評価を補正した。

長石の鉱物学的特性と氷晶核能との関連性

田所耕平¹,岩田步²,伊藤康平³,水上知行⁴,*松木篤⁵

1 金沢大学自然科学研究科, 2 慶応義塾大学理工学部, 3 金沢大学理工学域, 4 金沢大 学地球社会基盤学系, 5 金沢大学環日本海域環境研究センター

1. はじめに

黄砂に代表される鉱物ダストが大気中における氷 晶核(INP: Ice Nucleating Particle)として重要な働き を持つことは約半世紀以上も前から指摘されてきた が、その物理的・化学的特性と氷晶核能との関連性 については長らく謎に包まれたままだった。近年、 純粋な鉱物試料の INP 活性が調べられ、鉱物ダスト にわずかに含まれるカリ長石の存在がその INP 活性 を決定づける重要な要因であることが指摘され

(Atkinson et al., 2013)、以降、なぜカリ長石(特に Microcline)がそれほど高い INP 活性を持つのかにつ いて、化学的、結晶学的、構造学的な観点から様々 な研究が行われている。本研究では、長石の表面構 造に着目し、鉱物薄片上で過冷却水滴が凍結する様 子を観察することで、表面の化学組成、物理的構造 と凍結温度との対応を検討した。

2. 実験手法

本研究ではカリ長石グループに属する Microcline、 Sanidine と斜長石グループに属する Albite の計 3 種 の試料を用いた。表面構造との関連性に注目するた め、鉱物試料を 0.25 µ m までの研磨剤とスモールグ ラインダーを用いて物理的研磨を行い、鉱物薄片を 作成した。

実験では、長石の薄片試料を閉鎖セル中のコール ドステージ(THMSG600, Linkam Scientific Instruments, UK)上に移し、光学顕微鏡観察下で冷却、薄片上に 水滴を作成して凍結する部位を観察することで表面 構造との関連性を調べた(Iwata and Matsuki, 2018)。 セルに導入する空気(0.5 L/分)の露点を-6℃~-3℃ の範囲に、コールドステージ上のサンプル温度を-20℃~0℃の範囲内にそれぞれ調整することにより、 長石薄片上に水滴発生~氷晶形成する様子を観察し た。また、試料を原子間力顕微鏡(AFM)で分析し、 表面の物理構造を観察した他、EPMAを用いて各試 料に含まれる元素の定性・定量分析を行った。

3. 結果·考察

異なる三種の長石薄片を凍結させた結果、凍結温 度は Microcline、Albite、Sanidine の順に高い傾向が みられ、これは従来の粉末試料を用いたバルクでの INP 活性評価の結果と整合的であった。また、高い 氷晶核活性を示した Microcline 表面を原子間力顕微 鏡 (AFM) を用いて観察したが、凍結箇所と表面の 物理構造に強い関連性は確認できなかった。一方で、 興味深いことに、Microcline に一部含まれる Na に 富む部位で優先的に氷晶が形成される現象が確認出 来た(図1)。このことから、Microcline が持つ INP 活性は、その大部分を占めるカリウムに富む Microcline 表面そのものではなく、むしろ Microcline に特徴的に見られるパーサイト組織中の(ナトリウ ムに富む部分が層状に分離している)わずかな Albite 部位に起因する可能性が指摘された。

参考文献

- Atkinson et al., The importance of feldspar for ice nucleation by mineral dust in mixed-phase clouds, *Nature*, **498**, 355–358 (2013)
- Iwata and Matsuki, Characterization of individual ice residual particles by the single droplet freezing method: a case study in the Asian dust outflow region, *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, 1785–1804 (2018)



図1 Microcline 薄片試料の光学顕微鏡画像
 (上)、および EPMA による元素(Na) マッピング
 (下)。Na に富む部分に沿って氷晶の形成を確認。

2018-2020 年に東京スカイツリーで観測した雲凝結核特性に 関する研究

*横山晶美¹,森樹大¹,三浦和彦¹,岩本洋子²,速水洋³,三隅良平⁴,宇治靖⁴,當房豊⁵ 1 東京理科大学,2 広島大学,3 早稲田大学,4 防災科学技術研,5 極地研

1. はじめに

エアロゾルは水蒸気の凝結により、雲凝結核 (CCN) として働くことで雲の光学特性や寿命に影 響を与える。一般にエアロゾル粒子が CCN になり うるかどうかは周囲の大気の過飽和度、粒子の乾燥 粒径、および吸湿性によって決まる。これらから算 出される臨界過飽和度が小さいほどエアロゾルは CCN になりやすい。これまでの研究では遠隔地[1],[2] や都市部^[3]などで観測が行われてきたが、都市部で の CCN の長期観測例は少ない。東京スカイツリー (35.710°N, 139.810°E)の 458m 地点にある観測地点 は、雲が発生する高度で直接且つ、長期地上観測で きる利点がある。また、日中は混合層が発達するた め都市大気の影響を受ける一方、夜間は大気が安定 するため、長距離輸送された空気塊の影響を受ける 可能性がある。そこで本研究では東京スカイツリー で CCN の長期地上観測を行い、境界層内もしくは 自由対流圏内を長く経験する空気塊の違いによる CCN 特性の違いを調べる。

2. 観測方法

2018年10月11日から2020年9月25日の間、東 京スカイツリー458mで定点観測を行った。拡散ドラ イヤーを通し相対湿度30%以下に乾燥させた外気を、 走査型移動度粒径測定器 (Scanning Mobility Particle Sizer: SMPS)、 雲凝結核計 (Cloud Condensation Nuclei Counter: CCNC) に通して、粒径別数濃度 N_{cn} と4つの異なる過飽和度 (SS; 0.1, 0.2, 0.5, 0.8%)下 での CCN 数濃度 N_{cen} を測定した。これらの観測デ ータから、CCN活性比(AR)、臨界乾燥粒径 (D_c)、吸 湿性パラメータ(κ)を得た。 κ はエアロゾルの化学 組成の指標となる。また、境界層高度はシーロメー ターから推定した。

3. 結果・考察

全粒子数濃度 N_{en} 、 N_{cen} 、AR、 κ の日変化と境界層 高度の変化を比較した。図1は2019年1月16日の 日変化である。この日は西高東低の典型的な冬型の 気圧配置であり降水はなかった。境界層高度が458m を超えた9時~11時の時間帯を見ると境界層高度の 上昇とともに地上の NO_x濃度、SO₂濃度、PM2.5 濃 度^[4]、 $AR_{ss0.8\%}$ が低くなった。一方、 N_{en} 、 $\kappa_{ss0.1\%}$ 、核生 成モード (~30nm) 粒子数濃度、エイトケンモード (30~100nm) 粒子数濃度は高くなった。また、 $AR_{ss0.1\%}$ はあまり変化しなかった。核生成モードの粒子が増 えていること、mode 径が20-30nm まで下がってい ることから、SS0.8% (*D*_c=40-60nm) であっても CCN として活性化しなかった。一方、SS0.1%では *D*_c が 100-150 nm 程度であるため、小さい粒子の増減の影 響を受けず、活性比が変化しなかったと考えられる。 16 時頃から夜にかけて *AR*_{SS0.1%}とκ_{SS0.1%}が高くなっ ている。これは核生成モードおよびエイトケンモー ドの粒子が減り、mode 径が大きくなったことで SS0.1%でも活性化する粒子が増えた影響が表れた と考えられる。他の季節の日変化についても解析を 進め、比較する予定である。



度、N_{en}とN_{cen}、AR、κ、D_e,モード毎の粒子数濃度と mode 径)

参考文献

- [1] Juranyi et al., Atmospheric Chemistry and Physics., 10, 7891-7906 (2010)
- [2] 渡辺彩水、東京理科大学大学院修士論文 (2014)
- [3] Rose et al., Atmospheric Chemistry and Physics., 10, 3365-3383 (2010)
- [4] 野村朋香、東京理科大学卒業論文 (2020)

東広島で観測された大気エアロゾルの雲凝結核特性

*海塚収英¹,岩本洋子²,竹田一彦²,三浦和彦³ 1 広島大学総合科学部,2 広島大学大学院統合生命科学研究科 3 東京理科大学理学部

1. はじめに

大気中のエアロゾル粒子は気候に影響を与える直 接効果と間接効果を持つ。間接効果は雲形成時にエ アロゾル粒子が雲凝結核(Cloud Condensation Nuclei; CCN)として働くことで雲の光学特性や寿命を変化 させ、地球の放射収支や降水過程に影響をもたらす。 自然界では CCN が存在しなければ雲は形成されず、 周囲の水蒸気過飽和度や粒子の乾燥粒径、吸湿性が 大きいほどエアロゾルは CCN になりやすい。放射 強制力に与える雲調整効果の見積もりには誤差が大 きく、科学的理解度が低い。これはエアロゾルが時 空間的に高い変動性を持つことが原因であると考え られる。そこで本研究では国内の郊外における季節 ごとの CCN 特性の把握を目的に、大気エアロゾル 観測を行った。

2. 観測および解析

2020年4月18日~5月2日、6月18日~6月25 日および8月1日~8月15日に、広島大学東広島キ ャンパス総合科学部研究棟(地上8階)屋上にて大 気エアロゾル観測を行った。拡散ドライヤを通して 相対湿度30%以下に乾燥させた外気を凝縮粒子計測 器(CPC3007, TSI),光学式粒子計測器及び雲凝結核 計数器 (CCN-100, DMT) に導入し、大気中のエアロ ゾル数濃度(NcN)と過飽和度 0.1、0.2、0.5%におけ る CCN 数濃度(Nccn)を測定した。また、粗大(PM>2.5) および微小 (PM2.5) 粒子中の主要イオン成分と水溶 性有機物の質量濃度を調べるため、石英繊維フィル タ上に 24 時間間隔でエアロゾル粒子の捕集を行っ た。またエアマス輸送経路を NOAA HYSPLIT モデ ルで計算された後方流跡線を用いて解析し、エアマ スを分類した。NCN と各過飽和度の NCCN から CCN 活 性比(Nccn/Ncn)を算出し、化学組成と後方流跡線と 共に解析した。

3. 結果と考察

図1に過飽和度とNccn、図2に過飽和度とNccn/Ncn の関係を示す。4、6、8月の過飽和度0.2%における Nccnの平均値±標準偏差は、1267±765、1000±568、 643±391 cm⁻³であった。Ncnの平均値±標準偏差は 4、6、8月において5612±4192、3789±1950、4769 ±2714 cm⁻³であった。大陸起源のエアマスが主であ った4月は、Ncnが高い一方で、CCN活性比が低か ったことから、吸湿性が低く粒径が小さい粒子が多 かったと考えられる。6月はCCN活性比が高く、日 本国内の影響を受けたエアマスの寄与が大きいこと から、ローカルな発生源から排出された粒径の大き い粒子の割合が多かったと考えられる。なお、6月 の観測期間中は梅雨前線が日本列島の南側に停滞し 降水は観測されなかった。8月は太平洋起源のエア マスが主であった。一般的に、大陸起源に比べ海洋 起源のNccNは低いため、8月に観測されたNccNが4、 6月に比べ小さいことと整合的である。

図1に東アジアでの報告値(Schmale et al., 2018) として能登とソウルのデータを併せて示す。NccNは ソウル、能登、東広島の順で小さくなった。ソウル はアジア大陸沿岸部の大気汚染の影響でNccNが多 いと考えられる。能登の方が東広島に比べてNccNが 高い理由として、能登の観測値は中国の大気汚染対 策が本格化される前の2014年のものであること、ま た、東広島で観測を実施した2020年は新型コロナウ イルス感染防止に伴い世界的に大気質が改善された ことが考えられる。発表では化学組成や8月の西之 島噴火の影響も併せて報告する予定である。







図 2 東広島における季節毎の過飽和度と CCN 活 性比の関係。

参考文献

Schmale et al. (2018) Atmos. Chem. Phys., 18, 2853-2881

北極域で取得されたエアロゾルサンプルの水抽出物の吸湿

性・CCN 活性および表面張力測定:冬季~夏季の比較

*川名華織^{1,2,3}、河村公隆^{1,2}、Pingqing Fu^{1,4}、Leonard A. Barrie^{5,6}

¹北大低温研,²中部大学,³JAMSTEC,⁴Tianjin University, ⁵Stockholm University, ⁶McGill University

1. 序

北極域の大気環境は陸域からの長距離輸送や海氷 の形成と後退に伴う海洋表層からの寄与など、季節 による発生源の違いや化学的過程によって異なる変 動パターンを示すと考えられる。特に夏季は海氷の 溶解に伴って海洋表層からの生物起源物質の大気へ の寄与が増加し、界面活性剤として作用する有機物 が多く含まれる場合大気エアロゾルの吸湿性や CCN 活性・雲粒形成に影響すると考えられるが[Leck and Bigg, 2005]、北極域の実大気サンプルについて表面 張力効果を実測・検証した報告例は少ない。

本研究では冬季(2月)~初夏(6月)にハイボリュ ームサンプラで7日間捕集した大気エアロゾル試料 (TSP, n=15)を使用した。同試料の同位体・化学ト レーサーを用いた分析によって、春季に polar sunrise後にジカルボン酸を主体とするWSOCやSOA の生成が、夏季に脂肪酸や高炭素数有機化合物を主 体とするWINOMの増加が見られ、それぞれ光化学的 酸化反応、海氷の溶解に伴う海洋表層からの生物起 源の寄与が報告された[Kawamura et al., 2010]。ま た EEM 法を用いた蛍光特性解析によって、春季に polar sunrise後にタンパク質様化合物の蛍光強度 が増加し、夏季に海洋表層からの有機態(一次放出 された多糖類)の寄与の増加が、生物起源トレーサ ーの解析とともに報告された [Fu et al., 2015]。

