

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第45号



Japan Society of Atmospheric Chemistry

目次

巻頭言 新会長より	Article No.
2021年の大気化学研究:新たな飛躍へ向けて金谷 有	岡J 045N01
退任挨拶	
「日本大気化学会スピリット」のバトンを繋ぐ谷本 浩	志 045N02
総説	
―トピックス:「都市大気と大気化学」―	
大都市における温室効果ガスと関連物質の大気観測寺尾 有希夫,石戸谷 重	之 045A01
都市大気における OH ラジカル反応性研究	
	純 045A02
東京都心における大気エアロゾル粒子の変動	彦 045A03
都市大気の数値モデルシミュレーション ~相互比較研究とモデリング研究の展開~	
山地 一代, 茶谷 聡, 板橋 秀一, 嶋寺	光 045A04

会員からのお知らせ

大気境境モアリンク」刊行について	津志	045N03
------------------	----	--------

学会からのお知らせ	
第26回大気化学討論会のお知らせ	
竹谷 文一, 岩本 洋子, 内田 里沙, 石戸谷 重之, 坂本 陽介	045N04
2021 年度日本大気化学会奨励賞の候補者募集日本大気化学会 運営委員会	045N05
第 25 回大気化学討論会報告	045N06
JpGU 2021 「大気化学」セッション開催報告	
	045N07
日本大気化学会会員集会プログラム日本大気化学会 運営委員会	045N08
第12期日本大気化学会役員選挙の結果について日本大気化学会 運営委員会	045N09
第 19·20 回日本大気化学会運営委員会議事録日本大気化学会 運営委員会	045N10

記事のご投稿について

論文や記事のご投稿をご検討されている方は,事前に本誌編集委員または日本大気化学会運営委員まで ご相談下さい。

大気化学研究編集委員(第12期,2021年7月1日から): 山地一代(共同編集長),宮﨑雄三(共同編集長),八代尚,大畑祥

日本大気化学会運営委員(第12期,2021年7月1日から):

金谷有剛(海洋研究開発機構),石戸谷重之(産業技術総合研究所),入江仁士(千葉大学),岩本洋子 (広島大学),内田里沙(日本自動車研究所),加藤俊吾(東京都立大学),齋藤尚子(千葉大学),坂本 陽介(京都大学),関山剛(気象研究所),竹川暢之(東京都立大学),竹谷文一(海洋研究開発機構), 宮崎雄三(北海道大学),山地一代(神戸大学)

2021年の大気化学研究: 新たな飛躍へ向けて

金谷有剛1*

日本大気化学会第12期がスタートしました。今期, 2023年6月までの2年間,会長を務めることとなりまし た金谷です。皆様どうぞよろしくお願いいたします。 1999年1月に本会の前身である「大気化学研究会」 が発足したのは私がまだD2学生のころでした。その 後,「日本大気化学会」への学会化(2014年),「日本 学術会議の協力学術団体」登録(2020年)などの大 きなマイルストーンを,一運営委員として経験してま いりました。

本会は,会員数は二百数十名と,一般的にみると 小規模な学会ですが、むしろその特徴を活かし、機 動性やアットホームな雰囲気を大事にしつつ、学術 研究集会を継続的に開催し,知的交流活動を続けて きました。1995年に始まる大気化学討論会や、大気 化学シンポジウムの発展形として2007年からスタート したJpGU大会での大気化学セッションでは、こうした 草創期から続くディスカッション重視の文化も感じら れるかと思います。また、国際的に関連深いiCACGP (大気化学と地球汚染に関する委員会; ISC/IUGG/IAMAS傘下)およびIGAC(地球大気化 学国際協同研究計画;フューチャーアース傘下)合 同での「地球大気化学国際会議2018」が、国内外か ら高松市に700名超を迎えて開催され成功を収めた ことは、その後の日本の大気化学研究コミュニティの 大きな推進力となっています。谷本浩志・前会長をは じめ、リードしてこられた諸先生先輩方や同志の皆様 に改めて敬意を表しますとともに,このような特性をも つ本会の今後の牽引役を託されたことには,身の引 き締まる思いです。



改めて「大気化学」とはどんな学問でしょうか。私の 目に映る大気化学は、「地球大気の化学組成に関す る物質循環像・収支像をとらえ、化学反応や物理現 象などの普遍的原理を根底から明らかにし、社会に 広く貢献する学問分野」です。ノーベル化学賞を受 賞した、「フロンガスによる成層圏オゾン層破壊メカニ ズムの科学的解明」が象徴的です。つまり、大気物理 学や放射とともにある大気化学過程や関連する摂理 を深く追究し明らかにすること、先端的な観測・数値 モデリング、およびそれらの統合からシステムを学ぶ こと、また、社会的課題とも呼ぶべき環境問題を解決 する鍵となる知見や知識を生み出すことを目指す学 問であると考えます。

21世紀に入り,研究対象は,局所から半球規模ま での大気汚染や,気候変動を引き起こす温室効果ガス(GHGs)・短寿命気候強制力因子(SLCFs)にも広がり,それらの捉え方も変化してきました。しかしながら,こうした研究の軸足は変わっていないはずです。

ごく最近では、世界的なコロナウィルス蔓延・経済 活動低下に伴う、二酸化窒素(NO₂)の大気汚染の低 下度が人工衛星観測から即時評価され、ニュースや 社会動向分析でも取り上げられました。その水面下 には、当該分野の30年にわたる衛星センサやアルゴ リズム開発、検証観測、成層圏・対流圏のモデリング に関する基礎研究の歴史と蓄積があります。また、 2050年脱炭素社会への変容が求められるなか、温暖 化物質の合理的な排出削減と管理、その精確な評 価がますます必要となってきました。私たちが取り組 むGHGsやSLCFsの観測や、数理モデルによる排出 量や収支の評価は、温暖化を和らげる道筋を確かな ものにするエビデンスとなります。このように、物質科 学を扱う当分野では、求められる応用範囲が拡大し、 新たな使命も生まれていると感じます。

以上のような研究の軸足と新たな課題を意識しつつ,第12期では具体的に次の2点に取り組みたいと考えています。

1点目は、「大気化学の将来構想2022-2032」をまと め公表する点です。大気化学研究コミュニティでは、 2009年に「今後の日本の大気化学研究: IGAC小委 員会の提言」を取りまとめて以来の活動となります。 上記のような社会貢献面を見据えつつも,そこに至る ための基礎科学面を強調する方針です。具体的に は、「究極のゴールは何か、現在の到達度とギャップ はどう評価されるか、そのギャップを埋めるためのビ ジョンは」を自ら問い、科学的な洞察を盛り込む所存 です。生物圏・海洋・陸面と大気圏との間の物質交換 を含む、自然システムの理解向上も鍵の一つであり、 隣接分野と連携する将来も見据えます。これらのサ ブシステムを包含する「地球表層システム科学」の俯 瞰的な視点や、純粋な好奇心·多様な価値観に基づ く知的創造も取り込みます。すでにコアとなるテーマ の議論に参加いただいている方も多くいらっしゃいま すが,今年の秋の大気化学討論会での議論や専門 的なレビュー,パブリックコメントなどを通じて,より多 くの学会員の皆様のお知恵をいただき、よいものに 仕上げていきたいと考えております。

2点目は、日本の研究者や研究活動に対する国際 的なビジビリティの向上です。前述の高松での国際 会議では、改めて日本の研究コミュニティが国際的 によく見えるようになりました。この流れを一歩進め、 IGACでの公式アクティビティなどにおいても、日本の 研究者の質の高い活動がよりよく見えるように、IGAC 国際科学委員メンバーとしても取り組んでゆきます。 加えて、IPCC(国連気候変動に関する政府間パネル) の第6次評価報告書作りに関わってきたなかで、もう 少し別の角度から、国際社会で日本が果たすべき役 割について考える機会もありましたので,活動の中で 活かしてゆきたいと考えています。

上記のような方向性を実現しつつ、本会の発展を 目指して会員の皆さんと力を合わせ歩んでいけたら 幸いです。人材育成や男女共同参画などの課題に も継続的に取り組む中で、むしろ皆さんがお気づき になる課題もあろうと思います。その際には遠慮なく、 私や各運営委員にお申し付けください。オープンで 柔軟な運営に努めます。本会は全員が主役です。コ ロナ禍で直接お会いできない期間がまだ続きますが、 その中でも創意工夫し研究開発を磨いてゆきましょう。 どうぞよろしくお願いいたします。

著者所属:

1. 海洋研究開発機構・地球表層システム研究センタ

* 責任著者

Yugo Kanaya <yugo@jamstec.go.jp>

Article No. 045N02

「日本大気化学会スピリット」のバトンを繋ぐ

谷本浩志1*

この 6 月末をもちまして第 10 期から四年間にわた り務めてまいりました会長を退任するにあたり, 会員 の皆様ならびに本誌をお読みの皆様にこの場を借り てご挨拶申し上げます。 期を同じくして, 2012 年から 務めておりました IGAC (International Global Atmospheric Chemistry project, 地球大気化学国際 協同研究計画)の SSC メンバーならびに Co-Chair, 日本学術会議の IGAC 小委員会の委員長も退任い たしました。併せてお礼申し上げます。

まず何より、この四年間、会員の皆様には、会の運 営に多大なご理解、ご協力、ご支援を頂いたこと を厚くお礼申し上げます。若手会員の方、女性会 員の方、外国人会員の方、学生会員の方もご意見 をお寄せ頂くとともに積極的に活動頂きました。

四年前, 就任にあたってのご挨拶で, 「今や大気 化学は学問として成熟期にあること」, 「現在, 私 たち研究者は激動の時代にあり, その方向や振れ 幅は今後ますます大きくなること」, 「こうした激動の 時代に, いかに日本の科学を次の発展に向けて成 長させていくか, いかに次世代を担う人材を育てるか, 次の成長・さらなる発展に向けて知恵を巡らせる必要 があること」といった私見を述べました。

そのために心がけてきたことはいくつかあり ます。実務的には、会の安定運営のため、第9期 から始めた事務局委託・幹事会の体制を確立するこ とがありましたが、何より、国際的な日本の大気化学 コミュニティや個々の研究者の「見える化」、ダイバー シティ・アーリーキャリア面の取り組み、それらの基礎 となるフランクでオープンな雰囲気の運営です。2018 年の iCACGP-IGAC2018 国際会議主催を経て、現 在 IGAC の「Activity」ではいわゆる Steering Committee に名前が載る会員も増えてきました。



iCACGP には Ex-Officio も含めて 4 人の会員がメン バーに選ばれました。このように、目に見える成果とし て実を結んだように感じる一方、今後さらに改良の余 地が見えてきたり、新たな課題も出てきました。

振り返ると、多くの会員の方が会の運営と活動に関 与して下さったように思います。一人一人が「個を活 かした」リーダーシップを発揮して下さいました。これ も皆さんの「大気化学愛」の現れだと思っています。 1995年に日本で大気化学研究を立ち上げた先生方、 そしてそれに続いた先輩方に続いて、日本の大気化 学コミュニティの26年に及ぶ歴史のさらなる発展と進 化に一歩貢献することができたとしたら、それは会員 一丸となって取り組めた証だと思います。

さて、学会の存在意義は、会に参加することに より、個々の会員が良い研究をできること、会員 が良い研究者生活・人生を送れること、そして 個々の集まりが人数以上の総体として相乗効果 が得られ、それが個人にもフィードバックされる ことだと思っています。今後も全員で日本の大気 化学者の「ホーム」である本会を良くしていきましょう。

最後に,至らぬ会長を縁の下で支えて下さった副 会長,庶務担当幹事,会計・会員担当幹事,そし て運営委員にお礼申し上げるとともに,会員の皆様 には,新しい運営委員会にこれまでと変わらぬご 理解・ご協力・ご支援をお願い申し上げます。

著者所属:

- 1. 国立環境研究所
- * 責任著者:

Hiroshi Tanimoto <tanimoto@nies.go.jp>

大都市における温室効果ガスと関連物質の大気観測

Atmospheric observations for greenhouse gases and related constituents in the urban areas

寺尾有希夫1*,石戸谷重之2*

近年,温室効果ガスを多く排出する都市域を対象とした,温室効果ガスと関連物質の大気観測が盛 んに行われている。本稿では,筆者らのグループが推進している,東京大都市圏を対象とした大気観 測のデザインと, CO₂ と関連物質(酸素濃度,¹⁴CO₂, CO 濃度)の観測結果の例を紹介する。これら大 気モニタリングは,パリ協定のグローバルストックテイクへの貢献やゼロエミッション社会実現への排出 量削減過程の検証に有効であると期待される。

1. はじめに

気候変動枠組条約第 21 回締約国会議(2015 年 12 月)でパリ協定が採択され,世界各国が温室効果 ガス削減に取り組むことが義務となった。パリ協定で は,各国が 5 年おきに排出削減目標(自国で決定し た貢献 nationally determined contribution, NDC)を 提出することに加え,削減目標の達成に向けた世界 全体の進捗状況を5年ごとに確認し,NDCを強化す るための情報提供を行う「グローバルストックテイク」 の仕組みが設けられた。気候変動に関する政府間パ ネル(IPCC)の第 5 次評価報告書[2013]と 1.5 度特 別報告書[2018]によって,気候変動を止めるには今 世紀中頃までに温室効果ガス排出を実質ゼロにする ゼロエミッション(以下,ゼロエミ)しか手段がないこと が示されて以降,ゼロエミが世界各国の政策目標と なっている。