上述したサンプルについて水抽出を行い、抽出物 について吸湿特性測定用タンデムDMA(HTDMA)とCCN カウンタ、CNカウンタを用いた吸湿性・CCN活性の 測定を行った。水蒸気未飽和(RH<100%)・過飽和 (RH>100%)条件下で取得した吸湿性にはしばしば相 違が認められ、CCN活性の見積もりに影響を及ぼす ことが指摘されている。この原因として、高湿度条 件下でのみ溶解する成分(主に有機態)の溶解性の 湿度依存性や表面張力低下効果が挙げられる。

そこで本研究では、湿度条件を変化させたときの 粒子の吸湿性や、水蒸気未飽和・過飽和条件下にお ける吸湿性の違いについて調べた。さらに表面張力 低下効果の程度について表面張力計を用いた測定を 行い、2 つの測定を組み合わせて化学組成や起源の 違いが吸湿成長や雲粒形成にどのような影響をもつ かを考察した。 結果と考察

試料の化学組成から、冬季~春季は海塩・無機成 分が70%、WSOCが20%と水溶性成分が多く存在した が、夏季はWINOMが30%,WSOCが20%で有機態の質 量割合が高かった。未飽和条件下(相対湿度81%,86%, 91%)で測定したサンプルの吸湿成長度から算出され た吸湿性パラメータκは冬季(polar sunrise 前)、 春季(polar sunrise後)、夏季でそれぞれ0.35、0.42、 0.25 であり、夏季に有機態の増加に伴って吸湿性が 低下することがわかった。過飽和条件(過飽和度 0.29%,0.59%)で測定したサンプルの活性化粒径か ら算出されたκは冬季、春季、夏季でそれぞれ0.42, 0.46,0.25 であり、未飽和条件下での測定結果に比 べて吸湿性は高いものの、未飽和条件下での測定結 果と良い傾向の一致を示した。

未飽和条件下で湿度条件を変化させた実験結果と、 未飽和と過飽和条件下での結果を比較したところ、 それぞれの結果は 10%以内で一致し、高湿度条件や 水蒸気過飽和条件下での溶解性の増加に起因する、 吸湿性の大きな変化は認められなかった。ただし, 高湿度条件下(RH=91%)ほど過飽和条件の測定結果と 相関が高く(R=0.60)、高湿度条件下ほど溶解性を 増加させる成分が含まれている可能性が指摘された。 表面張力計による表面張力測定では WSOC 濃度の増 加に伴って表面張力の減少傾向はみられたものの、 水の表面張力(σ =72 N/m)に比べて最大で 10%程度 の低下であり、組成や季節性の違いによる相違は確 認できなかった。

今回、北極圏の水溶性エアロゾル粒子の吸湿特性 を測定した結果、化学組成、特に一般的に低吸湿性 を示す有機物の増加や、polar sunrise に同期した エアロゾル粒子の吸湿性の変化はみられたものの、 CCN 活性や表面張力低下効果への影響は小さいと結 論付けられた。

東南極における大気硫酸の硫黄安定同位体組成の均一性と 氷期-間氷期の硫黄起源のシフトに対する示唆

*石野咲子^{1,2}, 服部祥平¹, Savarino Joël³, Legrand Michel³, Albalat Emmanuelle⁴,

Albarède Francis⁴, Preunkert Susanne³, Jourdain Bruno³, 吉田尚弘^{1,5}

1 東京工業大学 物質理工学院,2 情報・システム研究機構 国立極地研究所,

3 IGE, Université Grenoble Alpes/CNRS, France, 4 LGL-TPE, École Normale Supérieure de Lyon, France, 5 東京工業大学 地球生命研究所

1. 背景

南極大気中の非海塩性硫酸エアロゾルは、周辺海 洋において藻類および植物プランクトンが放出する 硫化ジメチル (DMS) を起源とするものが支配的で ある。このため、南極アイスコア中の硫酸イオンは、 過去の気候変動に応じた海洋生物活動の変動を記録 している可能性がある。これまで、南極 Dome C で 掘削されたアイスコアからは、過去8回の氷期-間氷 期サイクルを通じて硫酸イオンフラックスは顕著な 変化がなく、この期間には海洋生物の生産性には顕 著な変化がなかったと理解されてきた(Wolff et al., 2006)。しかし、海底堆積物コアの有機物フラックス 記録からは、氷期に南極周辺域における海洋生物生 産性が減少することが示唆されており(Kohfeld et al., 2005)、アイスコア記録から導かれた結論と矛盾して いた。この矛盾の原因を検討するため、南極アイス コア中の硫酸イオンに対する DMS 以外の起源の寄 与の理解が重要である。

硫酸エアロゾルの硫黄安定同位体組成 (δ^{34} S) は、 DMS 由来(約 16-20‰; Amrani et al., 2013)、火山ガ ス由来(約 0-5‰; Nielsen et al., 1991)、成層圏のバッ クグラウンド硫酸(2.6 ± 0.3 ‰; Castleman et al., 1974) といった異なる硫黄起源の寄与を反映して変化する。 しかし、大気輸送中の SO₂酸化反応において δ^{34} S 値 が大きく同位体分別を受ける可能性が指摘されてい たために、過去の硫黄起源の推定には用いられてこ なかった。これに対し本研究では、南極内陸 Dome C および沿岸 Dumont d'Urville(図 1)において採取さ れたエアロゾル中の硫酸の δ^{34} S 値を分析し、輸送中 の δ^{34} S 値の変化を検証した。



図1 エアロゾル試料採取地点

2. 試料と分析

エアロゾル試料は、東南極内陸 Dome C (75°06'S, 123°12'E) および沿岸 Dumont d'Urville (DDU; 66°40'S, 140°01'E) において、週ごとの解像度で継続的に採取 しているもののうち、2011 年の一年間の試料を用い た。 δ^{34} S 値の分析は、Dome C の試料についてはリヨ ン高等師範学校の MC-ICP-MS で、DDU の試料につ いては東京工業大学の IRMS を用いて行った。

3. 結果と考察

内陸・沿岸の両地点の δ^{34} S値の差分は一年間を通 じて平均 0.5 ± 2.6‰と、季節変動の範囲(夏期:約 18‰、冬期:約 8‰)と比べて小さく、2地点間で均 質であることが確認された(図2)。この結果から、 輸送中の同位体分別の影響は小さく、 δ^{34} S値の主な 変動要因は起源の変化であることが示唆された。

この結果を踏まえると、Alexander et al. (2003) で 報告されている、 δ^{34} S値が間氷期と比べて氷期に約 4‰低くなる傾向は、氷期に DMS 由来の硫酸の寄与 が減少していたこと、すなわち南極周辺域の海洋生 物の生産性が低下していたことを示唆している。以 上から、海底コア記録に基づく示唆と一致する結論 が導かれた。



図 2 エアロゾル試料中の非海塩性硫酸(nss-SO₄²⁻) のδ³⁴S 値観測結果

Direct measurement of aerosol acidity using pH test paper

*Qinping Song¹, Kazuo Osada¹

1Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

1. Introduction

Liquid phase acidity of aerosol particles is an important parameter in atmospheric chemistry, often it is converted and expressed as pH. It can affect the gas/particle phase partitioning and the formation of secondary organic aerosol. Generally, aerosol acidity is estimated by chemical thermodynamic models such as the E-AIM etc. Because estimated results from the models are sensitive to input data including water soluble gases such as NH3 etc., large uncertainties are often expected. To understand aerosol acidity clearer and apply the model better, development of a direct measurement method is needed. However, because of the low water content and high ionic strength of the liquid phase in aerosol particles, the direct measurement is difficult. Currently, several measurement methods exist using the colorimetry/spectrometry or micro-Raman spectroscopy, however, they are complex and laborious to apply various real atmospheric samples. The purpose of this study is to develop a measurement method of aerosol acidity by using a pH test paper.

2. Experiment and Method

Many pH test papers are available from some manufactures. We tested six pH test papers from 4 manufactures by applying 3 steps as the following.

Firstly, we prepared five kinds of salt solutions (ammonium salt mixture with sulfate, nitrate, and chloride) in different concentrations to check color response of the pH paper under moderately high ionic strength. The pH of these salt solutions was also measured by a pH meter (Horiba, LAQUA Twin pH-11B), and the results of pH test papers were compared to it.

Secondly, we tested the color response of the pH test papers under the realistically high ionic strength of the salt solutions. The salt solutions of high ionic strength were prepared by using the nature of hygroscopicity at high relative humidity (RH). We utilized saturated solution of KNO₃ with water, keeping the equilibrium RH at 92% in



Fig.1 Comparison of the pH of salt solutions measured by pH test papers and the pH meter.

a closed experimental box. A small amount of the same regents used above was placed in 92% RH condition, then, droplet formed by moisture absorption was a subject to examine the pH paper under high ionic strength.

Finally, we analyzed the relationship between pH and temperature as to show slight change of pH under high ionic strength in the droplets. The dissociation constants of H_2O and NH_4^+ are temperature-dependent. Therefore, color change of the pH paper was monitored for 6 stages of chamber temperature.

Digital images of the resulting color of pH test papers were used for estimating pH by comparing the hue values of the samples with pH color-scale from the manufactures.

3. Results and Discussion

Fig. 1 presents the comparison of salt solution pH measured by the pH meter and six pH test papers. Among the six pH test papers, the results of the No.3 pH test paper were the most consistent with the pH meter results (Fig. 1, red diamonds). Thus, further steps were only tested for the No. 3 pH test paper. The results of the second step showed that the No. 3 pH test paper can change its color according to the droplet acidity (not shown). In the 3rd step, changes in color with temperature were observed for the No. 3 pH test paper (Fig. 2).

To apply the No. 3 pH test paper for measuring the acidity of real atmospheric samples, we investigated the amount of aerosol particles to form a detectable size of a droplet developed under 92% RH. The atmospheric aerosol particles in various air volumes were collected using an inertial impactor with 19 nozzles of 2.0 μ m cutoff diameter. Major ions of some spots collected on a sheet were analyzed by ion chromatography. According to try and error experiments on the droplet growth under 92% RH and ionic constituents of the particles, more than 6.0 μ g of the total major ions per spot was need to form a sufficient droplet size for the No. 3 pH test paper to measure acidity.



Fig.2 The relationship between temperature and droplet acidity measured using the No.3 pH test paper.

二酸化窒素と凍結したヨウ化カリウム水溶液による ヨウ素生成反応

*上田哲也¹,中野幸夫²,原田明¹,薮下彰啓¹ 1九州大学大学院総合理工学府 2東京学芸大学教育学部

1. はじめに

ヨウ素化合物は大気中において、化学反応を起こ し大気環境に影響を及ぼす。例えば、対流圏オゾン の触媒的分解や水銀の酸化反応などに関与している。 極域でのヨウ素の放出源としては、海氷の海水側に 生息している藻類が知られている。Atkinson らの報 告では極域での微細藻類などの放出量を基にしてモ デル計算を行ったところ、観測値が微細藻類による 放出量のみでは説明することができないことが確認 されている ¹⁾。よって、極域には生物由来以外の無 機的なヨウ素放出源の存在が示唆されている。無機 的な放出源として、光やオゾンによる L2 生成が確認 されている²⁾。その他の可能性として本研究では NO2に着目した。NO2は産業活動で排出され極域へ 輸送されるため微量ではあるが存在する。そのため、 無機的な放出過程の一つとして凍結した KI 水溶液 と NO₂(g)との反応による I₂ 生成について調べた。今 回は、NO₂(g)濃度、KI 水溶液の pH と I₂ 発生の関係 について報告する。

2. 実験

10 mM に調整した KI 水溶液を 268 K に冷却した ガラスセル内で凍結した後、253 K まで温度を下げ た。セル内に窒素ガスをパージし、真空ポンプで引 くことでガラスセル内の圧力を 100 Torr まで下げて、 キャビティリングダウン分光法(CRDS)により 532.874 nm~532.920 nm のスペクトル測定を行った。 これをベースラインとした。真空ポンプで排気しつ つ、圧力を100 Torrに保った状態で濃度調整したNO2 (1.5×10¹³~1.4×10¹⁴ molecules cm⁻³) を流量 20.0 sccm で流すことによって反応を開始した。反応開始 時から 5 分おきに CRDS により、気相中の I₂(g)、 NO₂(g)の吸収スペクトルを測定した。同様に、塩酸 と水酸化カリウムによって pH を 4.0、7.0、10.0 に調 整した 10 mM の KI 水溶液を凍結し、3.1×10¹³ molecules cm⁻³の NO₂ と反応させ、I₂(g)、NO₂(g)の吸 収スペクトルを5分おきに測定した。

3. 結果·考察

CRDS による $I_2(g)$ 、 $NO_2(g)$ 濃度は、図1の灰色線 で示したヨウ素の吸収断面積が山と谷である二波長 (532.885 nm、532.914 nm)の β 値と吸収断面積を用 いて連立方程式により算出した。また、図1に示す ように算出した $I_2(g)$ 、 $NO_2(g)$ 濃度から既報の吸収断 面積を使って計算した吸収スペクトルと測定した吸 収スペクトル(NO_2 濃度 1.4×10^{14} molecules cm⁻³、反 応時間 35 分)が一致していることから $I_2(g)$ 、 $NO_2(g)$ 以外で吸収に影響する気体はないことを確認した。



図 1 測定した吸収スペクトルと、算出した I₂(g)、 NO₂(g)濃度と吸収断面積から計算した I₂、NO₂、 I₂+NO₂の吸収スペクトル(灰色線は濃度計算に用い た波長)

図 2 に流入した NO₂(g)濃度と反応時間 35 分の $I_2(g)$ 濃度の関係を示す。実験を行った NO₂(g)濃度と 気相中に放出された $I_2(g)$ 濃度は比例関係であった。反応時間 30 分以降は吸収スペクトルの形状に大き な変化はなく定常状態であった。また、NO₂(g)流量 は一定であるため 35 分での I_2 濃度は I_2 の生成速度 と比例関係にあると考えることができる。

KI 水溶液の pH を 4.0、7.0、10.0 に調整し、同様 に実験を行った結果、I₂(g)濃度の変化に有意な差が 無かった。このことから、今回実験を行った反応メ カニズムに H⁺、OHTはほとんど関与しないことが示 唆された。



図 2 流入した NO₂(g)濃度と反応時間 35 分の I₂濃度の関係

4. 参考文献

- 1) H. M. Atkinson, et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 2012, *12*, 11229
- J. W. Halfacre, et al., Atmos. Chem. Phys., 2019, 19, 4917

低 NOx 条件での二次有機エアロゾルの不均一酸化過程

*佐藤圭¹,藤谷雄二¹,中山智喜²,Sathiyamurthi Ramasamy¹,森野悠¹,梶井克純³ 1 国立環境研究所,2 長崎大学,3 京都大学

1. はじめに

気候や健康に影響を及ぼす二次有機エアロゾル (secondary organic aerosol; SOA)の老化過程が どのような反応を経て進むかについて近年多くの研 究例があるが、気相での均一反応、気相と粒子相お よびその界面などで起こる不均一反応、流相での均 一反応のいずれが重要であるかについては不明であ る。チャンバー内で生成したSOA にOH ラジカルを 暴露すると、ガス状有機物の後続酸化によるSOA 粒 子生成およびSOA 粒子による酸化剤取込にともなう 粒子内反応の二通りの反応が同時に進む可能性があ る。ラジカルの取込みによるSOA 粒子の老化だけを 切り分けて調べるため、本研究ではガス交換器を用 いる実験法を試みた。

2. 実験

NIES チャンバー内で α -ピネンのオゾン分解によ り発生したSOA のガス成分をガス交換器によって精 製空気に置換した。ガス交換器は多孔質セラミクス によりエアロゾルのガス成分のみを特定のガスに交 換できる。SOA 粒子をPotential Aerosol Mass

(PAM) チャンバー内で水蒸気およびオゾンと混合 した。PAM チャンバー内の混合物に254 nmの紫外線 を照射することによって、OH ラジカルを発生させ てガス状有機物を取り除いたSOA粒子に暴露した。 PAM チャンバー内の温度は25℃に、相対湿度は~ 50%に維持された。

3. 結果と考察

PAM チャンバー内でのOHラジカル暴露量の関数としてみたSOA 粒子の相対収率およびO/C 比を示す

(図)。大気中の平均OH ラジカル濃度を2 × 10⁶ molecule cm⁻³ と仮定したとき1.7 x 10¹¹ molecule cm⁻³ s が1 日の0H ラジカル暴露量に対応する。相 対収率は、OH ラジカル暴露量がゼロのときの値で 規格化された値である。ガス交換器を挿入しない場 合 (〇) 、5~10 × 10¹¹ molecule cm⁻³ s の暴露 量のときに相対収率の値が1.1 まで増加し、さらに 暴露量を増加させると相対収率は減少に転じた。相 対収率の値は、~18 x 10¹¹ moleculecm⁻³ s のとき に0.7 に減少した。ガス交換器を挿入してガス状有 機物を除去すると(▲)、5~10 × 10¹¹ moleculecm⁻³ s での相対収率の有意な変化はみら れなかった。OH ラジカル暴露量をさらに増やすと 相対収率が減少し、 $\sim 18 \times 10^{11}$ molecule cm⁻³ s のとき相対収率は0.60 であった。老化が進むとSOA 粒子を構成する有機物が分解過程に進むことが示唆 された。SOA の0/C 比はOH 暴露量を増やすにつれ て増加した。OH ラジカル暴露量がゼロおよび~18 × 10¹¹ molecule cm⁻³ s のとき、O/C 比の値はそ れぞれ0.33 および0.52 であった。ガス交換器の有 無による有意差は見られなかった。老化の進行につ れてO/C 比が増加するのは、(1) SOA粒子が気相 のOHラジカルを取込んで低いO/C 比を持つ粒子中の 化合物がOH ラジカルとの不均一反応によって分解 するためか、(2) 低いO/C比を持つ粒子中の化合 物が揮発後に気相でOHラジカルと反応して分解する ためと考えられる。

4. おわりに

SOA 粒子をOH ラジカルに暴露することにより、 SOA 粒子を構成するO/C 比の低い有機物が分解に進むことが示唆された。PAM 内におけるNOx 濃度の効果や相対湿度の効果の検討が今後の課題である。

謝辞:本研究は日本学術振興会科学研究費補助金 (JP16H06305)および環境再生保全機構環境研究総 合推進費(JPMEERF20185001)の支援により行われ た。



図: OH ラジカル暴露量の関数としてみた(a) SOA の 相対収率および(b) 0/C 比

Visualization of air cleanliness using Clean aIr Index (CII)

*Tomohiro O. Sato¹, Takeshi Kuroda^{2,1}, Mayuko Yoshikawa³, Yasuko Kasai^{1,4}
1 National Institute of Information and Communications Technology, 2 Tohoku University, 3 Weathernews Inc., 4 University of Tsukuba

1. Introduction

Air quality on our planet has been changing since the industrial revolution (1750s) because of anthropogenic emissions. The COVID-19 pandemic has drastically changed our lifestyle around the world, and unprecedented NO₂ column decrease was observed over widespread area in January – April 2020 using the satellite remote sensing [Bauwens et al., 2020]. A global standard to quantify the level of air cleanliness is swiftly required. The most commonly used index is the Air Quality Index (AQI) in US, but it was reported that AQI underestimated the severity of the health risks associated with exposure to multipollutant air pollution [Hu et al., 2015].

2. Clean aIr Index (CII)

We defined a novel concept, namely "Clean aIr Index, CII" in order to establish the global standard for quantifying air cleanliness [Sato et al., GC, 2020]. The purpose of CII is to comprehensively evaluate air cleanliness by normalizing the amounts of common air pollutants with numerical environmental criteria.

$$CII = 1 - \frac{1}{N} \sum_{i}^{N} \frac{x[i]}{s[i]}$$

Here, x[i] is the amount of *i*th air pollutant, s[i] is the numerical criteria for the normalization of x[i], and *N* is the number of air pollutants considered in the CII. A CII value of 1 indicates completely clean air (no air pollutants), and 0 indicates the presence of air pollutants up to numerical criteria for the normalization. The air pollutants used in the CII were taken from the WHO Air Quality Guidelines, namely O₃, particulate matters, NO₂ and SO₂.

3. Model simulation

In this study, we chose Japan as a study area to evaluate CII because of the following reasons: i) accurate validation data provided by the Atmospheric Environmental Regional Observation System (AEROS), ii) obvious numerical criteria given by the Ministry of the Environment. The amount of each air pollutant was calculated using the Weather Research and Forecasting (WRF) and Community Multiscale Air Quality (CMAQ) models for 1 April 2014 to 31 March 2017. The CII values calculated by the WRF-CMAQ model showed good agreement with those by the AEROS measurements with a correlation coefficient of 0.66. Using AQI, the correlation coefficient between WRF-CMAQ and AEROS was 0.57, smaller than that of CII. The CII averages air pollutant amounts normalized by the numerical criteria, while the AQI employs only the highest effective air pollutant and the others are ignored.

4. Visualization of air cleanliness

The WRF-CMAQ model showed that the extremely clean air, CII ~ 0.90, occurred in southern remote islands and around west of the Pacific coast during summer with transport of clean air from the ocean. The CII values averaged for the study period was 0.67, 0.52 and 0.24 in Tokyo, Seoul and Beijing, respectively, thus, the amounts of air pollutants in Tokyo was 1.5 and 2.3 times less than those in Seoul and Beijing, respectively (Fig. 1). In this presentation, we also evaluate the air cleanliness around the world using CII based on the ground-based measurements.



Fig. 1: Histogram of average CII over the study period (FY2014-2016) for each municipality in Japan. The dashed lines represent the average CII of Beijing, Seoul, and Tokyo (23 wards). [Fig. 6 in Sato et al., 2020]

5. Conclusion and perspective

We defined a novel concept of indexing to quantify air cleanliness, namely CII. The CII can be used in various scenarios, such as encouraging sightseeing, migration, and city planning. The CII is a simple and fair index that can be applied to all nations.

Reference

- Bauwens, M., et al.: Impact of coronavirus outbreak on NO₂ pollution assessed using TROPOMI and OMI observations, Geophys. Res. Lett., 47, e2020GL087978, 2020.
- Hu, J., et al.: Characterizing multipollutant air pollution in China: Comparison of three air quality indices, Environ. Int., 84, 17–25, 2015.
- Sato, T. O., et al.: Novel index to comprehensively evaluate air cleanliness: the Clean aIr Index (CII), Geosci. Commun., 3, 233-234, 2020.

TROPOMI NO2衛星観測データ同化を用いた 全球 NOx 排出量の推定

*関谷高志¹, 宮崎和幸², Henk Eskes³, Folkert Boersma^{3,4}, 須藤健悟^{5,1}, 滝川雅之¹, 金谷有剛¹, 大越智幸司¹

1海洋研究開発機構, 2NASA ジェット推進研究所/カリフォルニア工科大学, 3オラ ンダ王立気象研究所, 4 Wageningen University, 5名古屋大学 大学院環境学研究科

1. イントロダクション

窒素酸化物(NO_x)は対流圏オゾンや硝酸塩 エアロゾルの前駆物質であるため、対流圏 NO₂ カラム量の衛星観測は全球規模の NO_x 排出量 の推定やその大気環境・気候への影響の評価に おいて有用である。Sentinel-5 Precursor 衛星に 搭載され 2017 年に打ち上げられた Tropospheric Monitoring Instrument (TROPOMI)では、従来 の Ozone Monitoring Instrument (OMI)と比較 して、高分解能・高品質の全球対流圏 NO₂分布 データが得られている。本研究では、TROPOMI NO₂、OMI NO₂観測のデータ同化による 2018 年 4~5 月の全球 NOx 排出量推定を初めて系統 的に比較し、TROPOMI データ同化による NO_x 排出量推定の改善を評価した。

2. 手法

本研究では水平 0.56 度解像度の全球化学輸送モデル CHASER (Sekiya et al., 2018) と局所 アンサンブル変換カルマンフィルタ (Hunt et al., 2007) に基づくデータ同化システム (Sekiya, Miyazaki, et al., in revision, Miyazaki et al., 2020) を用いた。同化に用いた観測データは、2018 年 4~5月の TROPOMI NO₂ ver. 1.2 リトリーバル (van Geffen et al., 2020)、OMI QA4ECV NO₂ リトリーバル (Boersma et al., 2017) である。排 出量の専権情報には、HTAP_v2.2、GFEDv4、 GEIA 排出量インヴェントリを用いた。NO_x 排 出量の日々の変動を、アンサンブル予報計算か ら得られた誤差共分散中の NO_x 排出量と NO₂ 濃度の関係を用いて、対流圏 NO₂カラム量観測 から推定した。

3. 結果

データ同化による衛星観測に対する全球平 均二乗誤差(RMSE)の減少量は、OMI データ 同化と比較して (38%)、TROPOMI データ同化 (54%)の方が大きかった。TROPOMI NO2 観測 データの誤差がOMIと比べて平均16%小さく、 観測量が平均44%大きいため、より効率的な修 正が行われたこと要因と考えられる。、独立観 測であるアメリカ・ヨーロッパにおける地表観 測、AToM-4 航空機観測キャンペーンのうちア メリカ西海岸における観測により得られた NO₂ 濃度に対するモデルバイアスも、TROPOMI デ ータ同化により 12—84% 改善され、OMI デー タ同化による改善と比べて大きい傾向であっ た(2—70%)。

TROPOMI データ同化により推定された NOx 排出量の全球総量は、OMI データ同化による推 定値より 15%小さかった。この推定値の差異は、 TROPOMI と OMI における対流圏 NO₂ カラム 量リトリーバル系統的な差を反映している。そ の一方で、NO_x排出量のデータ同化による変化 量は、TROPOMI データ同化の方が全球平均で 42%大きかった。上述した TROPOMI リトリー バルの観測量・観測誤差の改善により、 TROPOMI データ同化では、NOx 排出量推定の 時空間変動に観測情報がより大きく反映され ており、都市における排出量の週内変動、森林 火災・土壌起源排出量の時空間変動がより現実 的に表現できると考えられる。

今後は、TROPOMI NO₂ データ同化を森林火 災・土壌起源 NO_x 放出に関わるプロセスに加え、 COVID-19 感染拡大に伴う都市封鎖のような人 為活動の変化に起因する排出量の時空間変動 の推定に応用することを考えている。さらに、 TROPOMI NO₂ データ同化から得られた推定結 果は、ボトムアップ手法による NO_x 排出量推定 の評価へ応用されることが期待できる。

引用文献

- Boersma et al., (2017), doi:10.21944/qa4ecv-no2-omiv1.1
- Hunt et al. (2007), *Physica D, 230*, 112-126
- Sekiya et al. (2018), Geosci. Model Dev., 11, 959-988
- Miyazaki et al. (2020), Earth Syst. Sci. Data, 12, 2223-2259
- van Geffen et al. (2020), Atmos. Meas. Tech., 13, 1315-1330

NH₃双方向フラックスを考慮した東アジア域の 大気質シミュレーション

*桐山 悠祐¹,黒川 純一¹,佐藤 啓市¹ 1アジア大気汚染研究センター

1. はじめに

大気中の物質の動態把握に対して、化学輸送 モデル(Chemical Transport Model, CTM)によるシ ミュレーションは有効な手法であるが、その結 果は排出インベントリに大きく左右される。ア ジア域の、特に NH₃の排出量データには未だ多 くの不確実性が残されている。