我が国も、2020年10月に首相が「2050年に実質 排出ゼロのカーボンニュートラルの実現を目指す」こ とを宣言し、2021年4月に行われた気候変動サミット において「2030年に2013年度比で46%減」とする温 室効果ガス排出削減目標を打ち出した。ゼロエミ社 会の実現に向けた研究開発拠点として、2020年1月 に産総研に設立されたゼロエミッション国際共同研究 センター(Global Zero Emission Research Center, GZR) は、同月に策定された「革新的環境イノベーション戦略」の中で、日本と世界の二酸化炭素(CO₂)排出削減を目指しG20の研究者12万人をつなぐプラットフォームとして位置付けられている。GZRでは水素、カーボンリサイクル、エネルギーデバイス等の分野において欧米等の研究機関との国際共同研究を進めている。

科学が国際政策に直接的に貢献するグローバル ストックテイクは、科学界にとって挑戦的な課題である が、大気化学コミュニティはそのキープレイヤーとなり うる。各国の排出量は、人為起源温室効果ガス排出 量インベントリデータの積み上げによるものであるが、 インベントリデータには不確かさが多く残る地域や分 野がある。IPCC 温室効果ガス排出・吸収量算定ガイ ドライン[2006]の改良報告書である 2019 年方法論報 告書では、インベントリデータの検証とグローバルスト ックテイクへの貢献には、温室効果ガスの衛星観測 や地上観測による監視・検証が有効となる可能性が 示された。また、温室効果ガス等の大気観測データ は、それだけでも、ゼロエミ社会に向けた排出量削減 過程の「見える化」につながる。

化石燃料起源 CO₂の 70%以上は都市活動から排 出されている[*Duren and Miller*, 2012]。そのため,近 年,都市の CO₂に着目した観測研究が世界で展開さ れている。様々な CO₂ 排出源がモザイク状に分布し ている大都市圏の排出量監視には,衛星観測デー タに加えて,地上観測や航空機観測等の高精度現 場観測が重要である。また,主に化石燃料燃焼に起 因する人為起源の CO₂ と,生態系が吸収・排出する CO₂(植物の光合成・呼吸に加えて人間呼吸も含む) を分離評価することが必要となる。

都市における温室効果ガス観測で最長レコードを 持つのがソルトレイクシティである[Lin et al., 2018]。イ ンディアナポリスでは大規模な大気観測研究プロジ ェクト Indianapolis Flux Experiment (INFLUX) が行 われ, CO2濃度と関連物質の大気観測から CO2排出 量を求める先駆となった[Turnbull et al., 2015, Miles et al., 2021]。これらの他,パリ[Bréon et al., 2015, Staufer et al., 2016],ロンドン[Boon et al., 2016],ロサ ンジェルス[Verhulst et al., 2017],ボストン[Sargent et al., 2018],ワシントン DC/ボルチモア[Mueller et al., 2018],ダボス[Lauvaux et al., 2013]など,世界の都市 で大気観測が進められ,都市スケールの排出インベ ントリマップ開発とインバースモデルを用いた排出量 推定も行われている。また,筆者らのグループは,イ ンドネシアのジャカルタ大都市圏を対象にした大気 観測を開始した[Nishihashi et al., 2019]。世界最大規 模の東京大都市圏においては、これまで、東京都環 境科学研究所(都庁屋上)や埼玉県環境科学国際セ ンター(加須)などによる CO₂ 濃度観測がある。本稿 では、筆者らのグループが推進している、東京大都 市圏を対象とした温室効果ガスと関連物質の大気観 測を紹介する。

2. 東京における温室効果ガスと関連物質の 大気観測の概要

我々は、東京スカイツリー(TST)と東海大学代々 木キャンパス(YYG)などで温室効果ガスと関連物質 の大気観測を実施している。その概念図を図 1 に、 観測項目、分析機器、観測期間等を表 1 にまとめた。 観測デザインとして、CO₂ と CH₄ 濃度観測に加え、 CO₂ 中の放射性炭素同位体(¹⁴CO₂)、大気中酸素濃 度、ならびに一酸化炭素(CO)等を観測することによ り、人為起源 CO₂ を自然起源から分離して評価する ことを目指している。また、東京大都市圏の温室効果 ガスの水平分布をとらえるために、TST と YYG 以外 でも、防衛大学校(横須賀)とつくばで CO₂、CH₄、CO



図1 東京における温室効果ガスと関連物質観測の概念図。

サイト	観測項目	分析機器	観測期間	主担当*
TST	CO ₂	Li-Cor LI-840A	2016.3~2017.1	NIES
	CO ₂ , CH ₄ , CO	Picarro G2401	2017.2~	NIES
	O ₂ , CO ₂	Oxzilla II, LI-840A	2017.2~	NIES
	¹⁴ CO2他	フラスコサンプリング	2016.7~	NIES
	Rn	日本アンス製ラドン測定装置	2018.2~	MRI, AIST
YYG	CO ₂ フラックス	Li-Cor LI-7500	2012.11~	NDA
	O ₂ , CO ₂	POM-6E, LI-820	2016.3~	AIST
	エアロゾル組成	Horiba, PX-375	2017.8~	AIST
	CO ₂ , CH ₄ , CO	Picarro G2401	2017.2~	NIES
	¹⁴ CO2他	フラスコサンプリング	2016.11~	NIES

表1 東京スカイツリー(TST)と代々木(YYG)で実施している大気観測項目

* NIES: 国立環境研究所, AIST: 産業技術総合研究所, NDA: 防衛大学校, MRI: 気象庁気象研究所

濃度連続観測を,また東京都立大学(八王子)で CO2 濃度連続観測を実施している。

¹⁴CO₂ と酸素濃度には、それぞれ利点と欠点があ る。¹⁴CO₂ は、炭素の年代に関する情報を含むことか ら、化石燃料起源 CO₂ を直接捉えることのできるトレ ーサで、最も正確に化石燃料起源 CO₂を推定できる 利点がある[例えば Levin et al., 2003]。ただし、化石 燃料の種類の分離はできない。また、¹⁴C は分析コス トが非常に高く、連続観測ができないことが大きな欠 点である。

酸素濃度は、生態系 CO₂ と化石燃料 CO₂ の分離 ができないが、生態系 CO₂ を仮定することで、石油、 都市ガス、石炭を分離可能であることが大きな利点で ある。これは、化石燃料の燃焼の際に CO₂ が排出さ れるのと同時に酸素が消費されるが、その CO₂ と酸 素の交換比率(oxidative ratio, OR)は化石燃料の種 類によってそれぞれ特徴的な値を持つことを利用し ている。また、酸素濃度分析は、標準ガスやキャリブ レーションなど高度な分析技術が必要ではあるもの の、連続観測が可能である利点がある。しかし、海洋 の酸素フラックスの影響が不確実であり、広域の化石 燃料起源 CO₂ 推定にとって問題となっている。 その他, 化石燃料起源 CO₂ のトレーサとして, CO が有効である。¹⁴CO₂の代わりに CO をプロキシとして 化石燃料起源 CO₂ を推定する試みも行われている [*Vogel et al.*, 2010]。また, CO は燃焼過程によって生 成量が異なるため, CO₂ と CO の比をみることで, そ の発生源を推定することが可能である。このように, そ れぞれの特徴をおさえた上で, 各観測の合わせ技で 化石燃料起源 CO₂ 推定の向上を目指している。

3. YYG における CO₂フラックスと酸素濃度観 測

YYG では東京副都心における CO₂ 排出を直接観 測し,衛星観測の検証等に供することを目的として, 2012 年より渦相関法による CO₂フラックス(F_c)観測を 開始し,その後観測項目を順次追加しながら現在に 至っている(図 2)。観測された F_c には午前の通勤時 間帯および帰宅から就寝前の夜間に極大となる日内 変動が見られ,代々木近郊の都市ガス消費量や自 動車交通量のインベントリデータにも同様な日内変 動パターンが確認されている[*Hirano et al.*, 2015]。

YYG での酸素および CO2 濃度観測は, Fc の変動 要因を起源別に定量化することを目的としている。図



図 3 (a) YYG における酸素および CO₂ 濃度と各濃度の高度差(Δ O₂, Δ CO₂), および CO₂ フラックス(F_c)の観測例。酸素濃度 は 2016 年 3 月の観測開始時の値からの偏差であり, Δ は高度 52m での観測値から 37m の値を引いた残差である。(b) (a)に 示した酸素濃度, CO₂ 濃度, Δ O₂ および Δ CO₂ について, 2016 年 12 月の 8 日間の結果を拡大して示した結果。(*Ishidoya et al.* [2020]の Fig. 2 および Fig. 3 より引用)。

3 に, YYG で観測された酸素および CO₂ 濃度と各濃 度の高度差(ΔO₂, ΔCO₂)および F_C の変動の例を示 す[*Ishidoya et al.*, 2020]。

MAMJJASONDJFMAMJJA

2017

2016

-10

ここで F_c と濃度の高度勾配 ($\Delta CO_2 \Delta z^{-1}$, $\Delta O_2 \Delta z^{-1}$) は, 傾度法により乱流拡散係数 (K) を介した比例関 係にある。酸素と CO_2 の K は等しいと考えてよいた め、酸素および CO_2 それぞれの傾度法の式から K を 消去し、濃度の高度差の比 ($\Delta O_2 \Delta CO_2^{-1}$)として観測 が可能である、酸素フラックス (Fo)と Fc の交換比 (OR_F)により両フラックスを関係付けることができる ((1)-(3)式)。

December, 2016

19 20 21 22 23 24

16 17 18

-150

$$F_{O} = -K \frac{\Delta O_{2}}{\Delta z}$$
(1)

$$F_{\rm C} = -K \frac{\Delta CO_2}{\Delta z}$$
(2)

$$OR_{F} = -\frac{F_{O}}{F_{C}} = -\frac{\Delta O_{2}}{\Delta CO_{2}}$$
(3)

都市域における F_c の要素としては,上述の都市ガ ス消費と自動車等による石油消費の他に,石炭消費, 人間呼吸,および陸上植物活動が考えられる。YYG では 2017 年より開始したエアロゾル組成と OR の同 時観測から,石炭消費の影響が稀に見られるものの [Kaneyasu et al., 2020],平均的には十分に小さいと みなしてよい。また,フラックスのフットプリント内にお ける植生の面積は数%と僅かであることから, F_c は主 として都市ガス消費 (F_d),石油消費 (F_L)および人間 呼吸 (F_R)の3要素に起因すると考えられる。 F_R は人 口統計と過去の文献による一人当たりの呼吸量から 推定することが可能であるため,酸素と CO_2 に関する 以下の収支式を F_d と F_L を未知数として解くことが可 能となる。



図4 YYG における CO₂の起源別排出量の日内変動(年平 均)。黒実線は F_cの観測結果であり、フラックスのフットプリ ント内の CO₂排出総量を示す。青および赤の実線は式 3-5 に基づいて F_cを按分した都市ガス消費および石油消費によ る CO₂排出量である。青,赤および緑の破線はインベントリ データに基づく代々木近郊の都市ガス、交通、および人間呼 吸による CO₂排出量を示す。(*Ishidoya et al.* [2020]の Fig. 10 より引用)。

$$F_{O} = -OR_{F} \times F_{C}$$

= -(OR_G × F_G + OR_L × F_L + OR_R × F_R) (4)
$$F_{C} = F_{G} + F_{L} + F_{R}$$
 (5)

ここで、OR_G、OR_Lおよび OR_Rはそれぞれ都市ガス 消費,石油消費および人間呼吸の OR である。図 4 に、(3)-(5)式に基づく F_cの年平均日内変動の起源 別推定結果を示す[*Ishidoya et al.*, 2020]。今回の推 定結果と、代々木近郊の家庭・飲食店の都市ガス消 費と自動車交通量のインベントリデータに基づく CO₂ 排出量との比較から、インベントリデータにおける夜 間のガス消費量の過大評価が示唆される。また誤差 は大きいものの、午前の通勤時間帯の交通量増加に よる石油消費の漸増など、サイト近郊の生活様式と整 合的な日内変動が捉えられている。

以上から、大気観測と人口統計に基づき、都市ガス と自動車由来の CO₂ 排出量を街区スケールで分離 評価することが可能となった。今後は¹⁴CO₂の観測結 果を組み合わせることで化石燃料消費と生物の寄与 を分離し、大気観測のみに基づくF_cの起源別推定を 可能とすることが期待される。また、課題としては酸素 濃度の測定精度の限界から、OR_Fの平均的な日内 変動の導出には 1 ヶ月程度の長期間の観測データ を平均化する必要があり、F_cの時間分解能に対応し たリアルタイムでの分離推定ができないことが挙げら れる。そのため将来的には、渦相関法による F₀の直 接観測を可能とする、高時間分解能・高精度の革新 的な酸素濃度測定法の開発が望まれる。

4. TST と YYG における ¹⁴CO₂と CO₂, CO 濃 度観測結果

東京大都市圏からの CO₂ 排出量をモニタリングす るために, 2016 年 3 月に東京を代表する高所である TST の高度約 250m に大気観測スペースを整備し, CO₂ 濃度の連続観測と炭素同位体比観測のための 大気サンプリングを開始した。2017 年 2 月からは, CO₂, CH₄, CO濃度の連続観測を実施している。YYG では、2016 年 11 月に大気サンプリングを、2017 年 2 月に CO₂、CH₄、CO 濃度の連続観測を開始した。

観測された CO_2 濃度とその $\Delta^{14}C$ 値を用いて, 化石 燃料燃焼起源 CO_2 量を以下で推定することができる。 CO_2 濃度と $\Delta^{14}C$ 値を用いた大気 CO_2 の収支は

$$CO_2^{obs} = CO_2^{bg} + CO_2^{bio} + CO_2^{ff} + CO_2^{ocn}$$
(6)
$$CO_2^{obs} \Lambda^{14} C^{obs} = CO_2^{bg} \Lambda^{14} C^{bg} + CO_2^{bio} \Lambda^{14} C^{bio}$$

+
$$CO_2^{ff}\Delta^{14}C^{ff}$$
 + $CO_2^{ocn}\Delta^{14}C^{ocn}$ (7)