種々の観測結果から、NH₃は、大気-陸面間で は双方向の流れであることが明らかになって いる。CTMの一種であるCMAQモデルにはこ の双方向性を考慮してNH₃の沈着や陸面から の放出を計算する機能が整備されている(Bash et al., 2013)。しかし、この現象を考慮したCTM によるシミュレーションの報告は、東アジア域 では多くない。

本研究ではアジア域の排出インベントリ REAS 最新版のNH₃排出量の改良を最終目標と している。この目標を達成する一つの手段とし て、東アジア域を対象に排出インベントリ REAS および CMAQ-NH₃ 双方向フラックスモ デルを用いてCTM シミュレーションを実施し、 NH₃排出の多くを占める化学肥料の施肥からの ボトムアップ型とプロセスベースのNH₃排出 量の差異を検証した。また、大気中濃度と沈着 量の計算精度の差異についても検証を行った。

2. 方法

本研究では WRFv3.8.1/CMAQv5.2 を用いて シミュレーションを実施した。ベースとなる排 出インベントリには REASv3.1 を用いた。標準 ケースは全て REASv3.1 の排出量とした(以下、 REAS-NH₃)。ただし、REASv3.1 がカバーしてい ない計算領域には EDGARv4.3.2 を用いた。 CMAQ-NH₃ 双方向フラックスモデルを用いる ケース(以下、NH₃ bi-di)では、REASv3.1 の推計 に用いた施肥量を年間総投入量として与え、施 肥のタイミングと時間変化は Zhu et al. (2015)を 参考に決定した。MODIS Land Use のカテゴリ のうち Croplands, Cropland/Natural Vegetation Mosaic に施肥量を分配し、土壌 pH は WoSIS (Ribeiro et al., 2018)から引用した。 2 ケースの間では排出量以外の条件は共通で ある。計算期間は 2009/12/25 - 2010/12/31 (2009 年中は助走計算)とした。また、空間分布の観測 値として MetOp-A 衛星に搭載されている Infrared Atmospheric Sounder Interferometer(IASI) センサーによる午前軌道での観測結果を用い て比較を行った。

3. 結果

図1に2010年3月~5月のNH₃平均カラム 濃度の分布図を示す。



図1 2010年3月~5月のNH₃平均カラム濃度 左:IASI 観測値、中:REAS-NH₃、右:NH₃-bidi

図1より、REAS-NH₃は中国南東部や北東部 のNH₃を衛星観測値よりも過大に評価してい るが、NH₃bi-diではそれが改善されている。一 方、東南アジア地域の島嶼部では2種のモデル でほぼ同程度、観測値を過小評価していた。特 に自然植生が支配的な領域でその傾向がより 大きく表れていた。

当日は REAS-NH₃ と NH₃ bi-di 間の、排出量 及び沈着量の検証結果についても言及する。

参考文献:

Bash et al., Evaluation of a regional air-quality model with bidirectional NH₃ exchange coupled to an agroecosystem model, Biogeosciences, 10, 1635–1645, 2013.

Ribeiro et al., World Soil Information Service (WoSIS) -Towards the standardization and harmonization of world soil data. Procedures Manual 2018. ISRIC Report 2018/01, ISRIC - World Soil Information, Wageningen, 166 p.

Zhu et al., Global evaluation of ammonia bidirectional exchange and livestock diurnal variation schemes, Atmos. Chem. Phys., 15, 12823–12843, 2015.
一次元光化学モデルを用いた二硫化炭素の動態解析

*亀崎和輝¹, Yuanzhe Li¹, Sebastian Danielache¹ 1 上智大学 理工学研究科

1. はじめに

主に人間活動によって生成される二硫化炭素 (CS₂)は、硫化カルボニル(OCS)の主要な前駆体の 1 つである。OCS は成層圏硫酸エアロゾルを形成し、 負の放射強制力をもつため、その動態を明らかにす ることは人間活動どれだけ成層圏硫酸エアロゾルに 影響を与えているかを明らかにする上で重要である。

OCS は大気中で濃度がほぼ一定であるにも関わ らず、その収支は釣り合っておらず 70%程度のミッ シングソースが存在する(Berry et al., 2013)。この原 因の 1 つに大気中の CS₂ からの OCS への反応効率 が過小評価されている可能性がある(Whelan et al., 2018)。実際に、CS₂ から OCS への変換率 0.83 は CS₂ とヒドロキシ(OH)ラジカルの反応のみが考慮され ており(Stickel et al., 1993)、報告されている他の CS₂ に関わる反応も考慮することが必要である。そこで、 本研究では CS₂ と OH ラジカル以外の反応も考慮し て、大気中の CS₂の OCS への変換率および対流圏へ の CS₂の排出量を一次元光化学モデルによって評価 することを試みた。

2. 研究方法

CS₂と OH ラジカル以外の大気化学反応をモデル に導入するために、各 CS₂の反応とその反応速度に ついてレビューした。その結果、CS₂と OH ラジカ ルの反応の他にも、十分に対流圏で起こり得る反応 を発見し、以下の3つの反応(Figure 1)をモデルに加 えた。

- CS₂ が OH と反応すると、中間体として SCSOH を形成する。SCSOH はさらに O₂ と 反応することで OCS と二酸化硫黄(SO₂)を形 成するなどさまざまな酸化プロセスに分岐 する(Zeng et al., 2017)。
- CS₂ と O(³P)の反応では主な生成物は CS と SO であるが、一定の割合で CO と S₂ や COS と S を生成する反応も同時に生じる (Singleton et al., 1988)。中間体である CS はさ らに酸素などと反応して OCS などを生成す る。
- CS₂は、280-350 nm 程度の波長の紫外線によって励起する。励起した CS₂*のほとんどは O₂ や N₂ と衝突することで基底状態に戻る。しかし、約 2.5%の CS₂*は O₂ と反応して CS になる。得られた CS は OCS などを生成する (Jones et al., 1983)。

これらの反応を大気化学、輸送、沈着、光化学を 組み込んだ一次元モデルに導入し、得られた濃度 の結果と観測値を比較して CS2 排出量や CS2 から OCS への変換率を評価した。



3. 結果と考察

CS2濃度は高度に伴って減少した。OCS は高度 20 km から高高度になるにつれて急激に濃度が減少し た。これは、先行研究の結果と一致する。得られた 結果と観測値を比較し、CS2の排出量やCS2からOCS への変率を評価した。

さらに、各化学反応をモデル上で on/off を行い、 CS₂ を含む硫黄循環に与える影響を評価することや、 モデル内で設定されている CS₂ 排出量を変化させる ことで硫黄循環全体に対する CS₂ の役割を評価した。 発表では、CS₂ 反応速度の改訂が硫黄循環に与え る影響について議論する。

引用文献

Berry, J et al., (2013), J Geophys. Res.-Biogeo., 118 (2), 842-852.

Whelan, M. E. et al., (2018), Biogeoscience, 15, 3625-3657.

Stickel, R. E. et al. (1993), J. Phys. Chem. 97 (51), 13653-13661.

Zeng, Z et al., (2017), Chem. Phys. Lett., 669, 43-48.

Singleton, D, L et al., (1988), J. Phys. Chem. 17(4), 1377-1437.

Jones, B. M. R et al., (1983), J. Atmos. Chem. 1 65-68.

MOPITT センサーと NICAM-TM モデルの CO 濃度の比較解析

*宮島宏¹,齋藤尚子¹,丹羽洋介²

1千葉大学環境リモートセンシング研究センター,2国立環境研究所

1. 目的

一酸化炭素(CO)は大気汚染物質であり、大気中 の化学反応を通して間接的にメタンなど様々な大気 微量成分の濃度を支配している。対流圏でのCOの 寿命は2か月から数か月と短寿命化学種の中では比 較的長いため、COの大気中での輸送過程を調べる ことは重要である。本研究では、大気輸送モデル NICAM-TM (Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model-based Transport Model)で計算されたCOデー タ (NICAM-TM CO)と衛星 Terra 搭載の MOPITT (Measurement of Pollution in the Troposphere)で観測 された COデータ (MOPITT COデータ)を全球で比 較し、NICAM-TM CO 濃度の特徴の把握と正確性の 検証を試みた。

2. 使用データ

NICAM-TM [Niwa et al., 2011, 2012, 2017]について は、緯度・経度 2.5°グリッド、23 気圧層で計算され た 2005 年から 2016 年の CO 濃度の月平均値データ を使用した。MOPITT については、マルチバンド (熱 赤外 TIR バンド+近赤外 NIR バンド)のレベル 2 プ ロダクトの V8 の CO 濃度データを使用した。なお、 MOPITT の V8 の CO 濃度のデータ質は他データと の比較を通して検証されている[Deeter et al., 2019]。

3. 解析方法

本研究では、二通りの方法で、NICAM-TM CO デ ータと MOPITT CO データの比較を行った。まず、 NICAM-TM CO データの各グリッドに存在する MOPITT CO データについてグリッド毎に月平均を 計算し、対応する NICAM-TM CO データ (NICAM-TM CO オリジナルデータ; CO_{NICAM-org}) と比較を行 った。次に、NICAM-TM CO オリジナルデータに、 モデルの地表面温度の条件と近い MOPITT 観測の CO アベレージングカーネル行列 (AK) を適用した 値 (NICAM-TM CO AK データ; CO_{NICAM-AK}) と MOPITT CO の月平均値と比較した。

 $\mathrm{CO}_{\mathrm{NICAM-AK}} = \mathrm{CO}_{\mathrm{MOPITT \ a \ priori}} + \mathrm{AK} \quad (\mathrm{CO}_{\mathrm{NICAM-org}} - \mathrm{CO}_{\mathrm{MOPITT \ a \ priori}})$

ここで、CO_{MOPITT a priori}は、MOPITT CO データの濃度 導出に用いられている先験値である。

4. 解析結果

地表付近 (800-900 hPa) では、北緯 30°以北の広い 領域で、NICAM-TM CO オリジナルデータ、NICAM-TM CO AK データの方が、MOPITT CO データより も 10-30 ppb 程度低くなっていた。図1(a)に、地 表付近の 2016 年 1 月の NICAM-TM CO AK データ と MOPITT CO データの比較結果を示す。NICAM-TM CO データの方が MOPITT CO データより全体に 濃度が低いものの、両者の差が 10-20%以内に収まる 地点は全体の 2 割を超えていた。しかし、乾季にバ イオマス燃焼が頻発するアフリカ、南アメリカ、東 南アジアの低緯度域では、局所的に NICAM-TM CO オリジナルデータ、NICAM-TM CO AK データの方 が MOPITT CO データよりそれぞれ 10-30 ppb、10-20 ppb 程度高くなっていた。アベレージングカーネ ルを適用した方が両者の差は小さくなっていた。

上部対流圏 (300-200 hPa) においても、NICAM-TM CO オリジナルデータおよび NICAM-TM CO AK デ ータと MOPITT CO データの比較結果は、地表付近 の比較結果と概ね同様の傾向であった。しかし、上 部対流圏の北緯 0-30°においては、3-5 月に他の月よ りも、NICAM-TM CO オリジナルデータ、NICAM-TM CO AK データの方が MOPITT CO データよりも それぞれ 40-50 ppb、30-40 ppb も低い地点が多く見 られることが分かった。図1(b)に、上部対流圏の NICAM-TM CO AK データと MOPITT CO データの 比較結果を示す。NICAM-TM CO データの方が全体 に濃度が低いものの、両者の差が10-20%以内に収ま る地点は全体の3割程度であった。月ごとに見ると、 1-6月に NICAM-TM CO データが MOPITT CO デー タに比べてより低濃度になる傾向にあることがわか った。

本研究の結果から、地表付近と上部対流圏において、NICAM-TM CO データは MOPITT CO データに対してやや過小評価であることが分かった。ここでは 2016 年の比較結果を示したが、講演では、より長期間の比較、緯度帯毎・特徴的な領域別の比較、NICAM-TM CO データおよび MOPITT CO データ濃度の季節変動について示す予定である。



図 1. MOPITT CO データと NICAM-TM CO AK デ ータの 2016 年 1 月の比較結果。(a) 地表付近(b) 上部対流圏。

スーパーコンピュータ「富岳」を用いた 大アンサンブル・高解像度大気環境シミュレーション研究

*八代尚¹ 1国立環境研究所

1. 「富岳」の開発と成果創出加速プログラム

日本の旗艦スーパーコンピュータである富岳は、 2014 年より理化学研究所と富士通の共同で開発が 進められ、2020 年 6 月にコンピュータの計算性能等 を競う世界ランキングの4部門で世界一を獲得した。 富岳は開発当初より様々な科学分野で実際に用いら れているアプリケーションの性能向上を目指した 「コデザイン」を進め、気象・気候分野からも全球 非静力大気モデル NICAM とデータ同化手法のひとつ である局所アンサンブル変換カルマンフィルタ LETKF が代表アプリケーションとして選定された。

NICAM と LETKF はシステム構成の検討、コンパイラ や数値計算ライブラリの改良に貢献し、富岳は演算 性能とデータ転送性能のバランスの取れた、多くの 気象・気候モデルにとって使いやすく性能の出しや すいマシンとなった(八代, 2020)。

富岳の計算資源を優先的に無償で使用し、速やか な成果創出を進めることを目的に、スーパーコンピ ュータ「富岳」 成果創出加速プログラムが 2020 年度 より開始された。「防災・減災に資する新時代の大ア ンサンブル気象・大気環境予測」は「国民の生命・ 財産を守る取組の強化」領域の一課題として採択さ れ、現在、供用開始前の富岳や複数の大学のスーパ コンピュータを利用して研究が進められている。本 課題は大きく3つの研究サブテーマに分かれており、 それぞれ領域気象予測、全球気象予測、大気環境予 測研究に主眼を置いている。またテーマを横断する 形でデータ同化技術に関する研究を行っている。全 テーマに共通して、従来のアンサンブルシミュレー ションで用いてきた数十メンバーでの実験から飛躍 した 1000 メンバー程度の 「大アンサンブル」 実験を 行い、確率予測情報の質やデータ同化を用いた予測・ 推定性能の大幅な向上を目指している。

2. 高解像度・大アンサンブルによる地球環境予測 本課題のサブテーマ3では衛星観測データを用い、 大気放射に影響を与える温室効果ガスやエアロゾル 等の大気トレーサと気象場を同時にデータ同化する ことで、気象予測と大気環境予測を繋ぎ、気象予測 性能の向上とトレーサ移流の再現性向上の両方を目 指している。また、エアロゾル、温室効果ガス、単 寿命汚染気体、水安定同位体比等の全球高解像度・ 大アンサンブルデータ同化実験を進め、濃度再現性 向上と地表面吸収・放出フラックスのトップダウン 推定精度の向上を目指している。化学気候モデルは 計算量が数値気象モデルよりも多いために、これま で空間解像度やアンサンブル数をなかなか向上させ られなかった。富岳の絶大な計算能力を有効に用い ることにより、GOSAT シリーズや Sentinel-5P/ TROPOMI、静止大気環境観測衛星のフットプリントに 匹敵する解像度での大気環境シミュレーションの実 現を目指している。

サブテーマ3では加えて、先進的大規模データ同 化研究として、これまでにない規模での全球超高解 像度・大アンサンブル気象データ同化シミュレーシ ョンの実証試験の実施を担っている。富岳のほぼ全 系を用いた全球 3.5km, 1024 アンサンブルでの NICAM-LETKF ベンチマーク試験を行い、シミュレー ションとデータ同化の両方において十分な計算性能 を発揮することを実証した(Yashiro et al., 2020)。

参考文献

- 八代尚 (2020):重点課題4アプリケーションコデザイン,ポ スト京重点課題4最終成果報告会,東京都,2020年1月31日.
- Yashiro et al. (2020): A 1024-Member Ensemble Data Assimilation with 3.5-Km Mesh Global Weather Simulations, SC' 20: Proceedings of the International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis. Nov. 9-19, 2020.

超小型衛星搭載テラヘルツセンシングシステムの 火星大気観測感度検討

*山田 崇貴¹, 笠井康子¹ 1 情報通信研究機構

1. 目的及び背景

情報通信研究機構(NICT)では、小型・軽量・低電力 なテラヘルツセンシングシステムを宇宙航空研究開 発機構と共同で開発している. 超小型衛星に搭載可 能な形状(<384×384×357mm), 質量(7.825kg), 消費 電力(30 W)であり、様々なプラットフォームへの搭 載が期待され打ち上げ機会を大型機よりも得やすい ことから、今後地球や月、火星等の大気観測や地表 面資源探査の機会の取得を目指している. 観測検討 には、観測データから物理量を推定(逆問題解析)す る際の誤差伝搬をフォワードモデル(各種物理量か ら観測データを計算するモデル)を用いて導出する. NICT ではフォワードモデル及び誤差解析モデルを 開発している.本研究では、主に火星大気観測想定 時における上記モデルを用いたテラヘルツセンシン グシステムによる観測感度検討を行い、観測可能な 物理量及び期待される科学的インパクトについて議 論する.

2. テラヘルツセンシングシステム

開発しているシステムの観測周波数は 474.64 – 475.64 GHz (下側波帯:LSB)と 486.64 – 487.64 GHz(上 側波帯: USB)の両側波帯であり,水分子(474.689 GHz),酸素分子 (487.249 GHz),オゾン(487.349 GHz),過酸化水素(475.203GHz)の遷移周波数を主に 含む.システム雑音温度は 3000K 程度,周波数分解 能は 100 kHz 程を想定している.

本研究ではこれまで検討されていなかった火星大 気表面からの着陸機搭載を想定した観測検討を行う. 着陸予定時期は太陽経度 49 度,緯度 10.5 度,経度 85.5 度である.

3. 観測感度検討

図1は上記条件における,火星地表面から真上を 観測した際のシミュレーションスペクトルである. フォワードモデルシミュレーションは散乱を無視し たライン-バイ-ライン法による放射伝達計算であり, 分光パラメータは High Resolution Transmission (HITRAN)データベースより取得している.火星大 気では主成分である CO₂の連続吸収帯が見られ,そ の CIA(Collisional Induced Absorption)は HITRAN デ ータベースより導出している.5.5 – 5.8 GHz の中間 周波数(IF)では遷移が見られず CIA の連続吸収帯が 見られるが,スペクトル校正の際の定在波成分の除 去及び校正時の基準スペクトル強度としての適用を 検討している. 図2は各分子種,温度プロファイルの変化に対す る観測スペクトル強度の感度を表したもの(ヤコビ アン)である.酸素分子は地表から高度60km付近, 水分子は高度30km付近まで感度があることが分か る.このヤコビアンを用いて,各種誤差解析が可能 となり(図3),観測誤差やフォワードモデルのパラ メータ誤差,導出プロファイルの事前確率分布によ り,ベイズ推定法を用いて誤差解析を行う.

本発表では上記解析の詳細及び,火星大気組成の 日変化・季節変化から,本システムにて観測可能な 振る舞いを考察し,期待される科学的インパクトに ついて議論する.



図2各分子種,温度プロファイルの変化に対する 観測スペクトル強度の感度。



つくば FTIR で観測されたオゾン高度分布の検証

*村田 功¹, 中島 英彰^{2,1}, 森野 勇², 武田 真憲^{1,2} ¹東北大学大学院環境科学研究科, ²国立環境研究所

東北大学と国立環境研究所では、つくばでの NDACC 観測規約に基づく FTIR 観測を 1998 年から 行っている。今回報告するオゾンについては NDACC/IRWG では 10μ m 帯での解析が推奨されて いるが、Bruker IFS 120 HR による観測を行っていた ときには TCCON との兼ね合いで 10μ m 帯を観測す る MCT 検出器を使用していなかった期間もあり、 ここでは Bruker IFS 125 HR による MCT 検出器を用 いた観測を再開した 2014 年以降を対象とする。な お、2006 年以前にも Bruker IFS 120 M による MCT 検出器を用いた観測は行っているが、当時は装置の 光軸調整が不完全であり、高度分布の導出には重要 となる装置関数を用いた観測スペクトルの補正がま だ十分検証できていないため、今回は対象外として いる。

解析にはロジャーズ法を用いたスペクトルフィッ ティングプログラム SFIT4 を用い、NDACC/IRWG で 推奨する解析パラメータを用いて 1000.0 – 1005.0 cm⁻¹の波数領域のスペクトルからオゾン高度分布を 導出した。この波数領域には多数のオゾン吸収線が 存在し、これらの情報を組み合わせることによって 独立した高度情報量の目安である DOFS が5 程度と 高い値が得られる。なお、装置関数に関しては現在 使用している Bruker IFS125HR は光軸調整がほぼ完 全で、HBr セルを用いた装置関数の測定でも問題が ないことが確認されているため、補正は行っていな い。

オゾンの全量及び高度分布の検証には Brewer 分 光計やオゾンゾンデの観測データを使えるため、 FTIR の解析手法の検証としてはまずオゾンで行う



 図 1. FTIR および Brewer 分光計で観測された オゾン全量の比較

ことが多い。特につくばの場合は高層気象台がごく 近傍にあるため、観測地点の違いを気にしなくてよ い点で有利である。検証データには WOUDC に登録 されている館野のオゾン全量およびオゾンゾンデデ ータを使用した。

図1に、まず全量に関して FTIR から導出された 値の Brewer 分光計の観測値に対する比を 2019 年に ついてプロットしたものを示す。値はおよそ 1.0-1.1 の範囲に分布しており、平均的には 5%ほど FTIR の 方が大きくなっていることが分かる。この傾向は Vigouroux, et al.[2008]と一致しており、おそらく吸収 線強度のバイアスによるものであろう。なお、グラ フには若干夏季に高く冬季に低い傾向も見られるた め、H₂O など解析領域に吸収のある干渉成分による 影響も考えられ、今後さらに検証が必要である。

講演では、オゾンゾンデとの比較による高度領域 毎の精度検証も含めて報告する。

Abbreviation:

- NDACC: Network for the Detection of Atmospheric Composition Change
- IRWG: InfraRed Working Group
- TCCON: Total Carbon Column Observing Network
- DOFS: degrees of freedom for signal
- WOUDC: The World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre

Reference:

Vigouroux, et al., Evaluation of tropospheric and stratospheric ozone trends over Western Europe from ground-based FTIR network observations, Atmos. Chem. Phys., 8, 6865-6886, 2008. http://www.atmos-chem-phys.net/8/6865/2008/.

自動車排気ガス中に含まれる亜硝酸濃度の測定(2)

*須藤 潤¹, 近藤 美則², 今野 秀徳², 中嶋 吉弘¹ 1 東京農工大学, 2 国立環境研究所

1. 序論

亜硝酸(HONO)は太陽光によって光解離し、光化 学オキシダント生成に関与する OH ラジカルを生成 する。光化学オキシダント生成機構の解明のために は、OH ラジカルの前駆物質である HONO の動態解 明が重要である。当研究室では自動車から排出され る HONO の排出係数の推計を行ってきた。本研究で は、自動車排出ガス規制(2009 年排出ガス規制)以 前に製造された自動車を対象に、広帯域キャビティ 増幅光吸収法(IBBCEAS)による自動車排気ガス中 の HONO 濃度およびその他の微量成分の測定を行 い、HONO の排出係数(Emission Factor: EF)値を推 定したので報告する。

2. 実験方法

実験は国立環境研究所のシャシーダイナモメータ ーと定容量採取装置(CVS)を用いて行った。実験 車両をシャシーダイナモメーターに設置し、テール パイプを CVS に取り付け、加湿温調された清浄空気 で排気ガスを希釈した。希釈された排気ガスを IBBCEAS へ直接導入し、HONO および NO₂のリア ルタイム測定を行った。HONO 測定と同時に排気ガ ス内の微量成分(CO、CO₂、NOx、THCs、CH₄)の 測定(MEXA-7200,HORIBA)を行った。実験に用い た車種は、2009年排出ガス規制以前に製造された2 台のガソリン乗用車(NO.1, NO.2)である。それぞれの 車両の詳細を表1に示す。自動車の走行モードは3 種類(JC08(C/H),定常走行 60 kmh⁻¹ 100 kmh⁻¹)を選 択し、各走行モードに対して3回試験走行を行った。

車両	NO.1	NO.2
重量 (kg)	1,400	220
走行距離 (km)	71,500	60,716
燃料	ガソリン	ガソリン
燃費 (km/l)	11.7	18.3
登録年	1998	1998
生産国	日本	日本

表1 2台の試験車両の詳細

3. 結果と考察

本実験によって得られたガソリン自動車の各走行 モードにおける HONO の平均濃度を図1に示す。 No.1 では JC08C モード、No.2 では JC08H モードで HONO 濃度が最大となった。またすべての走行モー ドで No.1 の濃度が No.2 の濃度を上回った。

図2に、各自動車のEF値を示す。2009年自動車 排出ガス適合車両の報告値(1,2)と本実験で求められ た EF 値を比較すると、本実験の EF 値がガソリン自 動車(1)の EF 値の 4~40 倍であり、ディーゼル自動車 (2)の EF 値の 0.7~7 倍であった。この結果は排出ガ ス規制の強化に伴い、主要な微量成分と同様に HONOの排出量がガソリン、ディーゼル自動車とも に抑えられていることを示している。

本実験で求められた HONO/NOx 比の値は 20 年 以上前の報告値(3, 4)と同程度であったのに対し、 2009 年規制適合車(1,2)と比較すると、本実験の値は ガソリン車の 1/10~1 倍であり、ディーゼル自動車の 1/60~1/5 倍であった。この結果より自動車排出ガス 規制の影響によって NOx は大幅な削減がみられた ことに対し、HONO 濃度は NOx 濃度ほど差がみら れず、相対的に HONO 濃度が上昇したことを示して いる。



■定常60 km/h ■定常100 km/h

図2 自動車排出ガス中の亜硝酸排出係数

4. 参考文献

- (1) Y. Nakashima and Y., Kajii, *Sci. Tot. Environ.*, (2017), **575**, 287-293.
- (2)中嶋他,第60回大気環境学会年会要旨集.
- (3) J. G. Calvert et al., *Res. Chem. Intermed.*, (1994), **20**, 463-502.
- (4) J. N. Pitts Jr. et al., *Geophys. Res. Lett.*, (1984), **11**, 557-5601984.