となる。ここで、上付き文字 obs, bg, bio, ff, ocn はそ れぞれ観測した値、大気のバックグランド(ここでは波 照間のデータを用いた)、陸域生物圏、化石燃料燃 焼、海洋を表している。 Δ^{14} C^{ff} は定義から-1000‰で ある。また、 Δ^{14} C^{bio}は大気のバックグランド値に近いと 仮定し(Δ^{14} C^{bio}= Δ^{14} C^{bg})、また近年は海洋と大気の Δ^{14} C の差は無視できるほど小さい(Δ^{14} C^{ocn}= Δ^{14} C^{bg}) ことを考慮すると、バックグランド大気に加わった化石 燃料起源 CO₂ 量(CO₂^{ff})は、

 $CO_2^{ff} = CO_2^{obs} \left(\Delta^{14} C^{bg} - \Delta^{14} C^{obs} \right) / \left(\Delta^{14} C^{bg} + 1000 \right)$ (8)

で求めることができる[Levin et al., 2003]。

12 月から 2 月の冬季で平均した化石燃料起源 CO₂ 濃度の割合 (CO₂^{ff}/(CO₂^{obs}-CO₂^{bg}))は、TST で 71±12%, YYG で 73±8%であり、冬季であっても生物 起源 CO₂ の影響が有意に見られる結果となった。ま た、場所と高度が異なるにもかかわらず、TST と YYG でほぼ同じ結果であった。化石燃料起源 CO₂ 濃度の 割合は、春季から夏季に 100%以上になり、秋季は約 67%になる季節変化を示した。春季から夏季に 100% を超えることがあるのは、陸域生態系により CO₂ が吸 収された結果, CO₂ 濃度が低くなる (CO₂^{obs}-CO₂^{bg} が 非常に小さくなる)ことに起因する。この ¹⁴CO₂ 測定結 果から推定される化石燃料起源 CO₂ 濃度の割合は、 酸素法による結果とは季節変動に違いが見られるこ とが明らかとなっている。この原因の一つは、Δ¹⁴C^{bio} を大気のバックグランド値に近いと仮定したことである 可能性があり, 適切な Δ¹⁴C^{bio} を考慮した解析を行う 必要があると考えられた。

COVID-19 感染拡大に伴う活動自粛によって,大 気中のCO2濃度は変化したのだろうか。図5に、TST で観測された CO₂とCO 濃度の日変動成分の時間変 化を示す。日変動成分は、CO2 または CO 濃度の1 分平均値とそのベースライン濃度(前後 5 日間にお ける各濃度の下位 10%の移動平均で定義)の差から 求めた。第一回の緊急事態宣言期間(2020 年 4-5 月)の CO₂ と CO 濃度の日変動を, 平日と休日に分 けて,2017-2019 年の 4-5 月平均と比較すると, 2020 年 4-5 月は CO2と CO 濃度ともに高濃度デー タが終日明らかに減少したことが観測された。CO2 濃 度は特に、平日の3-7時と17-23時、休日の1-5時 と 16-17 時に大きく減少した。 CO 濃度は休日の 0-12 時に大きな減少が観測された。YYG サイトでは、 これら TST で観測された CO2と CO 濃度とは異なる 変化が観測された。これは、TSTとYYGで大気採取 口の高度が異なり、大気濃度観測のフットプリントに 違いがあることが原因と考えられた。今後、大気輸送 モデルとこれら濃度観測データを用いて、東京大都 市圏の CO2 排出量変動を定量化することが期待され る。

5. 今後の展望

大都市における温室効果ガスと関連物質の大気観 測について、今後取り組むべき課題を以下に挙げる (順不同)。

- 都市域全体からの CO₂ 排出量推定には、大気 観測の充実に加えて、時空間的に高分解能な モデル解析とインベントリマップ開発が必須であ る。環境研究総合推進費戦略的研究開発領域 SII-8「温室効果ガス収支のマルチスケール監視 とモデル高度化に関する統合的研究」などによ るシステム構築の推進が求められる。
- 高精度で多成分な地上観測は, CO₂ 排出量の



図 5 TST で観測された (a) 平日の CO₂, (b) 休日の CO₂, (c) 平日の CO, (d) 休日の CO の日変動成分。黒が 2017-2019 年 の 4-5 月平均, 赤が 2020 年 4-5 月平均。 箱髭図は CO₂ または CO 濃度の 1 分平均値の 1 時間における 10,25, 75, 90 パーセ ンタイル, 曲線は 50 パーセンタイル値を示す。

起源別推定に非常に有効であるが、観測地点 数を増やすのには限界がある。都市域における 移動体観測の検討を行いつつ、地上観測と連 携した GOSAT-GW 等の次世代衛星観測の利 活用に向けた検討が必要である。

- 日本で、大気科学者がどのようにステークホル ダーと連携すべきか?WMOのIntegrated Global Greenhouse Gas Information System (IG³IS)や、研究者ベースの CO₂ Urban Synthesis and Analysis (CO₂-USA) Network など は、観測データと研究成果の集積に加えて、ス テークホルダーとの連携を大きなターゲットとし ている。
- CO₂だけでなく,メタンも重要な課題である。

大気観測に基づく大都市圏の温室効果ガス排出 量の監視は、グローバルストックテイクとゼロエミ社会 実現への貢献に繋がると期待される。大気を測るだ けでは排出量は減らないが、排出量減少の年々変 動・トレンドを直接監視でき、その変動を迅速にとらえることができるのは大気モニタリングである、との矜持を持って、大気観測網を維持して監視を続けることが重要である。

謝辞

本稿で紹介した大気観測は,防衛大学校・菅原広 史,国立環境研究所・遠嶋康徳,町田敏暢,笹川基 樹,丹羽洋介,産業技術総合研究所・兼保直樹,村 山昌平,青木伸行,気象庁気象研究所・坪井一寛, 東海大学・中島孝,東京都立大学・高橋洋(以上,敬 称略)の各氏のご協力のもと行っている。本研究は, 環境省,環境省地球環境保全等試験研究費(経 1454,経1953,環1451,環1951),独立行政法人環 境 再 生 保 全 機 構 環 境 研 究 総 合 推 進 費 (JPMEERF20191009, JPMEERF21S20800), JSPS 科研費(JP24241008, JP18K01129, JP19H01975)に よる支援を受けて行った。

参考文献

- Boon, A., et al. (2016), Analysis of the potential of near-ground measurements of CO₂ and CH₄ in London, UK, for the monitoring of city-scale emissions using an atmospheric transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 6735–6756, doi:10.5194/acp-16-6735-2016.
- Bréon, F.M., et al. (2015), An attempt at estimating Paris area CO₂ emissions from atmospheric concentration measurements. *Atmos Chem Phys.*, 15, 1707–1724, doi:10.5194/acp-15-1707-2015.
- Duren, R. and Miller, C. (2012), Measuring the carbon emissions of megacities, *Nature Clim. Change*, 2, 560–562, doi:10.1038/nclimate1629.
- Hirano, T., Sugawara, H., Murayama, S., and Kondo, H. (2015),
 Diurnal variation of CO₂ flux in an urban area of Tokyo.
 SOLA, 11, 100–103. doi:10.2151/sola.2015-024
- Ishidoya, S., Sugawara, H., Terao, Y., Kaneyasu, N., Aoki, N., Tsuboi, K., and Kondo, H., (2020), O₂ : CO₂ exchange ratio for net turbulent flux observed in an urban area of Tokyo, Japan, and its application to an evaluation of anthropogenic CO₂ emissions. *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 5293–5308, doi:10.5194/acp-20-5293-2020.
- Kaneyasu, N., Ishidoya, S., Terao, Y., Mizuno, Y. and Sugawara, H., (2020), Estimation of PM2.5 Emission Sources in the Tokyo Metropolitan Area by Simultaneous Measurements of Particle Elements and Oxidative Ratio in Air. ACS Earth Space Chem., 2020, 4, 297–304, doi:10.1021/ acsearthspacechem.9b00314.
- Lauvaux, T, et al. (2013), Urban emissions of CO₂ from Davos, Switzerland: the first real-time monitoring system using an atmospheric inversion technique, *J. Appl. Meteor. Climatol.*, 52, 2654-2668, doi:10.1175/jamc-d-13-038.1.
- Levin, I., Kromer, B., Schmidt, M., and Sartorius, H. (2003), A novel approach for independent budgeting of fossil fuel CO₂ over Europe by ¹⁴CO₂ observations, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2194, doi:10.1029/2003GL018477.

- Lin, J. C., et al. (2018), CO₂ and Carbon Emissions from Cities: Linkages to Air Quality, Socioeconomic Activity, and Stakeholders in the Salt Lake City Urban Area, *Bull. Amer: Meteor. Soc.*, 99(11), 2325-2339, doi:10.1175/BAMS-D-17-0037.1.
- Miles, N. L., et al. (2021), The influence of near-field fluxes on seasonal carbon dioxide enhancements: results from the Indianapolis Flux Experiment (INFLUX), *Carbon Balance Manage.*, 16(1), 1–15, doi:10.1186/s13021-020-00166-z.
- Mueller, K., et al. (2018), Siting background towers to characterize incoming air for urban greenhouse gas estimation: A case study in the Washington, DC/Baltimore area. J. Geophys. Res. Atmos., 123, 2910–2926, doi:10.1002/2017JD027364.
- Nishihashi, M., et al. (2019), Greenhouse gases and air pollutants monitoring project around Jakarta megacity, *IOP Conf. Ser.: Earth Environ. Sci.*, **303** 012038, doi:10.1088/1755-1315/303/1/012038.
- Sargent, M., et al. (2018), Anthropogenic and biogenic CO₂ fluxes in the Boston urban area, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, doi:10.1073/pnas.1803715115.
- Staufer, J., et al. (2016), The first 1-year-long estimate of the Paris region fossil fuel CO₂ emissions based on atmospheric inversion, *Atmos Chem Phys.*, 16, 14703–14726, doi:10.5194/acp-16-14703-2016.
- Turnbull, J. C., et al. (2015), Toward quantification and source sector identification of fossil fuel CO₂ emissions from an urban area: Results from the INFLUX experiment, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 292–312, doi:10.1002/ 2014JD022555.

原稿受領日: 2021 年 6月30日 掲載受理日: 2021 年 7月9日

著者所属:

1. 国立環境研究所

2. 産業技術総合研究所

* 責任著者:

Yukio Terao <yterao@nies.go.jp>

Shigeyuki Ishidoya < s-ishidoya@aist.go.jp >

都市大気におけるOHラジカル反応性研究

OH reactivity study in urban atmosphere

河野七瀬¹*, Jiaru Li¹, 坂本陽介^{1, 2, 3}, 梶井克純^{1, 2, 3}

HOxサイクルの開始剤であるOHラジカルの反応性を調査することは、対流圏O3や二次有機エアロゾル生成の定量的評価や予測に繋がる重要な課題である。本稿では、特に都市域におけるフィールド 観測結果を中心に、総OH反応性測定手法も併せて紹介する。さらに、これまでのフィールド観測で明らかになってきたOHラジカルの未知反応性の原因物質や、未知反応性が対流圏O3生成過程に及ぼ す影響についてまとめた。

1. はじめに

光化学オキシダントや二次有機エアロゾル(SOA: secondary organic aerosol)等に代表される二次生成 物による大気汚染問題に対応するためには,正確な 大気モデルに基づく将来予測を行うことが必要であ る。そのために、大気中で起こり得る化学反応メカニ ズムの完全な理解が求められている。しかし,光化学 オキシダントの主成分であるオゾン(O3)や, SOAを生 成する過程は様々な反応物および生成物が関与す る複雑な連鎖反応が含まれており,実大気中におけ るその詳細なメカニズムはまだ完全には解明されて いないのが現状である。例えば,我が国ではこれまで に自動車排ガスの規制や溶剤使用量の削減により, 対流圏オゾンの前駆物質であるNOxや揮発性有機 化合物 (VOC: volatile organic compound)の大気濃 度を下げる取り組みを行ってきたが,同時に下がると 予想されてきたオゾン濃度はここ約40年の間,主に 都市域で増加傾向にある[Akimoto, 2006]。さらに, 前 駆物質濃度とオゾン生成速度に関するモデル研究 においては、実測値との間には大きな不一致がある ことがわかっている[Carlton & Baker, 2011; Chen et al., 2010]。例えば、アメリカの複数の観測地点における 実測値とモデル計算による推定値の比較では,1日

の最大O3濃度は±15%の範囲内で一致した一方で, 前駆物質であるVOC濃度の推定値は実測値に対し て大きく過大評価した報告がある[Doraiswamy et al., 2009; Martinez et al., 2003]。さらに, SOA形成過程 に関しては実測値と推定値との差は顕著に表れてお り、2006年にヒューストンで実施されたTexAQSフィー ルド観測では、有機エアロゾルの質量濃度推定値が 実測値の40%未満であった[McKeen et al., 2009]。こ れらの不一致は、オゾンやSOA生成に対するメカニ ズムが未だ正確に解明されておらず,上記のプロセ スに関する対流圏化学反応をより定量的・定性的に 評価していく必要性があることを示唆している。特に 都市域における対流圏化学反応を理解することは, 大気汚染の改善に繋がる重要な課題である。しかし, 都市域では多種多様な物質の排出量が時々刻々と 変化するため,各物質の同定に基づく定量的な評価 は困難である。

そこで、ここ約20年の間、実大気中におけるOHラ ジカルの消失速度、つまり総OH反応性を調査する取 り組みが行われてきた[Kovacs T. A. et al., 2003; Yoshino et al., 2006; Whalley et al., 2016; Li et al., 2020]。OHラジカルは非常に高い反応性をもつため、 大気中に存在する様々な化学種X_i(VOC, NO₂, CO 等)と酸化反応を引き起こす。

$$OH + X_i \rightarrow products$$
 (R1)