郊外とトンネル内における大気中揮発性有機化合物の比較

*辰巳紘奨1,加藤俊吾1

1 東京都立大学

1. 緒言

現在日本では、多くの大気汚染物質は環境基準達 成してきている。しかし、光化学オキシダントは環 境基準がほぼ達成されていないだけでなく、注意報 の発令も続いている。揮発性有機化合物(VOC)は 光化学オキシダントの原因物質の一つであるため、 VOC の挙動を把握ことは大気環境改善のために重 要である。本研究では、都市郊外の外気と代表的な 人為起源である車からの排ガスの影響が大きいトン ネル内の空気との比較を行った。

2. 実験

郊外の試料として東京都立大学南大沢キャンパス (TMU)にて 2016 年 6 月から 2020 年 7 月の期間サ ンプリングを行った。週に一回の頻度で 24 時間かけ て金属容器に約 2mL/min で大気を採取した後、分析 のために窒素で加圧希釈した。トンネル内でのサン プリングは 2020 年 1 月に八王子駅の北に位置する ひよどり山トンネル(長さ約 1km)で行った。ダイ アフラムポンプを用いて 1 分間で金属容器に入れ、 5 サンプルを採取した。サンプルは、濃縮装置(Entech 7000)と GC-FID (HP 6890)にて分析した。VOC が 58 種混合した標準ガス (PAMS- J58、住友精化)を 用いて、定性・定量を行った。

3. 結果及び考察

3-1. TMU の通年測定結果及び季節変動

TMU の 代表的な 5 種類の VOC の通年の測定結 果を図 1 に示す。基本的に VOC は夏場が低く、冬 場が高い季節変化を示す。これは夏季には地表の大 気の混合や OH ラジカルによる VOC 除去反応が冬 場に比べ促進されるためと考えられる。一方で植物 起源のイソプレンは、夏は冬に比べ光合成が盛んに 行われため夏季に高濃度となった。



図 1. VOC の通年濃度変化(エタン、プロパン、エチレン、トルエン、イソプレン)

3-2. TMU の外気とトンネル内大気の比較

TMU 外気とトンネル内大気の各 VOC 濃度の平均 値を図 2 に示す。濃度はトンネル内のほうがかなり 高かった。相対的な組成比を比べると、アルカン類 ではガソリン成分であるブタンやペンタンがトンネ ル内で高かった。一方、TMU 外気ではプロパンやへ キサンが高く、それぞれ家庭用の LP ガスや大学内 の実験室の影響と考えられる。トンネル内はアルケ ン類が高く、車から排出されたアルケンは時間が経 つにつれ除去反応が進み低濃度となったと考えられ る。芳香族は比較的どの成分も比較的同じような濃 度比となった。



図 2. VOC 別濃度比較(TMU 外気、トンネル)

3-3. VOC 分類別組成比及び OFP

濃度とオゾン生成ポテンシャル(OFP)の分類別 組成比を図3に示す。TMUでは芳香族のOFPの割 合が非常に大きく、排出量が多いトルエン及びキシ レンがオゾン生成に大きく寄与した。一方、トンネ ル内ではアルケンの寄与がかなり大きなものとなっ た。

実際の外気で観測される VOC 濃度はすでにオゾン を生成する反応をある程度終えたものであろうから、 車の排ガスによるオゾン生成への影響は外気で観測 される VOC 組成比で見積もるよりも大きなものと なるであろう。



図 3. TMU 外気とトンネル内での濃度及び OFP の 分類別組成比

能登半島珠洲での VOC 長期測定

*矢田茂久¹, Hon-Lam-Hong Sandra¹, 加藤俊吾¹, 定永靖宗², 松木篤³

1 東京都立大学, 2 大阪府立大学, 3 金沢大学

1. はじめに

東アジア地域の経済発展に伴い、越境大気汚染が 懸念されている。日本海沿岸部に位置する能登半島 珠洲にある金沢大学能登スーバーサイト(北緯37.46 度、東経137.36 度) は海岸から120m ほどに位置し ており、偏西風によって運ばれてくる東アジア地域 からの空気塊が日本に入ってくる時点でどのような ものであるのかを観測するのに適している。揮発性 有機化合物 (VOC) は光化学オキシダントや粒子生 成に関与するため、高濃度地域(都市域)での測定 はよく行われているが、清浄なリモート地域での測 定はごく限られている。VOC は物質によっては大気 中寿命がある程度長く、リモート地点でもある程度 の濃度で存在し、長距離輸送による影響もある。日 本の中心的な緯度のバックグランド地点において VOC がどのような濃度や季節変動をするのか長期 観測により調べた。

2. 観測方法

2014年3月から一週間に一度の頻度で珠洲の大気 のサンプリングを行った。6Lの金属容器にダイアフ ラムポンプを用いて1分間サンプリングし、東京都 立大学の実験室に送って分析を行った。濃縮装置 (Entech7000)にて 500cc を濃縮してから GC-FID (Ageilent6890)により分析を行った。VOC 標準ガ ス (PAMS-J58、住友精化)を用いて定性・定量をお こなった。また、2018年よりサンプル大気中の水素 濃度の測定もGC-RGD (還元性ガス検出器)により おこなった。

3. 結果と考察

3.1 VOC 濃度

観測サイトは海岸から 120 m ほどに位置している が、場合によってはごく近傍の植生や人為活動の影 響、また日本国内の影響を受けることがあるため、 データの異常値を取り除くようにした。VOC を成分 ごとの平均値でみるとアルカンが大半を占めた。そ の中でも炭素数が多くなるにつれて大気中寿命が短 くなるため、平均濃度も低くなった。

3.2 季節変動

測定した VOC で一番大気中寿命が長く典型的な 濃度季節変動をするエタンの結果を図1に示す。比 較的寿命の長い VOC については冬季~春季に高濃度、 夏季に低濃度となる季節変動が見られる。これは日 射の強い夏季に最大となる OH ラジカルによる除去 反応の季節変化や、夏季に清浄な海洋性の大気の影 響を受けやすいことで説明される。大気中寿命が短 くなるにつれ、季節変動はあまり明確ではなくなる。 イソプレンなどの植物由来の VOC は夏季に高濃度 となる季節変化が見られるが、大気中寿命が数時間 程度なので、ローカルな植生の影響であると考えら れる。

3.3 バックワードトラジェクトリー解析

NOAA の HYSPLIT Trajectory Model を用いて、 Backward trajectory を行った。風向を太平洋、中国(上海)、韓国+北京、韓国、北朝鮮、北の六つに分類した。図1のエタン濃度を空気塊起源ごとに分けてプロットしてある。太平洋起源のとき低濃度であり、中国(上海)起源などのときは高濃度となる傾向がみられた。しかし、このような長期の観測結果においては、空気塊起源ごとの季節による頻度の違いが大きく反映されてしまう。空気塊起源ごとの長距離輸送による影響の差を見るためには季節を限定するなどして比較する必要がある。



図1 珠洲での空気塊起源ごとに分けて示したエタン濃度の変動

オゾン反応性計測に基づく植物由来揮発性有機化合物の 放出把握に関する在宅研究

*松本 淳¹ 60日七学人間私学学

1 早稲田大学人間科学学術院

1. はじめに

生物起源揮発性有機化合物 BVOCs は二次有機エ アロゾル SOA や対流圏オゾン O3の前駆体として特 に注目されている。BVOCsの多くは C=C 二重結合 を有し、O3反応が重要となる。我々は BVOCs 包括 把握を目指し、オゾン反応性全量 R₀₃ (= Σk_i [VOC(i)]) の測定装置(Ro3計)を構築してきた。BVOCs 混合 試料の R₀₃ は、O₃ 添加時の BVOCs+O₃ 反応に伴う O3減少の高精度測定により定量する。O3と反応しな いアルカンは影響しない。これまでに BVOCs を Ro3 として包括的に捕捉する装置を世界に先駆けて実用 化し、狭山丘陵での森林大気観測試験を実施して、 夏季日中の気温上昇に伴い Ros 測定値が増加する温 度依存性を確認するとともに、従来法で捕捉困難な 未測定成分がO3反応に寄与する可能性も示した[1]。 以上を踏まえた次の段階として、実際の植物から大 気に放出される BVOCs を Ro3 計により直接把握し、 森林大気観測で得る Ros データと組み合わせて BVOCs 放出特性を解明することが課題となる。一般 的な植物放出 BVOCs の直接測定には、枝エンクロ ージャー法のような放出ガスの収集手順が用いられ る。そこで本研究では、まず今までの大気観測結果 を詳細に検証し、森林大気 Ro3 データに基づいて算 出する BVOCs 放出特性について理解を深める。こ れと並行して、植物放出 BVOCs を Rog として実地で 直接把握する「放出測定系」を確立する準備として、 発生源から気相へ放出される成分を測る模擬実験系 を構築して実証試験を行なった。なお本研究は、感 染症対策のため在宅研究として実施した。

2. 森林大気観測結果のさらなる検証

森林大気観測での R₀₃ データの妥当性と有意性を 担保するために、以下の各項目を詳細に検証した: (1) 試料共存成分 (O₃ や NO) の影響、(2) 外気観測 時の装置性能と測定値の不確定性、(3) Ro3の時系列 データと時間帯ごとの分類、(4) 捕捉される反応性 成分(VOCs, NO, NO₂)の内訳、(5) Ro3 測定値の温度 依存性と日変化パターン。(1)のうち共存 O3の影響 は本装置にて妥当に除外できることを、原理的かつ 実験的に確認した。一方、O3反応の速いNOの寄与 R_{NO}は、NO 添加実験の結果を考慮して全反応性 RALL から減算し、VOCs 由来の反応性 Ro3 を算出す る手順を確立した。ただし(2)にて R_{NO}減算の誤差伝 播を考慮したところ、NO 濃度が大きく短期変動す る場合に、 R_{03} としての最終的な不確定性 $\sigma(R_{03})$ が増 大した。Ro3の測定と解析の際には、共存 NO とそ の変動の正確な把握が重要であることを確認した。

(3) (4) (5)ではσ(R₀₃)を考慮して測定値の有意性を検 証しつつ、観測結果に関する考察を深めた(詳細は発 表にて紹介予定)。そのうち(4)では、RALLの内訳を詳 細に知るために、時間帯ごとに RALL 対 Ro3の相関を 調べた(図 1)。夏季高温日の午後(図中の時間帯'P.04') および夕方(同'P.05')には、不確定性の小さな点が傾 き 1.0 の直線 (Ro3=1.0 RALL) に沿って分布した。こ の時間帯は、NOによる RALL への影響は小さかった (Ro3=RALL) うえ、各点での Ro3 の有意な捕捉(Ro3 σ(R₀₃)>0) が確認された。この日は P.04 に最高気温 が 36.2℃に到達した高温日であった。また、P.04 と P.05 の R_{NO}変動は特に小さかった。同日の昼前(P.03) には、傾き 1.0 の線より下に点が分布しつつ不確定 性がやや大きいことから、RNO の寄与と変動が見ら れたが、Ro3を有意に捕捉した。観測データの検証の 結果、BVOCs を有意に捕捉した状況「特段の高温下 でNO影響が小さいこと」を確認することができた。

3. 放出測定系の構築に向けた実証試験

次に、放出測定系の原理の確認と手順の練習のために、模擬実験系を試作して初歩的な技術実証試験を実施した。模擬実験系では、密閉容器内に設置した発生源からの放出成分を一定流量の清浄空気とともに配管に流通し、測定器に導入して濃度変化を測った。今回は取扱いの簡便な組合せとして、炭酸飲料からの CO₂ 放出量を簡易センサーで測った。CO₂ は市販センサーで測定可能であり、放出と希釈を考慮すれば濃度変化を予測できるため、放出測定系の検証に適すると考えた。試験の結果、予測計算により説明可能な実測濃度変化を得た。また、タブレット端末と WiFi を用いて測定系を遠隔監視する初期試験に成功した。今回は放出測定系の初歩的な構築と実証試験に成功した。今後は Ro3 計と放出測定系を組合せ、BVOCs 放出測定の進捗を図る。



- 図1 全オゾン反応性 R_{ALL} と VOCs 寄与 R₀₃の相関 (時間帯 P03, P04, P05 は本文参照)。
- 謝辞 本研究は、科学研究費助成事業 17K20048 および 20K12152 の助成を受けて実施された。

参考文献 [1] 松本淳、大気化学研究 043A01 (2020).

東京都江東区での大気中水素濃度変動要因の検討

*橋間美弥¹,加藤俊吾¹,小谷野眞司²,齊藤伸治²,鶴丸央² 1 東京都立大学, 2 東京都環境科学研究所

1. はじめに

現在主なエネルギー源として利用されている化石 燃料は有限で環境負荷が大きい。これに変わる環境 負荷の小さいエネルギー源として水素エネルギーの 利用が促進されている。日本では水素ステーション が 2020 年 8 月現在 133 箇所稼働しており、2025 年 までに計 320 箇所の設置を目指すなど、水素社会へ の転換期を迎えようとしている。将来的な水素の利 用増加に伴い、大気中への水素放出量は増加すると 考えられる。水素(H2)は大気中のバックグラウンド 濃度として 530ppb 程度存在している。都市域などの 発生源ではこれに加わる形で Hっ濃度の増加が見ら れる。今後の水素エネルギー利用の増加による影響 を考える上で、H2濃度の現状を把握する必要がある。 本研究では、大気中H2濃度の現状を知るために東京 都心での H₂濃度測定を行った。加えて、発生源の特 定のため揮発性有機化合物(VOC)濃度を測定し活用 した。

2. 測定

一般環境大気中に存在する濃度レベルの水素を測 定する方法として、SRI 社の還元ガス検出器 (Reduction Gas Detector: RGD, SRI 110)を用いた。こ の装置は酸化水銀(HgO)に還元性ガスを通すことで 生成した水銀(Hg)を紫外吸光法で検出する原理を持 つ。通常の大気に含まれる還元性ガスには H₂の他に 一酸化炭素(CO)があり、これらをガスクロマトグラ フィー(GC)で分離する必要がある。GC は SRI 社 8160Cを用い,カラムは MS13X(1.8 m)を使用した。 キャリアガスはAirを5 ccM で流し、カラムは50℃、 検出部は 300℃で一定にした。サンプルは1 mL のガ スタイトシリンジを用いて注入した。比較・定量に 用いた標準ガスは、Air 希釈 0.97 ppm のH₂、Air 希 釈 1.61 ppm の CO である。

測定サンプルは都心に位置する東京都環境科学研 究所(江東区)で採取されたものを用いた。採取頻 度は 2018 年 6 月から 2020 年 3 月までは週 2 回、 2020 年 4 月以降は週 1 回で、大気を金属容器にダイ ヤフラムポンプにて採取した。

VOC 濃度測定は 濃縮装置(ENTECH7000)で濃縮 を行い GC-FID (HP-6890)で分析した。サンプル大気 は H₂ 測定と同様のものを用いた。