そのため、対流圏酸化プロセスを明らかにする過程 において、その反応性は重要なパラメータである。総 OH反応性 k_{OH} (単位: s^{-1})は、反応(R1)の X_i 濃度が OHラジカルに対し十分多く、擬一次条件を仮定する と、以下のように定義することが出来る。

$$k_{\rm OH} = \sum k_{\rm OH+X_i}[X_i] \tag{1}$$

ここで[X_i]はOHと反応する化学種X_iの濃度, k_{OH+Xi}は 対応する二分子反応速度定数である。しかし,都市 域では多種のVOCが存在するため,これら化学種の 濃度測定だけでは,総OH反応性を網羅的に把握す ることが出来ないことが明らかになってきた[Lewis et al., 2000; Xu et al., 2003]。そこで,ここ20年,総OH反 応性を直接測定可能な実験手法が開発され,森林 域や郊外,都市域で測定されてきた。その結果,実 測した総OH反応性(k_{OH})と,測定した各化学種の 濃度およびそのOHラジカルとの反応速度定数から 予測されるOH反応性(k_{cale})との間には,大きな不 一致が存在していることが明らかになってきた [Kovacs T. A.et al., 2003; Shirley et al., 2006; Yoshino et al., 2012]。この不一致は,検出または同定できて いない化学種とOHラジカルとの反応に起因しており, これらとの反応によるOHラジカルの消失速度は未知 反応性と呼ばれ,現在もその詳細の解明が進められ ている。本稿では,これら未知反応性も含め,特に都 市域で測定された総OH反応性の結果を中心に紹介 する。具体的には,2章:総OH反応性測定手法,3 章:都市域における総OH反応性測定結果,4章:都 市域における未知反応物質の探索,5章:対流圏オ ゾン生成に対する未知反応性の影響,とする。

2. 総OH反応性測定装置

総OH反応性は、レーザー誘起蛍光(LIF: LASER induced fluorescence)法を用いてOHラジカルを直接 検出し、その濃度減衰を観測する手法が主に用いら れている。また、LIF法を用いた手法の中でも2種類 の測定手法が用いられており、1つはフローチューブ を用いる手法である[Kovacs E. A. & Brune, 2001]。本 手法では、水分子を水銀ランプによって光分解(R2) しOHラジカルを連続的に生成する。

$H_2O + hv (184.9 \text{ nm}) \rightarrow OH + H$ (R2)

生成したOHラジカルは可動式のインジェクターを通って反応管に導入される。この時,反応管の中にはサンプル大気が添加されており,インジェクターのディフューザー部から放出されたOHラジカルはサンプル大気との反応によって消失する。インジェクターの



図 1 LP-LIF 検出装置の概要図 (ZG: Zero gas, MFC: Mass flow controller, PMT: Photomultiplier tube)。*Kohno et al.*, [2020] を一部改変

導入距離を調整し、OHラジカル検出部位とディフュ ーザー間の距離を掃引させることで、OHラジカルと サンプル大気との反応時間を変化させる。反応時間 に対するOHラジカルの相対濃度変化から総OH反応 性を決定することが出来る。

LIF法を用いた2つ目の測定手法は、OHラジカル をpumpレーザーを用いて以下の反応(R3, 4)に従い パルス的に生成する手法(LP-LIF(LASER pump-LIF)法)である[*Sadanaga et al.*, 2004]。

 $O_3 + hv (266 \text{ nm}) \rightarrow O(^1D) + O_2$ (R3)

 $O(^{1}D) + H_{2}O \rightarrow 2OH$ (R4)

図1に筆者の所属する研究グループで使用するLP-LIF検出装置の概要図を示す。OHラジカルはサンプ ル大気中の水蒸気と電子励起O原子の反応で生成 する(R4)。反応セル中で生成したOHラジカルの一 部はピンホールを抜けて低圧の検出セルへ移動する。 ここで、検出セルへのprobeレーザー光照射により光 電子増倍管(PMT: photomultiplier tube)を用いてOH ラジカルのLIFを検出する。大気圧中では、バッファ ーガスによる消光によりOHラジカルのLIF検出は不 可能であるが、検出セルを低圧条件(~2 Torr)とする ことでLIFを高感度で検出することが可能となる。また、 pumpレーザーとprobeレーザーの照射時間間隔(*t*)を 掃引することで、OHラジカルの相対濃度の時間変化 を得る。OHラジカルの濃度時間変化は、擬一次条件 下で反応(R1)の速度式を解くと、

 $[OH] = [OH]_0 \exp(-\sum k_{OH+X_i}[X_i] t)$ $= [OH]_0 \exp(-k_{OH}t)$ (2)

と表される。ここで、[OH]。はpumpレーザー照射時に 生成されたOHラジカルの初期濃度である。つまり、 濃度時間変化の指数関数解析により総OH反応性 koHを決定することが出来る。

一方, OHラジカルを直接検出せず, 参照物質との 競争反応を利用して総OH反応性を測定する競争反 応法(CRM: comparative reactivity method)もいくつ かの観測で用いられているため、ここで紹介する。こ れは、OHラジカルと反応させる参照物質を陽子移動 反応質量分析計(PTR-MS: proton transfer reaction mass spectrometer)やガスクロマトグラフィー-水素炎イ オン化検出器(GC-FID: gas chromatography-flame ionization detector)を用いて検出し、その濃度変化か らOHラジカルの反応性を間接的に算出する手法で ある[Sinha et al., 2008]。ここで,参照物質をXとする。 反応管の中に乾燥窒素等のゼロガスとXを添加した 際のXの濃度をC1、また、ゼロガス/X混合気に反応 (R2)で生成したOHラジカルを添加した際のX濃度を C2とする。Xの濃度(C2)はOHラジカルとの反応によ ってC1よりも下がる。さらに、ゼロガスの代わりにサン プル大気を使用し、サンプル大気/X/OHラジカル混 合気とした際のX濃度をC3とする。OHラジカルとサン プル大気の反応,およびOHラジカルとXとの反応は 競争的に進行するため,濃度C3はC2よりも増加する。 koH+xをOHラジカルとXの反応速度定数とすると、総 OH反応性koHは,これらの濃度変化を用いて以下の ように表すことが出来る。

$$k_{\rm OH} = \frac{(C3 - C2)}{(C1 - C3)} k_{\rm OH+x} C1$$
(3)

ここで,用いる参照物質はピロール等のサンプル大 気中にほとんど存在せず,また,十分にOHラジカル と反応可能な物質である必要がある。

これまで,各測定手法間で顕著な差異は報告され ていないが[Hansen et al., 2015],都市域では大気中 のNOx濃度が比較的高いため,水の光分解により OHラジカルを生成するflow tube法とCRM法では, NOによる干渉が報告されている[Kovacs T. A. et al., 2003; Sinha et al., 2008; Yoshino et al., 2006]。水の光 分解(R2)では,OHラジカルと等量のH原子が生成さ れ,H原子は周囲のO₂と素早く反応しHO₂ラジカルを 生成する。HO₂ラジカルはNOと反応し(R5),OHラジ カルを生成するため,高NO条件下では,総OH反応 性が見かけ上,遅くなる。

$$HO_2 + NO \rightarrow OH + NO_2$$
 (R5)

そのため、これらの手法を用いる場合、NOによる干 渉を補正する必要がある。一方、LP-LIF法ではO3の 光分解によりOHラジカルのみ生成されるため、干渉 補正の必要性が低く、都市域における観測では好適 であると言われている。しかし、こちらも非常に高濃度 のNOxが存在する場合には、OHラジカルとサンプル 大気との反応によって生成したHO2ラジカルが干渉 を与える可能性があるため、サンプル大気を希釈す る等の措置をとる必要性がある。

3. 都市大気における総OH反応性測定

総OH反応性は、これまでいくつかの都市で測定されており、その平均値は低いところではおよそ10 s⁻¹ [*Mao et al.*, 2010]から、高いところでは40 s⁻¹ [Dolgorouky et al., 2012]の間で報告されている。観測 の共通点としては、都市域では自動車の排ガス、化 石燃料の燃焼や溶剤の蒸発等,人間活動に由来す る物質が多いため、総OH反応性の日変化が人為起 源物質,特にNOxの濃度に強く相関している点であ る。特に、午前6時から9時のラッシュアワーの時間帯 で総OH反応性の増加が見られた[Ren et al., 2003a,b; Ren et al., 2006a; Mao et al., 2010]。これは, 自動車排 ガスに含まれるNOxやVOC濃度が高くなることが要 因である。また,いくつかの観測では夜間に高い総 OH反応性が測定されている[Dolgorouky et al., 2012; Ren et al., 2006a]。この原因としては, 大気境界層の 高さが関係しており、日中に比べ低い境界層の為に 大気中の化学種の希釈効率が下がることが原因であ ると考えられている[Martinez et al., 2003]。表1に都市 域におけるフィールド観測の結果をまとめた。

Site	Season ^a , Year	Method	$k_{\rm OH}({ m s}^{-1})^b$	Missing reactivity	Reference
Nashville, US	SU, 1999	LIF-flow tube	11	30%	Kovacs T. A. et al. [2003]
NY, US	SU, 2001	LIF-flow tube	20	10%	<i>Ren et al.</i> [2003a,b]
	W, 2004	LIF-flow tube	25	statistically lower	Ren et al. [2006a]
MexicoCity, Mexico	SP, 2003	LIF-flow tube	33	30%	Shirley et al. [2006]
Houston, US	SU, 2000	LIF-flow tube	-	agree well	Mao et al. [2010]
	SU, 2006	LIF-flow tube	~8	agree well	Mao et al. [2010]
Tokyo, Japan	2003 - 2004	LP-LIF	20.4 (SP), 27.7 (SU), 21.0 (A), 18.5 (W)	30% (SP, SU, A), 5% (W)	Sadanaga et al. [2004, 2005], Yoshino et al.[2006]
	SU, 2006	LP-LIF	29	30%	Chatani et al. [2009]
	SP, 2009	LP-LIF	13.31	35%	Kato et al. [2011]
	SU, W, 2007 / A, 2009	LP-LIF	33.4 (SU), 32.3 (A)	27% (SU), 35% (A)	Yoshino et al. [2012]
Paris, France	W, 2010	CRM	40.3	10-54%	Dolgorouky et al. [2012]
London, England	SU, 2012	LP-LIF	18.1	20-40%	Whalley et al. [2016]
Beijing, China	SU, 2013	CRM	20	21%	Yang et al. [2017]
Helsinki, Finland	W, 2016	CRM	7.6	47%	Praplan et al. [2017]

表1 都市域における総 OH 反応性観測結果

^a SP;春,SU;夏,A;秋,W;冬

[•] 観測期間を通した平均総 OH 反応性

対照的な観測として,森林域における総OH反応 性の日変化は,昼の12時から15時の間にピークが現 れることが多く,夜間は反応性が下がる傾向が報告さ れている[Hansen et al., 2014; Nolscher et al., 2016]。 これは,OH反応性に生態系,特に植物由来のVOC が大きく寄与していることが原因であると考えられる。 温度及び日射量が高い時間帯で植物活動が最も活 発となり,VOC放出量が増加する。さらに,大気中の 光化学反応効率が上昇するため,二次生成物とOH ラジカルの化学反応速度も加速し,日中の総OH反 応性が増加する[Williams et al., 2016]。

また、都市域における多くのの観測では総OH反応性と同時にNOx計やPTR、GCを用いて大気中の数十種類以上の化学種X_iの濃度も測定しており、式(1)に従い、各物質濃度からOH反応性(k_{calc})を計算している。図2に計算によって得られた各物質のk_{calc}に対する反応性割合を示す。ほとんどの地域でNOx及びCOによる反応がおよそ50%かそれ以上を占めていることが分かる。これらの地域では交通量が多いため、自動車からの排ガスがNOx、COの重要な排出源であると考えられている。しかし、ヒューストンとメキシコシティではNOxおよびCOとの反応性が比較的低く、VOCの割合が高い。特に、ヒューストンでは

芳香族化合物の影響が高く、これは工業地域からの 有機溶剤排出の影響を強く受けたためだと考えられ る[Mao et al., 2010]。また、メキシコシティではバイオ 燃料の使用が他の都市に比べ高いため、アセトニトリ ル等の大気濃度が高くなっている可能性が報告され ている[de Gouw et al., 2009]。このように、都市大気の 中でも自動車排ガスが主なOH反応物質となる地域と、 工業活動から排出される汚染物質が支配的になる地 域に分類することが出来る。

都市域における総OH反応性の季節変動に関して は、Yoshino et al. [2006; 2012]によって東京の大気を 対象に調査されている。彼らの結果では、総OH反応 性の値は季節によってほとんど変化しなかったが、反 応性に寄与する化学種の内訳が季節によって変動 すると報告されている。2007年夏季における観測で は、k_{calc}に対するNOx、人為起源VOC、含酸素揮発 性有機化合物(OVOC: oxygenated VOC),植物起源 VOC(BVOC: biogenic VOC)の割合はそれぞれ35, 31,17,8%であるのに対し、2009年の秋の観測では、 それぞれ57、29、7、1%となっている(図2)。夏は BVOCやOVOCの割合が高く、秋はNOxの割合が増 加している。これは、夏に植物活動が活発になること と、太陽光により促進される光化学反応が日射量の



図 2 K_{calc} に対する各物質の OH 反応性割合 (SP; 春, SU; 夏, A; 秋, W; 冬)

多い夏に加速し、反応の酸化生成物であるOVOC濃度が増加したためであると考えられる。一方で、秋や冬では、夏に比べOVOCの発生やBVOCの放出が減少し、相対的にNOxとの反応の割合が高くなる。