3. 結果と考察

H₂ 濃度はバックグラウンド地域の濃度(530ppb)よ りも高濃度の範囲で変動しており、H₂発生源による 影響をうけていることが考えられる。一方、自動車 を主な排出源とする CO 濃度は、冬に高濃度、夏に 低濃度という日本付近で観察される一般的な変動が 見られた。図1にH₂と COの相関図を示す。データ を季節ごとに分けると、とくに冬の測定データでよ い相関を示すが、夏の測定データは CO 濃度と比べ H2 濃度が高くなる傾向が見られた。夏季に H2 を多 く含む発生源の影響を受けていることが考えられる。



図1 季節で分けた江東区のH2・COの相関プロット. 春:3~5月,夏:6~8月,秋:9~11月,冬:12~2月

発生源を特定するため、風向を用いた検討を行った。夏は東や東南、南からの風が約7割、冬は北西や北からの風が約7割を占めていた。夏の風上方向には30km付近に化学工業の割合が高い京葉工業地域が位置しており、そこにH2発生源があることが推定された。冬の測定結果は全体の測定結果のベースラインを形成しており、主に車による排出を反映していると推測できる。

化学工業に由来する大気が流入しているかを確か めるため VOC 濃度を用いて更なる検討を行った。 化学工業の主成分であるエチレン・プロピレンの濃 度は東や東南、南からの風で高濃度傾向にあること が確認された。これらのサンプル大気では水素濃度 も高濃度になる傾向が見られた。したがって京葉工 業地域による影響で H₂ が高濃度観測されている可 能性が高いことが示唆される。



図2 風向で分けた江東区のエチレン・プロパンの 濃度分布. ①エチレン春秋冬, ②エチレン夏, ③プ ロピレン春秋冬, ④プロピレン夏

日本周辺における大気中ラドン濃度の短周期変動

*石島健太郎¹, 坪井一寛¹, 松枝秀和^{2,1}, 田中泰宙¹, 眞木貴史¹,

中村貴 3,丹羽洋介 4

1 気象研, 2 独協大, 3 気象庁, 4 国環研

1. はじめに

気象庁では、1990年代前半より大気中温室効果気 体濃度の連続観測を4カ所の地上観測所において継 続している。そうして得られる濃度のシノプティッ ク変動の一因である大陸からのエアマス輸送を観測 的に特定することを目的として、2000年以降気象研 が主体となって大気中ラドン(²²²Rn)濃度の観測を 行っている。ラドンは半減期約 3.8 日の放射性希ガ スで、ほぼ陸域起源であり発生量のオーダーも概ね 分かっているため、大気成分の変動中の陸起源シグ ナルの特定の他、大気輸送モデルの輸送検証にも有 用なトレーサーである。

本研究では、気象庁観測所で得られたラドン濃度 観測データを、大気輸送モデルも用いて、シノプテ ィックスケール以下の短周期変動に着目して解析を 行った結果について報告する。

2. ラドン濃度観測およびモデル計算

本研究では、気象庁の観測所: 綾里 (39.0N, 141.8E)、 父島 (27.1N, 142.2E)、与那国島 (24.5N, 123.0E)、南 鳥島 (24.3N, 154.0E) で、Wada et al. (2010)の手法に より得られたラドン濃度観測データを用いた。

モデル計算には気象庁・気象研共同開発の GSAM-TM を用い、解像度 TL95 (~1.9°x1.9°) と TL319 (~ 0.56°x0.56°) で行い、水平風を JRA55 にナッヂング した. ラドンフラックスは一定値 (Jacob et al., 1997) と月別値 (Hirao et al., 2010) を用いて比較した。後 者は土壌粒子中ラジウム含有量の空間分布や土壌水 分量変化による土壌空隙率の変動等を考慮している。

3. 結果

図1に綾里の大気環境観測所および南鳥島気象観 測所におけるラドン濃度の日内変動を示す。綾里で は日中に極小となる明瞭な日内変動が見られる。観 測所は太平洋に面した高所にあるとはいえ、近傍の 陸域影響が強いため、ローカル放出によるラドン供 給がありつつ境界層高度が上がる午後に低濃度とな っている。季節的には、冬は西寄りの風で陸域影響 が強まり、夏は東寄りの風でそれが弱まるため、夏 冬で位相がやや異なっていると考えられる。本図で 用いられているモデルの月別フラックスは、夏の日 本列島のラドン放出を過小評価している傾向がある ため、変動幅も観測よりも小さめとなっている。一 方で、図に示してはいないが、一定フラックスを用 いたモデル計算は夏の変動幅をほぼ再現するが、冬 は過大評価傾向にある。綾里では Δ^{222} Rn(日平均か

らの偏差) と δ^{222} Rn (Δ^{222} Rn を日平均値で割ったも の)はほぼ同じ変動位相となっている。それに対し、 南鳥島におけるΔ²²²Rn の変動は規則性に乏しい一 方で、δ²²²Rn は冬季に夜間に高く日中に低いという 変化を示し、モデルもそれらを概ね再現している。 南鳥島における島内あるいは周辺海水からのローカ ルなラドン放出は微小と考えられるが、大陸からの イベント的輸送により高濃度が特に冬季に多く見ら れる。そのような場合の濃度変動の大きさは平常時 の日内変動振幅を容易に凌駕するため、Δ²²²Rnから 日内変動の的確な情報を得るのは難しい。しかし、 大陸より運ばれてきたラドンの濃度が現地の境界層 高度の変動によりさらに変化すると仮定すると、δ ²²²Rn によってその変動シグナルが見えてくる可能 性はあると考えられる。発表ではシノプティック変 動や関連するモデル感度実験も含めて報告する。



図 1 綾里 (RYO) と南鳥島におけるラドン濃度お よび境界層高度の各月における日内変動の平均値(0 ~23 時の値)。但し、 Δ は日平均からの偏差であり、 δ^{222} Rn は Δ^{222} Rn を日平均値で割ったもの。

富士山頂での火山性ガス越冬モニタリングシステムの構築

*高橋智樹¹,加藤俊吾¹,三浦和彦²,大河内博³,鴨川仁⁴,土器屋由紀子⁵, 荒島謙治⁶,西出葵嘉⁶,尾花文一⁶

(1東京都立大学,2東京理科大学,3早稲田大学,4静岡県立大学,5富士山 環境研究センター,6ソニーセミコンダクタソリューションズ)

1. 緒言

富士山頂は高度 3776mの自由対流圏にあり,遠方か ら長距離輸送される汚染大気を捉えるのに適してい る. そのため、これまで夏季の富士山頂において、 S02などの大気汚染物質の観測を行ってきた.この数 年の夏季の富士山 頂の観測から,石炭燃焼由来では なく国内の火山活動により放出される火山性ガスが 検出される事例が多数みられた.また,富士山自体 も火山であり、近年の平穏な状況からいつ活発な状 態になってもおかしくない. そのため,富士山頂に おいて火山性ガスである SO₂ および H₂S 濃度をリア ルタイムで一年を通してのモニタリングは、防災に 役だてることができる.しかし、大気微量成分の観 測には高価で大型の計測装置が必要であり、消費電 力も大きいため、富士山頂で商用電源が利用できな い期間(夏季以外)での測定は困難である.そこで 本研究では、電力消費の少ない SO₂ および H₂S ガス センサーを用いて富士山頂でのリアルタイム通年観 測(越冬観測)を実現することを目指している.

2. SO₂, H₂S ガスセンサー

越冬用の SO₂, H₂S の小電力測定には, Alphasense 社 のガスセンサー (SO₂-B4, H₂S-B4) を用いた. SO₂セ ンサーの性能評価 のため,実験室内における標準ガ スを用いた SO2 計との比較測定実験では数 ppb まで の低濃度の SO₂の検出が可能であった.しかし,実 際の大気の観測においては温度などの影響を受けて SO₂ センサーの出力値が数十 ppb の変動をしてしま った.実際の大気で火山性ガスを検出できるか確認 するため, 箱根大涌谷において大気観測テストをお こなった. 乾電池で SO2 センサーやデータロガーを 動作させるようにした.大涌谷の火山性ガスの影響 を受ける地点では 1000ppb ほどのシグナルが観測さ れた、低濃度領域でのわずかな変動は捉えられない が,実大気でもこのセンサーにより近傍から発生す る高濃度の火山性ガスを捉えられることが確認でき, 富士山頂において火山ガスの影響をとらえる用途に は使用できることが分かった.

3. 富士山頂での観測システムの設置

防災の用途には、ガスセンサーによる観測値をリア ルタイムで把握できる必要がある.そのため、無線 データ転送機器(ELTRES、ソニーセミコンダクタソ リューションズ)を使用した観測システムを構築し た(図1).ELTRES は LPWA 通信規格を利用するため、 とても省電力でかつ長距離通信が可能である.この システムにより、2019年8月からリアルタイム火山 性ガスの越冬観測に成功した(図2).ガスセンサー シグナルは温度変化等の影響を受け、20ppb前後の 変動を伴っていた.2020年7月に、センサーは明ら かなノイズが出るようになった.水分等が、電極内に 入りこみ故障したことが考えられる.データ転送機 器(ELTRES)に関しては、現在(2020年9月)も正 常に動作しており、1年以上無人の観測地点におけ るデータを転送しつづけることができた.

例年であれば7月の山開きのタイミングでバッテリ ーとセンサーを新しいものに交換できるので,通年 で富士山頂の火山性ガスを無人観測できるはずであ る.今後は登山者がとても多くなる夏季において,簡 便なシステムにより山頂以外の多地点における火山 ガスモニタリング観測を目指し,防災に生かせるよ うにする.



飛騨高山冷温帯落葉広葉樹林サイトにおける大気中 メタン濃度の連続観測

*村山昌平¹,石戸谷重之¹,堀知行¹、吉竹晋平²、前田高尚¹ 1 産業技術総合研究所,2 早稲田大学

1. はじめに

メタン(CH4)は二酸化炭素(CO2)に次ぐ地球温暖化 に寄与する温室効果気体であるが、CH4 収支の変動 要因には不明な点が多い。湿地を除く森林生態系は、 土壌微生物の酸化作用による CH4の吸収源と考えら れているが、樹木からの CH4の放出の可能性も示唆 されており、同生態系における CH4 収支変動の実態 やその要因について十分に理解されていない。

岐阜県高山市の冷温帯落葉広葉樹林サイト(TKY: 36°08'N, 137°25'E, 1420 m)では、1993 年から大気-森林生態系間の CO₂フラックスおよび林内外の大気 中 CO₂濃度、気象要素等の連続観測が行われ、長期 観測データを基にその変動要因の解析が進められて きた。また、フラスコサンプリング法による大気中、 土壌中および土壌チャンバー空気中の CO₂、CH4 濃 度等の観測、および大気中ラドン(Rn)濃度の連続観 測等を実施してきている。さらに、近年は遺伝子解 析等に基づく、TKY における土壌微生物活動の温室 効果気体収支への寄与についても解析を開始した。

本発表では、当サイトにおける CH₄ 収支の変動要 因を明らかにするために 2020 年 7 月より開始した 大気中 CH₄濃度の連続観測の概要とその初期解析結 果について報告する。

2. 観測方法

TKY サイトは、樹齢 60 年以上、樹高 15~20 m の ダケカンバやシラカンバ、ミズナラ等から成る冷温 帯落葉広葉樹林であり、例年5月に展葉、10月に落 葉する。CH4濃度の測定は、レーザー分光法(Off-Axis Integrated Cavity Output Spectroscopy)を採用した分析 計(LGR 社製 Ultra Portable GGA) を用いて行った。 当分析計を CO2濃度連続観測システムの後段に接続 し、CO2 濃度分析計の出口から排出された試料ガス の一部を流量およびセル内圧力を制御して導入した。 また、出力のドリフトを抑えるために分析計を温度 調整されたボックス内に入れた。 高さ 27m の観測塔 を用いて、林内外の6高度から大気を約4分ごとに 順次切替えて吸引して分析計に導入し、また3時間 毎に3種類の濃度が異なる空気ベース CO₂/CH₄標準 ガスを順次導入し、分析計の校正を行った。標準ガ スを用いた繰り返し測定から見積もられた総合的な 測定精度は約 0.8ppb であった。また、測定結果はフ ラスコサンプリング法により測定された CH4 濃度と 概ね一致することが確認された。

3. 結果と考察

観測結果の一例として、2020年7月中旬の林上(地上27 m)および林内(地上1.3 m)における大気中 CH4

濃度の変動を図1に示す。明瞭な日内変動は見られ ず、数日程度の周期で濃度の増加・減少が見られる。 CO₂については、この時期、活発な光合成・呼吸活 動を反映して明瞭な日内変動を示し、地表付近では 土壌呼吸の影響を受けて高濃度になる傾向を示すが、 CH4 濃度の変動パターンはそれと大きく異なった。 また、27mと1.3mとを比較するとCH₄濃度の変動 パターンはよく似ているが、濃度は期間を通して、 1.3 m の方が低くなっている。2020年7月上旬~9月 中旬の 27 m の濃度に対する平均的な濃度差の鉛直 分布を調べたところ、地表付近で濃度が低くなる傾 向が見られ、地上 1.3 m では平均約 7 ppb 低くなっ ていた。これまでの土壌チャンバーを用いた土壌-大気間のフラックス観測や土壌中空気のCH4濃度分 布観測から、TKYの浅層土壌はCH4の吸収源となっ ていることが明らかになっており、今回の結果はそ れらと矛盾しない。一方、上述の数日スケールの変 動については、大気中 Rn 濃度の変動と概ね正の相 関が見られ、また後方流跡線解析の結果、高濃度が 観測された時期は大陸起源の気塊が、低濃度が観測 された時期は太平洋上起源の気塊がそれぞれ運ばれ てきていることが示唆された。Rn は土壌起源のトレ ーサーであり、また大陸の湿地や人為起源の CH₄放 出の影響を受けたため、前者の時期に高濃度になっ たと推察された。今後さらにデータを蓄積し、CH4濃 度の時間変動や鉛直分布変動と気象、土壌環境等と の関係を調べ、森林生態系における CH4 収支の変動 要因を明らかにしていきたい。