都市大気におけるOHラジカルの未知反応 性

これまで都市域で実施された多くの観測で、実測 の総OH反応性(kon)に比べ、様々な化学種の濃度 から予測したOH反応性(kcalc)の値が低いことが報告 されている。この不一致は未知反応性(Missing) reactivity)と呼ばれ, koHに対するその割合はおよそ 30%以下が多い(表1)。一方で,森林域では30%か ら80%まで比較的高い未知反応性の割合が報告さ れている[Nakashima et al., 2014; Nolscher et al., 2016; Sinha et al., 2010]。また, 郊外における観測は, 森林域や都市域からの複雑な影響があり,未知反応 性の割合および総OH反応性の値は観測地によって 大きく変動することが多い[Li et al., 2020; Lou et al., 2010; Ren et al., 2006b]。ここで, 注意すべき点として は、未知反応性の割合は各観測で検出した化学種 の数にも依存している。例えば、Nashville (US)にお ける夏季観測では、BVOCを検出しておらず、これが 30%という比較的高い未知反応性割合となっている 可能性がある(表1)。

都市域における未知反応性の要因(未知反応物 質)としては,現在,大きく分けて2つ考えられている。 1つは,一次排出源に含まれている未検出または未 同定の化学種である。Nakashima et al. [2010]は,自 動車から排出されたガスをサンプルガスとして総OH 反応性を測定する室内実験を行った。その結果,平 均で17.5%の未知反応性が存在することを明らかとし た。これは,東京,パリ,ニューヨークなど,自動車排 ガスが総OH反応性に大きく影響するような都市では, 排ガスからの一次汚染物質が未知反応性に寄与し ている可能性が高いことを示唆している。実際に,い くつかの観測では朝のラッシュアワー時に未知反応 性の割合が高くなることが報告されている[Ren et al., 2006a; Sheehy et al., 2010]。

また,都市域における未知反応性の2つ目の要因 としては,大気中で起こる様々な化学反応の二次生 成物の影響が考えられる。Yoshino et al. [2006]は東 京における観測で,春夏秋ではOVOC濃度と未知反 応性の値に相関があることを報告している。彼らの検 出したOVOCの中で濃度が支配的であったホルムア ルデヒドとアセトアルデヒドは、一次排出される人為起 源物質である一方で,大気光酸化反応の生成物でも ある。他の人為起源VOCと未知反応性の間に相関 が見られなかったことから、これらのアルデヒドは主に 光化学反応による生成物であると結論付けられた。 つまり, 未知反応物質も, 光化学反応の生成物であ る可能性が高い。さらに、冬季においてはこれらの相 関が見られず,さらに,他季に比べると未知反応性 割合が顕著に低かった(春夏秋:~30%,冬:5%)。 これは、冬季が低い日射量により光化学反応が抑制 され,二次生成物の濃度が減少したと考えることが出 来る。さらに, Whalley et al. [2016]はロンドンにおける 実測の総OH反応性とMaster Chemical Mechanismを 用いたモデル計算結果を比較し,モデルに化学反 応の中間体を加えることで未知反応性割合が大きく 減少することを報告しており,未検出の一次排出物 質と同様に二次生成物の重要性が示唆された。

さらに, Kato et al. [2011]らは未知反応物質の化学 組成を調査するため, GC-FIDを用いて東京の大気 を対象に実験を行った。サンプル大気をGC-FIDで 分析した結果,およそ70種類の同定ピークに対して 約30本の未同定ピークが観測された。サンプル大気 にOHラジカルを暴露した場合としなかった場合の,こ れらの未同定ピーク強度を解析した結果,総OH反 応性に対して5から7 %の反応性の寄与を持つことが 明らかとなった。つまり,一部の未知反応物質はGC-FIDでピークとして検出されるが未同定の化合物であ ることが分かる。しかし,東京における大気観測では, 未知反応性の割合が総OH反応性に対し30から50 % に達することがあることから、GC-FIDで検出されない 化合物も同様に未知反応性へ大きく寄与しているこ とを明らかとした。

5. 未知反応性の対流圏オゾンへの影響

未知反応物質を同定・定量することは、大気中で 起こり得る大気化学反応を明らかにし、大気質をシミュレーションによって予測する上でも非常に重要なこ とである。特に、図3に示すように、OHラジカルの酸 化反応で生成されたHO2やRO2ラジカルはNOx濃度 の高い都市大気でNOと反応しNO2を生成し、後続の 光化学反応によりO3を生成する。そのため、未知反 応性を含めたOHラジカルの化学反応は対流圏オゾ ンの生成に深く関与しており、NOxやVOC等の前駆 物質の削減と共に、未知反応物質の解明によるより 効率的なオゾン削減対策が期待されている。

ここで、OHラジカルの未知反応性が対流圏オゾン の生成にどの程度影響しているのかを定量評価する ため、*Sadanaga et al.* [2005]は、1つのOHラジカルか らHOxサイクルを経由してどの程度O₃が生成され得 るかを、オゾン生成ポテンシャルΦとして定義した(式 (4))。

$$\Phi = \frac{\int_0^\infty P_{\text{RO2HO2}} dt}{[\text{OH}]_0} \tag{4}$$

PRO2HO2は以下で示されるRO2ラジカルとHO2ラジカル

の生成速度であり、O3生成はRO2およびHO2ラジカルの生成速度に比例していると考えられる。

$$P_{\text{RO2HO2}} = k_{\text{OH+CO}}[\text{CO}][\text{OH}] + 2\sum k_i [\text{VOC}_i][\text{OH}]$$
(5)

彼らは,2003年の東京夏季における総OH反応性 (k_{OH})および計算値(k_{calc})からCOおよびNOxとの反 応性を引いた分をΣk_i[VOC_i]とし, それぞれ式(5)に 代入し、オゾン生成ポテンシャルΦを算出した。その 結果, koHを用いるとkcalcを使用した場合に比べ, Φの 値は1.3倍から1.9倍まで増加することを明らかにした。 これは、kOHとkcalcの差である未知反応性が全てRO2 生成に寄与した場合,対流圏オゾンの生成を劇的に 加速させることを示唆している。また、2007年夏季東 京における観測では、特にNOx濃度が低い状況下 で、 k_{calc} を用いたポテンシャル Φ の値に比べ、 k_{OH} を使 用するとΦの値がおよそ1.5倍程度増加する結果が報 告された[Yoshino et al., 2012]。OH未知反応性が都 市大気のオゾン生成に大きく影響していることを示唆 する観測は他にも報告されており[Yang et al., 2017; Whalley et al., 2021], Yang et al. [2017]は, 夏季の北 京における観測において, OHの反応性(Σk_i[VOC_i]) をkcalcではなくkoHとすることで、O3生成速度がNOxに よるOHラジカルの消失速度に比べ21%増加する可 能性があるとしている。

また,対流圏O3の生成過程に対する評価方法とし



図3 対流圏オゾンを生成する HOx ラジカルの連鎖反応(HOx サイクル)概念図

て、オゾン生成ポテンシャル以外にO3生成レジーム がある[Kleinman, 2005; Sakamoto et al., 2019]。これ は、O3生成過程の中で、前駆物質であるNOxおよび VOCの反応に対してどちらが律速段階であるかの指 標である。NOx (もしくはVOC)レジームであった場 合は, NOx (VOC)が関与する反応がHOxサイクル 中で律速段階となり、O3生成速度はNOx (VOC)の 濃度に強く依存する。つまり、NOxレジームの大気質 では、NOx濃度の軽減が対流圏O3の生成を効率よく 抑制する。逆に、VOCレジームであった場合, VOC 濃度の削減はO₃生成抑制に効果的である一方, NOx濃度の削減は条件によってはO3生成過程を加 速させてしまう可能性がある。ほとんどの都市大気で は、高いNOx濃度を示す傾向にあることから、多くの 地域でVOCレジームである可能性が高い。つまり, VOCが都市大気のO3生成速度に大きく影響している と考えられ,未知反応物質であるVOCの濃度や属性 を調査することは、都市域における対流圏O3増加問 題解決へ向けた重要な課題のひとつである。

6. おわりに

本稿では,森林域や郊外における観測は比較程 度に省略し、都市域における総OH反応性測定に焦 点を当てて紹介をした。都市域における観測報告例 は十分に多くないが、徐々に時間的・空間的データ セットが蓄積されている一方,ほとんどのフィールド観 測で未知反応性の存在が確認されている。これらの 要因は未検出,未同定の一次排出物質である可能 性と, OVOC等の二次生成物である可能性が示唆さ れている。また,これらの未知反応物質は都市域に おける対流圏O3増加問題に深く関与している可能性 が高いことが明らかとなってきた。総OH反応性を測 定し、その未知反応物質の詳細や動向調査を行うこ とは、これまでの一次汚染物質の制御だけでなく、二 次生成物による汚染問題への重要なアプローチとな るため,引き続き様々な条件下での観測実験を行う 必要がある。さらに,これまでの未知反応性を含めた 解析では,全ての未知反応物質がRO2ラジカルを生成するという仮定に基づいているが,その詳細は明らかになっていない。今後は,OHラジカルの未知反応物質がどのような反応経路を辿るのか,つまり,HOxサイクル内の反応経路分岐比を調査することも重要であると考えられる。

また,近年,HOxサイクルの開始剤であるOHラジ カルだけでなく、サイクルを構成するHO2やRO2ラジ カルの挙動が対流圏O3生成に影響を与えている可 能性が示唆されている。筆者の所属する研究グルー プでは、上記の反応経路分岐比を含め、これらHO2 やRO2ラジカルの反応性測定も行い、HOxサイクルの 定量的評価を目指し実験・観測を行っており、今後ま た進展を報告する所存である。

7. 参考文献

- Akimoto, H. (2006), Tropospheric Ozone: A Growing Threat. Publications of Acid Deposition and Oxidant Research Center, Niigata Japan.
- Carlton, A. G., and Baker, K. R. (2011), Photochemical modeling of the Ozark isoprene volcano: MEGAN, BEIS, and their impacts on air quality predictions. *Environ. Sci. Technol.*, 45(10), 4438-4445.
- Chatani, S., Shimo, N., Matsunaga, S., Kajii, Y., Kato, S., Nakashima, Y., et al. (2009), Sensitivity analyses of OH missing sinks over Tokyo metropolitan area in the summer of 2007. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8975-8986.
- Chen, S. P., Liu, T. H., Chen, T. F., Yang, C. F. O., Wang, J. L., & Chang, J. S. (2010), Diagnostic Modeling of PAMS VOC Observation. *Environ. Sci. Technol.*, 44, 4635-4644.
- de Gouw, J. A., Welsh-Bon, D., Warneke, C., Kuster, W. C., Alexander, L., Baker, A. K., et al. (2009), Emission and chemistry of organic carbon in the gas and aerosol phase at a sub-urban site near Mexico City in March 2006 during the MILAGRO study. *Atmos. Chem.*

Phys., 9, 3425-3442.

- Dolgorouky, C., Gros, V., Sarda-Esteve, R., Sinha, V., Williams, J., Marchand, N., et al. (2012), Total OH reactivity measurements in Paris during the 2010 MEGAPOLI winter campaign. *Atmos. Chem. Phys.*, 12(20), 9593-9612.
- Doraiswamy, P., Hogrefe, C., Hao, W., Henry, R. F., Civerolo, K., Ku, J.-Y., et al. (2009), A diagnostic comparison of measured and model-predicted speciated VOC concentrations. *Atmos. Environ.*, 43(36), 5759-5770.
- Hansen, R. F., Blocquet, M., Schoemaecker, C., Léonardis, T., Locoge, N., Fittschen, C., et al. (2015), Intercomparison of the comparative reactivity method (CRM) and pump–probe technique for measuring total OH reactivity in an urban environment. *Atmos. Meas. Tech.*, 8(10), 4243-4264.
- Hansen, R. F., Griffith, S. M., Dusanter, S., Rickly, P. S., Stevens,
 P. S., Bertman, S. B., et al. (2014), Measurements of total hydroxyl radical reactivity during CABINEX 2009 – Part 1: field measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(6), 2923-2937.
- Kato, S., Sato, T., and Kajii, Y. (2011), A method to estimate the contribution of unidentified VOCs to OH reactivity. *Atmos. Environ.*, 45(31), 5531-5539.
- Kleinman, L. I. (2005), The dependence of tropospheric ozone production rate on ozone precursors. *Atmos. Environ.*, 39(3), 575-586.
- Kohno, N., Li, J., Sakamoto, Y., and Kajii, Y. (2020), Rate constants of CH₃O₂ + NO₂ *≓* CH₃O₂NO₂ and C₂H₅O₂
 + NO₂ *≓* C₂H₅O₂NO₂ reactions under atmospheric conditions. *Int. J. Chem. Kinet.*, 53(5), 571-582.
- Kovacs, E. A., and Brune, W. H. (2001), Total OH Loss Rate Measurement. J. Atoms. Chem., 39, 105-122.
- Kovacs, T. A., Brune, W. H., Harder, H., Martinez, M., Simpas, J. B., Frost, G. J., et al. (2003), Direct measurements of urban OH reactivity during Nashville SOS in summer 1999. J. Environ. Monit., 5(1), 68-74.