図 1.2020 年 7 月 11 日~20 日に TKY で観測された 大気中 CH4 濃度の変動。

謝辞:本研究の実施に当たっては、日本アンス(株)、岐 阜大学および産総研のスタッフに大変お世話になった。 後方流跡線解析には NOAA HYSPLIT を用いた。本研究 は、JSPS 科研費(JP18H03365)等により実施された。

東京スカイツリーにおける酸素観測に基づく 化石燃料起源 CO2の推定法の検討

*遠嶋康徳¹,寺尾有希夫¹,丹羽洋介¹,白井知子¹,曾継業¹ 1国立環境研究所

1. はじめに

大気中二酸化炭素 (CO₂) の濃度変化に対する化石 燃料起源 CO₂ (FFCO₂) の寄与率評価方法として、 放射性炭素同位体 ¹⁴C の測定に基づくもの (¹⁴C 法) が最も信頼性の高い手法とされている。一方、Pickers (2016)は大気中の CO₂ に加えて酸素 (O₂) 濃度を測 定し、O₂ と CO₂ の和として定義される大気ポテンシ ャル酸素 (APO=O₂+ α_b ×CO₂) の変化から FFCO₂を推 定する方法 (APO 法) を提案した。APO 法は ¹⁴C 法 よりも低コスト・高頻度で FFCO₂を推定できるため、 ¹⁴C 法を補完する手法として注目されている。

環境研は東京スカイツリー (TST)の高度 250mの フロアに観測用ブースを作り、壁の外から大気を引 き込んで、CO2および O2濃度の連続観測を継続して いる。本発表では TST の観測に基づく APO 法によ る FFCO2をモデル解析結果と比較し、その手法を検 証する。

2. O₂ 観測に基づく FFCO₂ 評価法

APO 法では、**APO** の時系列変化に対してあるベー スラインからの変化量 (Δ**APO**) を用いて化石燃料起 源成分 (Δ**FFCO**₂) を次式から求める:

 $\Delta FFCO_2 = \Delta APO / (\alpha_b - \alpha_f) \quad (1)$

ここで、 α_b 、 α_f はそれぞれ生物圏および化石燃料燃焼の際の-O₂/CO₂交換比(モル比)を表す。 α_f にはある時刻に観測されるエアマスのフットプリント内の平均値を用いる必要があるが、厳密な α_f を求めるには、詳細な種類別化石燃料排出量分布と高分解能のフットプリントが必要となるため、ここでは東京の平均的な α_f (α_f =1.60)を用いた。なお、 α_f 推定には資源エネルギー庁がまとめた都道府県・エネルギー種別エネルギー消費統計を用いた。また、 α_b の値としては 1.05 を用いた。

3. FFCO₂寄与率の推定結果

 O_2 及び CO_2 の観測に基づく APO の1時間平均値 を用い、ベースラインからの偏差 (Δ APO)を求め、 式 (1) から Δ FFCO₂を推定した。さらに、 CO_2 につ いてもベースラインからの偏差 (Δ CO₂)を求め、そ の 偏 差 に 占 め る Δ FFCO₂ の 寄 与 率 Xf (= Δ FFCO₂/ Δ CO₂))を計算し、月平均値を求めた。 なお、Xf の月平均値を計算する際、 Δ CO₂ が 20ppm 以下のものは値が大きくばらつくため計算から除外 した。また、ベースラインとしては波照間 (24°N、 124°E) でのフラスコ分析の結果を平滑化して得ら れたベストフィットカーブを用いた。 2017 年 2 月から 2020 年 2 月までの 3 年間の観測 結果から求められた X_fの月平均値を図 1 に示す (赤 線)。X_fは冬に最大となり秋に向かって減少し、その 後再び増加する季節変動を示した。

4. 考察

APO 法による X_f の季節性を考察するために、ラ グランジュ型粒子拡散モデル (LPDM) を用いて計算 されるフットプリントと各種フラックスから APO を計算し、求められる APO から式 (1) を用いて同 様に X_f を計算した (図 1 の青線)。また、LPDM を 用いて計算される CO₂および FFCO₂ から直接 X_f を 求めた (図 1 の橙線)。なお、LPDM は、気象データ 0.5°×0.5、粒子数 10000 個で計算し、TST での観測結 果を再現するには粗いが、ここでは各種フラックス の影響の有無を調べる目的で限定的に用いた。

計算された CO2に基づく Xf は冬に最小、夏に最大 となる季節変動を示すが、これは夏に生物圏が CO2 を正味で吸収するためである。一方、計算された APO 法による X_f は冬から初春に最大となり、春か ら秋にかけて減少し、再び増加する季節変化を示し、 CO2の計算結果に基づくXfと著しく異なる変動とな った。また、APO の観測結果と比較すると、特に冬 から夏にかけての変動は比較的よく一致するが、増 加に転じるタイミングの違いにより秋の値には大き な解離が見られた。各種フラックスの影響を調べる と、こうした APO 法による X_fの季節性には陸上か らのフラックスだけでなく、海洋からの O₂フラック スも影響することが分かった。式(1)では海洋 O2 フラックスを無視した近似式となっているが、場合 によってはこの近似を見直す必要があることを示唆 する結果となった。



図 1, TST での APO および ¹⁴CO₂ 観測値および LPDM の計算結果に基づく X_fの月別変化。

陸・海 CO₂フラックスの長期変動推定に向けた 逆解析実験

*丹羽洋介¹, 伊藤昭彦¹, 飯田洋介² 1国立環境研究所, 2気象庁

1. はじめに

陸域生態系および海洋は地球表層における主要な 炭素リザバーであり、大気とは二酸化炭素(CO₂)と して炭素が交換されており、人間活動によって増加 している大気 CO₂を正味で吸収している。これら炭 素リザバーの吸収能力は、地球温暖化によって変化 が生じることが指摘されているが、現状の吸収量の 正確な量、分布の見積もりには不確定性が存在し、 気候一炭素循環フィードバックについても解明すべ き点は多い。信頼度の高い温暖化予測、また CO₂ 排 出のより正確な削減目標の策定のためにも、CO₂ フ ラックスの現状の量・分布や過去から現在に至るま での変動を正確に把握する必要がある。

大気輸送モデルを用いて大気の CO2 濃度観測値か ら CO2 フラックス推定を行う逆解析は上記目的を達 成する有力な手法であるが、観測データの不足・不 均一性に由来する誤差などが推定値に入りこむこと がままある。本研究では、そのような誤差がどの程 度、長期解析において影響を与えうるか(経年変動 やトレンドなどに対して)、評価を行う。またあわせ て、10 年以上の長期逆解析に向けて、どのような設 定(誤差共分散行列、フラックス推定値の時間解像 度など)が最適かを調べた。

2. N I S M O N-CO₂

本研究では、大気モデル NICAM (Satoh et al., 2014) をベースとした CO₂ 逆解析システム N I S M O N-CO₂ (NICAM-based Inverse Simulation for Monitoring CO₂: Niwa et al., 2017a,b)を用いて実験を行った。 NISMON-CO₂ では大気輸送モデルのフォワード計 算およびアジョイント計算を交互に行い反復しなが らフラックスの解析値を収束させる変分法を用いて 最適化を行う。ここでのモデルの水平解像度は glevel-5 (格子間隔約 223km) とした。

3. 擬似観測データ実験

解析期間を10年間として計算を行った。観測デ ータとして、実際の観測点や頻度に則して予めモデ ル計算で作成した擬似観測データ(図1)を NISMON-CO2に入力した。ここで、この擬似観測デ ータを作成したモデル計算は解像度をあげた glevel-6(格子間隔約112km)で行い、モデル誤差も考慮し た設定で解析を行った。陸域フラックスの初期値に は VISIT (Ito and Inatomi, 2012)からのデータを用い、 真値には実際の年々変動に即したフラックスを作成 して用いた。一方、海洋フラックスは初期値に年々 変動を固定したものを用い、真値に年々変動をもつ 気象庁の CO₂フラックスデータ(Iida et al., 2015)を 用いた。



図1 実験に用いた観測データの分布。●が1時間 毎の in-situ データ、他のマークはフラスコサンプ リング観測を示す

図2に逆解析で得られた全球陸域の経年変動および 季節変動を示す。この図から、図1のように観測デ ータが不均一に存在していても、全球では正確に最 適化できることが示唆される。一方、陸一海洋間の 割合や北半球や熱帯など領域毎に見ると、真値とは 異なる変動が導出されてしまうこともわかった。



図2 全球陸域フラックスの年変動(左)と季節変動(10年平均。右)。黒実線が真値、灰色の実線が 逆解析による推定値を示す。点線は逆解析で用いた 初期推定値を示す。

謝辞:

本研究では(独)環境再生保全機構の環境研究総合 推進費(JPMEERF20172001)において開発した解 析システムを用いました。また、本研究の解析は JSPS 科研費 JP19K03976の助成を受けて実施しま した。本研究におけるモデル計算は国立環境研究所 および気象研究所のスーパコンピュータシステム

(SX-Aurora, FUJITSU Server PRIMERGY CX2550M5)を用いて行いました。

中部山岳域におけるカラマツ人工林の炭素収支の気候変動 応答と森林管理の効果に関するモデル解析

*栗林正俊¹,伊藤昭彦²

1長野県環境保全研究所,2国立環境研究所

1. はじめに

近年、猛暑・豪雨・暖冬などの異常気象が頻発し、 気候変動対策への社会的関心が高まっている。長野 県は、我が国が2018年に施行した気候変動適応法を 受けて、2019年に信州気候変動適応センターを設置 するとともに、気候非常事態を宣言した。2020年に は長野県気候危機突破方針を策定し、2050年のCO2 排出量実質ゼロを実現するための指針を示した。

森林吸収源対策は、CO₂ 排出量実質ゼロを目指す 上で有効な対策の1つである。全国3位の森林面積 を有する長野県は、人工林の半分以上をカラマツが 占めており、将来の高温・高CO₂濃度下におけるカ ラマツ林の炭素収支を予測し、森林管理が炭素収支 にもたらす効果を評価することは重要な課題である。 そこで、本研究では2050年のカラマツ人工林の炭素 収支を予測するとともに、皆伐・植林が2050年頃の 炭素収支にもたらす効果を定量的に評価する。

2. 方法

長野県環境保全研究所(飯綱庁舎;標高1030m)の カラマツ林に気象観測機器とタイムラプスカメラを 設置し、樹冠画像を解析することで展葉・落葉のタ イミングと積算気温の関係を評価する。評価した関 係式を陸域生態系モデル VISIT(Ito, 2010)に組み込み、 現在気候下におけるカラマツ林の炭素収支を再現計 算して、国環研の富士北麓フラックス観測サイトの 観測値と比較することにより、モデルの再現性を検 証する。次に、産業革命前+2℃上昇時を対象に非静 力学地域気候モデル(NHRCM)で計算された1km格 子の気候予測値と RCP8.5 シナリオの大気 CO2 濃度 をVISITに入力し、2050年頃の炭素収支を予測する。 炭素収支の将来変化に占める気候変動と CO2 施肥の 効果を切り分けるため、CO2 濃度を 2010 年の値(389 ppm)に固定して気候を産業革命前+2℃上昇時にし た計算、および大気 CO2濃度を 2050 年の値(541 ppm) まで漸増させて気候を過去にした計算を実施する。 それぞれ予測計算との差をとり、気候変動と CO2施 肥の各効果を評価する。また、2020,2025,2030,2035, 2040, 2045 年のいずれかのタイミングで皆伐・植林 を実施した場合の2050年頃の炭素収支を計算し、予 測計算と比較することで、2050年頃のカラマツ林の 炭素収支に対する皆伐・植林の効果を定量的に評価 するとともに、森林施業に最適な時期を検討する。

3. 結果と考察

観測に基づき積算気温と展葉・落葉時期の関係を 評価した結果、(日平均気温-2)の積算値が 200℃で 展葉開始、440℃で展葉完了、(日平均気温-18)の積



図1 生態系純生産量(NEP)の将来変化(2050 年頃-2010 年頃)に占める気候変動と CO₂施肥の効果

算値が-220℃で落葉開始、-400℃で落葉完了、と なった。この関係式を VISIT に組み込み、富士北麓 のカラマツ林を対象に再現計算した結果、計算値は フラックス観測値とよく整合した。

VISIT で計算された 2050 年頃の生態系純生産量 (NEP)は 2010 年頃に比べて 5.5%増加し、特に展葉季 と落葉季の増加が顕著であった(図 1)。これは気温の 上昇により着葉期間が延びるためと考えられるが、 気温の上昇は生態系呼吸量(RE)を増加させるため、 盛夏期の NEP に対する気候変動の効果は負の値と なった。盛夏期は比較的 CO₂ 施肥の効果が大きく、 NEP の将来変化には CO₂ 施肥が 4.1%、気候変動が 1.4%寄与していた。VISIT の皆伐・植林の感度解析 の結果、2020 年以降に施業すると 2050 年頃の NEP を 1.6~2.0 倍に増やすことができ、2035~2040 年の 施業が最も効果的であることが示唆された(表 1)。

4. 謝辞

本研究は、(独)環境再生保全機構の環境研究総合 推進費(JPMEERF20182R03)により実施した。

表1 2050 年頃の総光合成生産量(GPP)、生態系 呼吸量(RE)、生態系純生産量(NEP)に対する 皆伐・植林のモデル感度

皆伐・植林	GPP	RE	NEP
の施業時期	$(Mg C ha^{-1} y^{-1})$		
なし	19.70	15.70	3.99
2020年	19.16	12.90	6.27
2025年	19.08	12.38	6.69
2030年	18.59	11.40	7.19
2035年	18.07	10.42	7.65
2040年	16.56	8.69	7.87
2045年	13.88	6.71	7.18