- Lewis, A. C., Carsla, N., Marriott, P. J., Kinghorn, R. M., Morrison, P., Lee, A. L., et al. (2000), Alarger pool of ozone-forming carbon compounds in urban atmospheres. *Nature*, 405, 778-781.
- Li, J., Sakamoto, Y., Kohno, N., Fujii, T., Matsuoka, K., Takemura, M., et al. (2020), Total hydroxyl radical reactivity measurements in a suburban area during AQUAS-Tsukuba campaign in summer 2017. Sci. Total. Environ., 740, 139897.
- Lou, S., Holland, F., Rohrer, F., Lu, K., Bohn, B., Brauers, T., et al. (2010), Atmospheric OH reactivities in the Pearl River Delta – China in summer 2006: measurement and model results. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(22), 11243-11260.
- Mao, J., Ren, X., Chen, S., Brune, W. H., Chen, Z., Martinez, M., et al. (2010), Atmospheric oxidation capacity in the summer of Houston 2006: Comparison with summer measurements in other metropolitan studies. *Atmos. Environ.*, 44(33), 4107-4115.
- Martinez, M., Harder, H., Kovacs, T. A., Simpas, J. B., Bassis, J., Lesher, R., et al. (2003), OH and HO₂ concentrations, sources, and loss rates during the Southern Oxidants Study in Nashville, Tennessee, summer 1999. J. Geophys. Res., 108(D19).
- McKeen, S., Grell, G., Peckham, S., Wilczak, J., Djalalova, I., Hsie, E. Y., et al. (2009), An evaluation of real-time air quality forecasts and their urban emissions over eastern Texas during the summer of 2006 Second Texas Air Quality Study field study. J. Geophys. Res., 114.
- Nakashima, Y., Kamei, N., Kobayashi, S., and Kajii, Y. (2010), Total OH reactivity and VOC analyses for gasoline vehicular exhaust with a chassis dynamometer. *Atmos. Environ.*, 44(4), 468-475.
- Nakashima, Y., Kato, S., Greenberg, J., Harley, P., Karl, T., Turnipseed, A., et al. (2014), Total OH reactivity measurements in ambient air in a southern Rocky

mountain ponderosa pine forest during BEACHON-SRM08 summer campaign. *Atmos. Environ.*, 85, 1-8.

- Nolscher, A. C., Yanez-Serrano, A. M., Wolff, S., de Araujo, A. C., Lavric, J. V., Kesselmeier, J., and Williams, J. (2016), Unexpected seasonality in quantity and composition of Amazon rainforest air reactivity. *Nat. Commun.*, 7, 10383.
- Praplan, A. P., Pfannerstill, E. Y., Williams, J., and Hellén, H. (2017), OH reactivity of the urban air in Helsinki, Finland, during winter. *Atmos. Environ.*, 169, 150-161.
- Ren, X., Harder, H., Martinez, M., Lesher, R. L., Oliger, A., Shirley, T., et al. (2003a), HOx concentrations and OH reactivity observations in New York City during PMTACS-NY2001. *Atmos. Environ.*, 37(26), 3627-3637.
- Ren, X., Harder, H., Martinez, M., Lesher, R. L., Oliger, A., Simpas, J. B., et al. (2003b), OH and HO₂ Chemistry in the urban atmosphere of New York City. *Atmos. Environ.*, 37(26), 3639-3651.
- Ren, X., Brune, W. H., Mao, J., Mitchell, M. J., Lesher, R. L., Simpas, J. B., et al. (2006a), Behavior of OH and HO₂ in the winter atmosphere in New York City. *Atmos. Environ.*, 40, 252-263.
- Ren, X., Brune, W. H., Oliger, A., Metcalf, A. R., Simpas, J. B., Shirley, T., et al. (2006b), OH, HO₂, and OH reactivity during the PMTACS-NY Whiteface Mountain 2002 campaign: Observations and model comparison. J. Geophys. Res.: Atmospheres, 111, D10S03.
- Sadanaga, Y., Yoshino, A., Kato, S., Yoshioka, A., Watanabe, K.,
 Miyakawa, Y., et al. (2004), The importance of NO₂ and volatile organic compounds in the urban air from the viewpoint of the OH reactivity. *Geophys. Res. Lett.*, 31(8).
- Sadanaga, Y., Yoshino, A., Kato, S., and Kajii, Y. (2005), Measurements of OH Reactivity and Photochemical Ozone Production in the Urban Atmosphere. *Environ. Sci. Technol.*, 39, 8847-8852.

- Sakamoto, Y., Sadanaga, Y., Li, J., Matsuoka, K., Takemura, M., Fujii, T., et al. (2019), Relative and Absolute Sensitivity Analysis on Ozone Production in Tsukuba, a City in Japan. *Environ. Sci. Technol.*, 53(23), 13629-13635.
- Sheehy, P. M., Volkamer, R., Molina, L. T., & Molina, M. J. (2010), Oxidative capacity of the Mexico City atmosphere – Part 2: A ROx radical cycling perspective. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(14), 6993-7008.
- Shirley, T. R., Brune, W. H., Ren, X., Mao, J., Lesher, R., Cardenas, B., et al. (2006), Atmospheric oxidation in the Mexico City Metropolitan Area (MCMA) during April 2003. Atmos. Chem. Phys., 6, 2753-2765.
- Sinha, V., Williams, J., Crowley, J. N., and Lelieveld, J. (2008), The Comparative Reactivity Method – a new tool to measure total OH Reactivity in ambient air. Atmos. Chem. Phys., 8, 2213-2227.
- Sinha, V., Williams, J., Lelieveld, J., Ruuskanen, T. M., Kajos, M. K., Patokoski, J., et al. (2010), OH Reactivity Measurements within a Boreal Forest: Evidence for Unknown Reactive Emissions. *Environ. Sci. Technol.*, 44, 6614-6620.
- Whalley, L. K., Stone, D., Bandy, B., Dunmore, R., Hamilton, J. F., Hopkins, J., et al. (2016), Atmospheric OH reactivity in central London: observations, model predictions and estimates of in situ ozone production. *Atmos. Chem. Phys.*, 16(4), 2109-2122.
- Whalley, L. K., Slater, E. J., Woodward-Massey, R., Ye, C., Lee, J. D., Squires, F., et al. (2021), Evaluating the sensitivity of radical chemistry and ozone formation to ambient VOCs and NOx in Beijing. *Atmos. Chem. Phys.*, 21(3), 2125-2147.
- Williams, J., Keßel, S. U., Nölscher, A. C., Yang, Y., Lee, Y., Yáñez-Serrano, A. M., et al. (2016), Opposite OH reactivity and ozone cycles in the Amazon rainforest and megacity Beijing: Subversion of biospheric oxidant control by anthropogenic emissions. *Atmos.*

Environ., 125, 112-118.

- Xu, X., van Stee, L. L. P., Williams, J., Beens, J., Adahchour, M.,
 Vreuls, R. J. J., et al. (2003), Comprehensive twodimensional gas chromatography (GC × GC) measurements of volatile organic compounds in the atmosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, *3*, 665-682.
- Yang, Y., Shao, M., Keßel, S., Li, Y., Lu, K., Lu, S., et al. (2017), How the OH reactivity affects the ozone production efficiency: case studies in Beijing and Heshan, China. *Atmos. Chem. Phys.*, 17(11), 7127-7142.
- Yoshino, A., Sadanaga, Y., Watanabe, K., Kato, S., Miyakawa, Y., Matsumoto, J., & Kajii, Y. (2006), Measurement of total OH reactivity by laser-induced pump and probe technique—comprehensive observations in the urban atmosphere of Tokyo. *Atmos. Environ.*, 40(40), 7869-7881.
- Yoshino, A., Nakashima, Y., Miyazaki, K., Kato, S., Suthawaree, J., Shimo, N., et al. (2012), Air quality diagnosis from comprehensive observations of total OH reactivity and reactive trace species in urban central Tokyo. *Atmos. Environ.*, 49, 51-59.

原稿受領日: 2021年6月23日 掲載受理日: 2021年7月11日

著者所属:

- 1. 京都大学 地球環境学堂
- 2. 京都大学 人間·環境学研究科
- 3. 国立環境研究所
- * 責任著者:

Nanase Kohno <kohno.nanase.32r@st.kyoto-u.ac.jp >

東京都心における大気エアロゾル粒子の変動

Variation of atmospheric aerosol particles over the central Tokyo

三浦和彦^{1,2*}

大気エアロゾルは人体の健康のみならず気候へも影響するが、粒径によってその挙動は異なる。本 稿では、これまで東京都内で実施してきた粒径分布の長期観測の結果と現在実施中の東京スカ イツリーでの観測の結果の一部を紹介する。1980年代と比較して、2000年代の都心のエアロゾル 粒子数濃度は粒径によらず、地上と上空の両方において減少している。健康影響の観点からは喜 ばしいことではあるが、エアロゾルの冷却効果が小さくなるという意味では喜ばしいとは言えない。エア ロゾルの冷却効果は粒子の種類によって異なるため、どのような成分のエアロゾルがどれだけ減少し ているかを把握しエアロゾルの冷却効果を予測することが、二酸化炭素の削減などの温暖化対策にと って重要となる。

1. はじめに

大気エアロゾル粒子は人体への健康のほかに気 候へも影響を与える。在北京米国大使館による2013 年1月のPM2.5の質量濃度は1時間値で886 µg/m³を 記録したが,その後,中国の大気汚染対策により北 京のPM2.5の質量濃度は2013 ~ 2019年の間に約 60%も減少した[Uno et al., 2020]。日本国内でも九州 北部をはじめPM2.5の質量濃度は減少傾向にある[鵜 野ら,2017;環境省,2021]。東京都内でもPM2.5の濃 度は減少傾向にあり,一般環境大気測定局(46地点) では2018年から,自動車排出ガス測定局(34地点) でも2019年に環境基準(年平均値が15 µg/m³以下で あり,かつ,日平均値が35 µg/m³以下であること)を下 回る観測地点が100%に達した[東京都,2020]。

PM_{2.5}は粒径2.5 μmの粒子を50 %カットオフする捕 集方法で捕集される粒子の質量濃度で評価されるが, 呼吸器系への影響は粒径によって異なる。エアロゾ ルは粒径によって動力学,熱力学,光学的特性も異 なり,エアロゾルの粒径分布は健康影響のみではな く,気候影響においても大変重要である。本稿ではこ れまでの東京都内で実施してきた粒径分布の長期 観測の結果と現在実施中の東京スカイツリーでの観 測の結果の一部を紹介する。

2. 東京理科大学(新宿区神楽坂)での観測

2.1 1980年代の粒子数濃度

東京都新宿区神楽坂において高さ約60 mの17階 建校舎の8階(地上約30 m)の窓から外気を吸引し, ポラック型凝結核計数器[Pollak and O'Connor, 1955] と拡散箱を組み合わせて全個数濃度(N_{total})と50 %カ ットオフ半径0.03 µm以上の個数濃度(N_{>0.03µm})を 1980年から1987年まで測定した。さらに,2種の光散 乱式粒子計数器(Optical particle counter; OPC) (RION, KC14; KC01)を用いて半径0.055 µm以上の 個数濃度を7段階で測定し[三浦・関川, 1988; *Miura* and Sekikawa,1990], N_{total}とN_{>0.03µm}の比から代表拡 散係数を求めそれに対応する代表半径(r*)を求めた [DeMarcus and Thomas, 1952]。半径0.1 µm以上の粒 径分布は次式で近似される[Junge, 1955]:

$$dN/d\log r = cr^{-\beta} \tag{1}$$

ここでNは半径r μm以下の粒子の個数濃度である。 両辺の対数を取ると

$$\log(dN/d\log r) = -\beta \log r + C$$
(2)

と書ける。半径0.15, 0. 25, 0.5, 1, 2.5 μm以上の個数 濃度から粒径分布dN/dlogrを計算し両対数軸上で回 帰直線を求め,縦軸の切片(C = logc;半径1 μmの粒 径分布の値の対数)と傾きβを求めた。

表1に5つの粒径範囲の個数濃度と3つのパラメー タの全期間の平均,標準偏差,季節変動,日変動, 風速の影響を示す。 N_{total} の全期間の平均濃度は8 × 10^4 個 cm⁻³と他の観測地(例えば,札幌市内の 10^4 ~ 10^5 個 cm⁻³[*Endo and Magono*, 1971],浦和市内 の 3×10^4 個 cm⁻³[北川ら,1983])の値より高い。これ は観測場所が幹線道路に面しているためである。傾 き β も他の観測地より大きく,小さい粒子が卓越してい ることを示している。

1980年1月から1987年12月までの粒径別個数濃度 と切片, 傾き, 代表半径の月平均値と標準偏差から *N*totalと*N*>0.03µmは冬高く夏低いという季節変動が見ら れ, *r** は7月に大きくなり, 小さい粒子の減少率が大 きいことを示している。一方, 半径0.055 µm, 0.15 µm, 1.0 µm以上の個数濃度(*N*>0.055µm, *N*>0.15µm, *N*>1.0µm), 切片, 傾きでははっきりした傾向は見られない。*N*total と*N*>0.03µmには9時ごろ高くなるという日変動が見られ, 交通量との関係も確認され、人間活動の影響が大き いことがわかる。一方、比較的大きい粒子は時刻の 違いよりも、風速の影響が大きい。このため風速が大 きくなると傾きは小さくなる。

2.2 逆転層との関係

風が強くなると大気汚染物質の濃度が減少するこ とはよく知られている。その原因として気塊が入れ替 わる移流と鉛直乱流拡散による空気の混合希釈が考 えられる。観測場所は都心部の真ん中にあり,風向 にかかわらず移流があれば希釈されることが多い。粒 子濃度の変動の原因を調べるためには大気境界層 の鉛直構造を調べる必要がある。

エアロゾル粒子の鉛直分布の測定は,当時,ライ ダー[Sasano et al., 1982]やヘリコプター[Hayashi et al., 1985]や鉄塔[Kunugi et al., 1987]が使われていた。 Miura [1990]は1986, 1987年の冬に,17階建校舎の 屋上から1時間おきにパイロットバルーンを放球し, 高さ2000 mまでの風の鉛直分布を測定し,地上で測 定したエアロゾル粒子数濃度と比較した。24日間の 観測期間中,冬型で逆転層のない事例が5例,沈降 性逆転の例が3例,地形性前線の移動により逆転層 が消滅した例が2例,寒冷前線の通過により逆転層 が消滅した例が1例観測された。

1986年12月10日は関東沖に高気圧があり,関東地方に南風が吹き込み,地形性逆転層ができていた。

表 1 1983 年から 1987 年の神楽坂で観測した粒子個数濃度と各パラメータの平均値。Miura and Sekikawa [1990] を一部改変。

		<i>N</i> total ^b	N >0.03µm ^b	N >0.055µm ^b	N >0.15µm ^b	N >1.0μm ^b	r*c	logc ^d	eta^{d}
全期間	平均	80600	13700	3090	164	0.25	0.0176	0.21	3.26
	標準偏差	37000	8050	2340	148	0.20	0.0026	0.29	0.39
禾筋亦動	12,1,2 月	65900	12000	2544	162	0.20	0.0182	0.19	3.31
李即変 <u></u> (6,7,8 月	96600	16700	5030	196	0.30	0.0175	0.18	3.19
3 日変動 ^a 5 (JST) 5	3:00	47000	8460	2340	162	0.22	0.0178	0.16	3.27
	9:00	118200	20100	3550	166	0.26	0.0173	0.26	3.22
	12:00	103300	17900	3820	183	0.27	0.0176	0.27	3.25
風速。	1 m/s	94300	18500	4790	265	0.31	0.0186	0.39	3.40
	6 m/s	74200	8850	1530	83	0.17	0.0158	-0.01	3.09

a 1986-1987の平均値, b: 個 cm⁻³, c: 代表半径(μm), d: Jungeの指数則(dN/dlogr= cr^{-β})のパラメータ

前日から13時まで下層では風が弱く200~300 mより 上空では南風が吹いていた。前線の北上により観測 点は13時頃前線の南側へ抜け,地上まで南風が卓 越したものである。粒子数濃度は13時頃までは逆転 層下にあったため,いずれの粒径の濃度も1980年~ 1987年の平均値(図1(右)中の破線)より高かった。 14時を過ぎると南よりの強風となり,特に大きい粒子 の減少が記録された。0.15 µm以上の濃度は1桁以上 減少している。この濃度は20時になると元のレベルに 戻っている。観測の最終日だったため風のデータは ないが,前線が南下しまた逆転層の下に入ったもの と思われる(図1)。

1986年12月7日も9時の天気図では関東沖に高気 圧があり、関東地方に南風が吹き込み、地形性逆転 層ができていた。関東北部にあった寒冷前線は、8日 9時の天気図では日本の東方海上へ抜けていた。風 の鉛直分布を見ると昼過ぎまで下層では風が弱く 200~300 mより上空では南風が吹いていた。14時の データでは地上から上空まで強い北風となり寒冷前 線が通過したものと思われる。粒子数濃度も逆転層 の下では高濃度だったが、寒冷前線の通過とともに 1.5桁ほど減少した(図2)。

観測期間中,逆転層が頻繁に形成されすべての 大きさの粒子が増加した。また逆転層が消滅するとき には強い風が吹いていて,比較的大きい粒子の減少 が著しかった。そこで,逆転層内の粒子濃度を一定と 仮定して地上の濃度を用い,逆転層の高さと層内の 粒子濃度の関係を調べた。その結果,比較的大きい 粒子は逆転層が高くなると粒子濃度が減少するが, 比較的小さい粒子は高度700 mまでほぼ一様な濃度 分布を持つと推定された。これは大きい粒子は一次 粒子が多いため,発生源が地表付近にあるのに対し て,小さい粒子は二次粒子が多く,生成が地表付近 に限られないためと考えられる。風速の影響として鉛 直混合を考えた場合,比較的小さい粒子の濃度は 変わらないが大きい粒子は希釈により減少するため, 風速の影響が著しいと考察している[Miura, 1990]。



図1 1986年12月10日に神楽坂で測定した風の鉛直分布 (左)と粒子数濃度(右)の日変化。右図の破線は1980年 ~1987年の平均濃度を表す。*Miura* [1990]を一部改変。



図 2 1986 年 12 月 7 日に神楽坂で測定した風の鉛直分 布(左)と粒子数濃度(右)の日変化。*Miura* [1990]を一部 改変。

2.3 2000年代の粒子数濃度

伊藤ら[2021]は神楽坂においてOPC (RION, KC01E)で測定した直径0.3, 0.5, 1, 2, 5 µm以上の個 数濃度の統計解析をした。エアロゾル粒子は湿度が 高くなると吸湿成長するため,粒径分布が変わってし まう[*Tang*, 1996;上田・三浦, 2007;岩本ら, 2018]。 そこで, 2012年からは外気を拡散ドライヤーを通過さ せることにより,相対湿度を約35%以下に乾燥させた 試料空気をOPCに導入し,粒径分布の測定を行った。 まず, 2016年 ~ 2020年の月中央値に対して自己相 関係数を求めた。その結果, 1 µmと2 µm 以上の粒 子濃度に12ヶ月の周期性が見られた。そこで, 12ヶ 月移動平均をとり,経年変化を調べた。その結果と, この期間の東京都のPM2.5の減少率[東京都環境局, 2019]を表2に示す。2011年から2017年までの減少率 は、個数の少ない5.0 µm 以上の粒径範囲を除くと、 0.3 µm以上が26 %でPM_{2.5}の24 %とほぼ同じだった が、0.5 µm ~ 2.0 µmの範囲では30 %台で少し大きか ったが、この粒径範囲では粒径による減少率の違い は顕著には見られなかった。次に2003年と2016年の 季節変化を調べたところ、最大濃度は、2003年は春 だったのに対して2016年は夏だったが、最小濃度は どちらも冬に観測された。除湿に関する測定法の違 いを考慮しても1980 ~ 1987年に観測された夏より冬 に高い濃度である傾向は変化している。原因のひと つとして、灯油ストーブから電気暖房器具に変わった ことにより冬の粒子発生量が減少したことが考えられ る。

2.4 エアロゾルの光吸収特性

大気エアロゾルの放射強制力を評価する場合,エ アロゾルの光吸収特性を知る必要がある。黒色炭素 粒子の温暖化効果は二酸化炭素に次ぐという報告も ある。エアロゾルの光吸収特性は複素屈折率の虚数 部n2で表され,n2が大きいほど光を吸収する。n2を求 める方法はいろいろあるが,直接法である光音響法 [古江ら,1998]と元素状炭素(EC)濃度から推定する 方法(質量分率法)によりn2を求め,比較検討した。 一定周波数に変調された単色光が,密閉されたセル 内の試料によって吸収されると熱が発生し,その熱は 無放射遷移過程により,試料と隣接している気体境 界層に拡散する。これにより,周期的に気体境界層 は収縮と膨張を繰り返し,音響波が生じる。この音響

表 2 2011 年から 2017 年でのエアロゾル個数濃度の減少 率。伊藤ら [2021]を一部改変。

粒径	減少率[/年]	2011-2017年の減少率
0.3µm	5.0±0.6%	26±4%
0.5µm	$7.8\pm0.8\%$	39±5%
1.0µm	$6.2 \pm 0.8\%$	32±5%
2.0µm	7.3±0.8%	36±5%
5.0µm	3.1±1.0%	17±6%
PM2.5	-	24%

波を光音響信号としてマイクロフォンで検出すると, 光音響信号のは

$$Q = Q_{\max}[1 - \exp(-\delta L)]$$
(3)

で表わされる。ここで Q_{max} は光音響信号の飽和値, δ は質量吸収係数(cm^2 /g),Lは面積質量(g/cm²)である。また, n_2 は

$$n_2 = \delta \rho \lambda \tag{4}$$

で与えられる。ここで λ は照射光の波長、 ρ は試料の 密度 (g/cm³)を表し、以下の議論では $\rho = 1.37$ と仮定 した[鈴木ら、2001]。

PM_{2.5}は振動素子式マイクロ天秤 (TEOM) (R&P, 1400a)を用いて測定した。また,直径2 μm以下の粒 子を1号館屋上(地上約60 m)にてアンダーセンサン プラーを用いて捕集した。面積質量を変数として最 小2乗法により質量吸収係数を計算するため,1日 ~ 1週間の捕集時間の試料を捕集し,2ヶ月ごとの平均



図 3 PM_{2.5}, TC, OC, EC 濃度の経年変化。鈴木ら [2001] を一部改変。





値として,可視光から近赤外400~2000 nmの波長領 域でn2を求めた。同時に,8階(地上約30 m)の窓から カーボンモニター(R&P, Ser.5400)を用いて大気中の 有機炭素粒子(OC)とECを毎月1週間程度,3時間毎 に連続測定した。OC,ECの分離燃焼温度は300 ℃ (840秒)とした。750 ℃において480秒加熱燃焼させ た炭素を全炭素(TC)とし,TC - OCをECとした[鈴木 ら,2001]。

図3にPM_{2.5}, TC, OC, ECの月平均値と標準偏差を 示す。いずれも冬季に高く, 夏季に低くなる傾向があ った。これらの原因としては, 炭素粒子の発生量と逆 転層などの気象の影響が考えられる[鈴木ら, 2001]。

全質量に対する炭素質エアロゾルの質量の割合 (質量分率)は、TCで5割、OCで3割、ECで2割程度 だった。ECの質量分率と質量吸収係数をもとにn2の 波長特性を計算し[Bergstrom, 1972]、光音響法で求 めた値と比較した。図4に500 nmの値の季節変化を 示す。測定期間は両者で若干異なるが、n2の値は良 く一致している。神楽坂におけるn2の値は0.1以上と なりYamamoto and Tanaka [1972]のシミュレーション結 果と比較すると、神楽坂で捕集したエアロゾル粒子は 温室効果を持つことが示された。

Mori *et al.* [2020]は東京本郷, 駒場で捕集した黒 色炭素(BC)の経年変化について報告している。 2003年のBC質量濃度は約2.5 µg/m³であり, 1998年 ~ 2000年のEC質量濃度[鈴木ら, 2001] と比較すると 半減している。2003年から2010年にかけて, BC濃度 は約70%, PM_{2.5}濃度は約30%減少した。一方, 2010 年以降のBC濃度はほとんど減少しなかった。 BC/PM_{2.5}質量濃度比も2003年から2010年にかけて 減少した。この理由として, BC質量濃度の減少率の 方がPM_{2.5}質量濃度の減少率よりも大きいためである。 BC/PM_{2.5}濃度比の減少は単一散乱アルベドの増加 を表し, エアロゾルの負の放射強制力に寄与すること を示している。

2.5 光学的厚さの経年変化

混濁度を気柱に対して積分したものをエアロゾル の光学的深さ(aerosol optical depth; AOD) または光 学的厚さ(aerosol optical thickness; AOT)という。光学 的厚さは太陽直達光の減衰量から求めることができ る。図5に神楽坂キャンパス1号館屋上で測定した AOT(500 nm)の1993 年からの経年変化を示す。 1993年から2005年は多目的分光放射計(オプトリサ ーチ, MSR7000), 2004年から2016年はサンフォトメ ータ(プリード, PSF-100), 2014年から2020年までは スカイラジオメータ(プリード, POM-02)を用いて観測 した。AOTは春から夏に高く、冬に低い季節変化が 見られた。1999年以降いくぶん減少傾向にあったが, 2006年を境に大きく減少している。この原因の一つと して2003年10月に始まったディーゼル排ガス規制 (新短期規制)と2006年4月に始まったディーゼル排 ガス規制(新長期規制)があげられる。





スカイラジオメータの散乱光データから気柱積算 体積粒径分布を計算し,微小モード(0.05 < r 0.54 µm)と粗大モード(0.54 < r < 7.73 µm)の総体積を算 出し月平均値の経年変化を比較した。微小モードは 春から夏に高くなり冬に低い,粗大モードでは春に高 くなりそれ以外の時期では低い季節変動が見られた。 春季には大陸から黄砂などの鉱物粒子が多く飛来, 夏季にかけて日射が強くなり光化学反応が生じて微 小粒子が生成されやすいことからこれらのような季節 変動が見られたと考えられる[齋藤ら, 2021]。

1980年以降のエアロゾル粒子の経年変化を見ると、 粒径にかかわらず減少していた。また、地上濃度の みならず、地上から上空までの気柱の総濃度、AOT も減少していた。

季節変動は1980年代は冬高く夏低いという傾向が, 2000年度は夏高く冬低いという傾向になった。これは 2.3節で述べた粒子数濃度の変動の傾向と一致した。 関東地方での冬季の高濃度は地形性逆転層ができ るときに記録されやすい。2000年代になって逆転層 の形成頻度が低くなったという報告はないため,季節 変動パターンが異なる理由の解明については今後 の課題である。

3. 東京スカイツリーにおける観測

地表付近のローカルな影響を受けにくい東京スカ イツリー(TST)においても観測を実施している。電力 中央研究所のグループは地上320 m(H320)付近に おいて,大気汚染物質などの連続観測を2013年8月 から開始した[田中ら,2017]。また,防災科学研究所, 東京理科大学,国立極地研究所のグループは地上 458 m(H458)付近において,2016年6月から共同観 測を開始した。担当項目は防災科学研究所が雨滴 の粒径分布,雲粒の粒径分布[*Misumi et al.*,2018], 東京理科大学が雲凝結核数濃度[横山,2021],エア ロゾルの粒径分布[五十嵐,2020],国立極地研究所 がフィルター捕集による氷晶核の測定[*Tobo et al.*, 2020]である。

3.1 PM2.5などの立体観測

田中ら[2017]は、2015年12月9日~10日にH320と TSTから南東方向に約300 m離れた建屋屋上(地上 約10 m)で大気汚染物質を測定した。9日午後のSO₂ 濃度はH320の方が地上より高かった。これは南風に より東京湾沿岸の火力発電所などの大規模固定煙 源や船舶の影響と考えている。また10日夜は都心付 近でPM_{2.5}濃度が90 µg/m³を超える高濃度が観測さ れたが吉門[1994]や水野ら[1993]と同様に地形性の 前線である房総前線に伴う逆転層の形成により引き 起こされたと考えられる。この高濃度の範囲は東京23 区南東部を中心として、その高さは22~23時で200 m 程度と推測している[田中ら、2017]。この高度は *Miura* [1990]によるパイロットバルーン観測による結 果を支持している。

3.2 粒子数濃度の経年変化,新粒子生成

H458において2016年6月から2018年9月まで, 走 査型移動度粒径測定器(Scanning Mobility Particle Sizer; SMPS)(TSI, model 3034)を用いて直径約10 nm ~ 470 nmの粒径分布を測定した。図6にSMPSで 測定した総粒子数濃度, 核生成モード(10.4 ~ 24.6 nm), Aitkenモード(26.4 ~ 96.5 nm), 蓄積モード (103.7 ~ 469.8 nm)の経年変化を示す。H458におい ては3年間で約3分の1に減少している。冬に数濃度 が減少し, 夏に高くなる傾向がみられた。これは, 夏



図 6 東京スカイツリー(H458)で測定した総粒子数濃 度の箱ひげ図。平均値(黒枠赤丸)と各モード(核生成 (赤),エイトケン(黄),蓄積(青)の平均値。箱ひげ図 の箱の下端が 25 パーセンタイル値,中央の線が中央 値,上端が 75 パーセンタイル値を示す。エラーバーは 10 と 90 パーセンタイル値を示す。箱の色は季節を表 す。五十嵐[2020]を一部改変。

季は南風が卓越し,船舶や工場等からの排出ガスや 粒子がTST まで輸送されやすくなるほか,境界層高 度が上昇するため,大気境界層内の影響を他の季 節に比べて受けやすいからではないかと考えられる。

新粒子生成(NPF: new particle formation)イベン トは観測期間583日中、311回と53%の割合で発生し た。日中に観測されたイベントは97%、夜間に観測さ れたイベントは全体の3%であった[五十嵐,2020]。 また、東京理科大学神楽坂キャンパスでも地上22m においてSMPSで総粒子数濃度を同期間観測してお り、その結果からNPFイベントは259日中176回と68% の割合で発生した。日中に観測されたイベントは全 体の83%、夜間に起きたイベントは全体の17%であ った。季節別にイベント発生率を見るとH458では夏 に多かったが、神楽坂では明確な違いは見られなか った。これは、神楽坂はいつも境界層内に存在する が、H458は冬季よりも夏季に境界層内に入ることが 多いためと思われる[杉本ら、2021]。

3.3 雲凝結核と吸湿パラメータ

大気エアロゾル粒子は雲凝結核 (CCN)となり雲の 放射特性と寿命を変えることで,間接的に気候へ影 響するが,科学的理解度はいまだ低い。雲凝結核カ ウンター (Cloud Condensation Nuclei Counter; CCNC) (DMT Inc., CCN-100)を用いて,H458において2016 年からCCNの測定を行った。都市大気のCCN特性と 富士山頂で測定した自由対流圏のCCN特性を比較 した。また,CCNの化学特性である吸湿パラメータ(κ) を求めた[*Petters and Kreidenweis*, 2007]。H458にお ける2018年10月から2020年12月の平均値は,設定 過飽和度0.2 %の時に N_{cen} が185.1 ± 137.7 cm⁻³,活 性比が0.12±0.08であった[横山, 2021]。

CCNの活性化は、水蒸気過飽和度が高いほど、 乾燥粒径が大きいほど、吸湿性が強いほど大きいが、 CCN活性には粒径分布が最も影響することが示され、 κの代表値を用いても雲粒数を推定できる可能性が 示された[渡辺ら、2013;前田、2019]。

H458の2018年10月から2020年12月の観測結果を

表3にまとめた。期間中のкの平均値は0.24となり,富 士山の結果より小さかった[横山, 2021]。

H458のκの日変動を季節別に図7に示す。いずれ の季節も明け方から午前中に下がり始め、日中は低 くなったが、冬は他の季節と比べて下がり始める時間 が遅くなった。TSTから北北東方向に約700 m離れた 建屋最上階(地上約10 m)で電力中央研究所が測定 したシーロメータ(VAISALA, CL-31)から推定した境 界層高度と比較すると、境界層の発達に伴いκが変 化する場合も観測され、大気境界層高度が日変動の 要因の1つであることが示唆された[横山, 2021]。境 界層高度の影響は電力中央研究所がH320において 測定したNO_x濃度において著しく、観測点が境界層 内に入ると高くなり境界層の上にあるときには低くな った。一方、SO₂ではそのような傾向は見られなかっ た[三ツ木ら, 2021]。

κのバルクの値は構成する化学組成の体積比と成 分のκから計算できる[Snider et al., 2016]。電力中央 研究所がH320で測定したPM_{2.5}の化学組成(NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺と元素状炭素,有機炭素)から求め たκ_{chem}と, H458で測定した活性度から求めたκ_{cen}の 日変動を比較すると,海塩を含まないκ_{chem}とκ_{cen}の 日変動が似ていた。このことからk_{cen}には海塩よりも他 の硝酸アンモニウム,硫酸アンモニウム,硫酸ナトリウ ム,元素状炭素,有機炭素の影響が大きいことが示 唆された[横山, 2021]。一方, OPCを用いた湿度実 験では,南風が卓越するときにκの増加が見られ,海 塩の影響と考えられた[三浦ら, 2021]。この違いは対

表3 東京	哀スカイ	ツリー	(H458)	と冨士山頂	で観測	された
κの値。	横山[20	021]を-	-部改変	0		

К	過飽和度	観測場所	観測期間	気塊の由来
0.24 ± 0.17	0.20%	TST458	2018.10~2020.12	全データ
0.33 ± 0.21	0.20%	TST458	春(同上)	全データ
0.17 ± 0.08	0.20%	TST458	夏(同上)	全データ
0.19 ± 0.15	0.20%	TST458	秋(同上)	全データ
0.25 ± 0.13	0.20%	TST458	冬 (同上)	全データ
0.45 ± 0.44	0.20%	TST458	2018.10~2020.12	自由対流圏
0.44 ± 0.39	0.20%	TST458	2018.10~2020.12	大気境界層
0.27 ± 0.13	0.24%	TST458*	2016.6	全データ
0.45 ± 0.44	0.12~0.52%	富士山頂#	2013.7~8, 2014.7~8	自由対流圏
0.44 ± 0.39	0.12~0.52%	富士山頂#	2013.7~8,2014.7~8	大気境界層

*前田[2017], *渡辺[2015]



図 7 東京スカイツリーで測定した κの季節別日変動。オレンジのマークは平均値, 箱ひげ図の箱の下端が 25 パーセンタイル値, 中央の線が中央値, 上端が 75 パーセンタイル値を示す。エラーバーは 10 と 90 パーセンタイル値を示す。 黄山[2021]を一部改変。

象としている粒径が異なるためと思われる。

防災科学研究所がフォグモニター (DMT, FM-100) で測定した雲粒数濃度とNccnを比較したところ, TST では4つの設定過飽和度 (SS = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4%)の うちSS = 0.1%の時一番よく一致した。実大気の過飽 和度が0.1%に近いことを示しており, 富士山頂の値 より小さいことを示している[大矢ら, 2021]。

東京スカイツリーの320 m, 458 mの観測結果と地上 での観測結果の比較,シーロメータにより推定した境 界層の高さとの比較など,多くの新しい知見が得られ つつある。今後,新粒子生成,成長,雲凝結核,雲 粒,氷晶核について総合的に解析し,気候影響につ いても議論したい。

4. おわりに

本稿では都心部におけるエアロゾル粒子の長期 変動について紹介した。まず、1980年以降の粒径別 粒子濃度の経年変化と季節変動の特徴を示した。さ らに濃度変動には大気境界層の構造が大きく関わっ ていることを紹介した。さらに、近年の東京スカイツリ ーにおけるエアロゾルの測定について紹介した。近年,矢吹ら[2020]は近距離・高距離分解能計測用車載ライダーを開発した。これにより,大気境界層はもとより,接地逆転層の構造も詳細に観測できる。

エアロゾルの減少はPM_{2.5}のみならず,核生成モードにおいても観測されている。これは前駆ガスの減少 によるところが多いと思われる。この減少は健康影響 を考えると喜ばしいことではあるが,善玉としてのエア ロゾル,すなわち気候への冷却効果という役割を考 えると単純に喜ぶわけにはいかない。エアロゾルを人 工的にばら撒くという方法も検討されているが,いつ, どこで,何をばらまけば良いか,副作用はないのか, 今後の検討すべき問題である[Trisos et al., 2018]。 また,エアロゾルの冷却効果は粒子の種類によって 異なるため,どのような成分のエアロゾルがどれだけ 減少しているかを把握しエアロゾルの冷却効果を予 測することで,二酸化炭素の削減などの温暖化対策 をしなくてはならない。

謝辞

東京理科大学での観測は多大に卒研生,大学院 生の協力を得た。この間,東京理科大学関川俊男教 授,中江茂教授,当時ポストドクトラル研究員の新村 典子博士・上田紗也子博士,当時助教の岩本洋子 博士・森樹大博士のお世話になった。光学的厚さの 観測には富山大学青木一真教授にお世話になった。 東京スカイツリー458 mでの観測は防災科学研究所 (三隅良平博士),国立極地研究所(當房豊博士), 東京理科大学の共同研究として行われた。東京スカ イツリーでの観測を始めるにあたり当時電力中央研 究所,現早稲田大学速水洋教授に多大なお世話に なった。この場を借りて感謝する。

本研究の一部は、科研費奨励研究(A) (57740218, 1982年度),科研費基盤研究(C) (22510019, 2010-2012年度), 科研費基盤研究(B) (19H04238, 代表 矢吹正教, 019-2021年度), 環境 研究総合推進費(5-1604,代表 長田和雄, 2016-2018年度), 東京理科大学理大研究助成(1983, 1986, 1989年度), 東京理科大学共同研究助成(代 表 中江茂, 1991-1993年度;代表 三浦和彦, 2013-2014年度),東京理科大学自然とともにある特別研 究助成(代表 三浦和彦, 2006年度), 東京理科大学 総合研究院大気科学研究部門活動費·活動補助費 (代表 三浦和彦, 2016-2020年度), 地球科学技術フ オーラム地球観測委員会ADEOS/OCTSセンサーチ ーム会議「エアロゾル観測WG」(代表太田幸雄, 1995-1997年度),千葉大学CEReS共同利用研究助 成(代表 中江茂, 1997-1998年度;代表 三浦和彦, 2018, 2020年度), 名古屋大学太陽地球環境研究所 共同利用(代表 三浦和彦, 2013 - 2015年度)の助成 により行われた。

参考文献

Bergstrom, R. W. Jr. (1972), Prediction of the spectral absorption and extinction coefficients of an urban air pollution aerosol model, *Atmos. Environ.*, 5, 247-258.

- DeMarcus, W., and Thomas, J. W. (1952), Theory of a diffusion battery. USAEC Rep. ORNL-1413, Oak Ridge National Laboratory.
- Endow, T., and Magono C. (1971), Distributions of Aerosols in Sapporo in the Winter Season, *J. met. Soc. Jpn*, 49, 48-55.
- 古江大介,中江茂,三浦和彦 (1998),対流圏エアロゾルのキ ャラクタリゼーション,第1回CEReS環境リモートセンシング シンポジュウム論文集,千葉大学,73-77
- Hayashi, M., Yokoyama, O., and Mizuno, T. (1985), Vertical distributions of aerosol particles in the mixing layer, *J. met. Soc. Jpn*, 63, 491-495.
- 五十嵐博己 (2020),山岳部と都市部における新粒子生成イ ベントおよび粒子成長に関する研究,東京理科大学理 学研究科物理学専攻2019年度修士論文, pp62.
- 伊藤佳樹, 三浦和彦, 森樹大 (2021), 都市大気におけるエ アロゾル粒子の経年変化, 大気電気学会誌, 98, 108-109.
- 岩本洋子,関根広貴,齊藤伸治,三浦和彦,西川雅高,永野 勝裕,長田和雄 (2018),光散乱式粒子計数器を用いた PM2.5吸湿特性の連続計測-2016年12月の高濃度事例を 交えて-,*エアロゾル研究*, 33(4), 238 – 247.
- Junge, C. E. (1955), The size distribution and aging of natural aerosols as determined from electrical and optical data on the atmosphere. *J. Met.*, 12, 13-25.
- 環境省 (2021), 令和元年度大気汚染物質(有害大気汚染物 質 等 を 除 く) に 係 る 常 時 監 視 測 定 結 果 , https://www.env.go.jp/air/osen/index.html
- 北川信一郎, 笠野俊一, 丹羽宣之, 高橋忠司, 三崎方郎, 児 島紘, 首藤克彦, 関川俊男, 増田純夫, 関川公成, 三浦 和彦, 栗栖俊治, 金沢五寿雄, 池上三和子, 中江茂, 角 田智良 (1983), 南関東におけるエーロゾル, ガス汚染質 の分布について, 第1回エアロゾル科学・技術討論会要 旨集, 287-289.
- Kunugi, M., Mizoguchi, T., Kanazawa, I., Hirose, K., and Dokiya, Y. (1987), Vertical distributions of suspended particles and their components as measured on a meteorological observation tower, *Atmospheric*

Environment, 21, 917-927.

- 前田麻人,三浦和彦,岩本洋子,佐藤光之介,三隅良平 (2017),東京スカイツリーにおける大気エアロゾルの雲凝 結核特性,*大気科学研究部門第1回成果報告会要旨集*, 東京理科大学総合研究院大気科学研究部門,65-66.
- 前田麻人 (2019), 2016-2018年の東京スカイツリーにおける 雲凝結核特性に関する研究,東京理科大学理学研究科 物理学専攻2018年度修士論文, pp32.
- Misumi, R., Uji, Y., Tobo, Y., Miura, K., Uetake, J., Iwamoto, Y., Maesaka, T., and Iwanami, K. (2018), Characteristics of Droplet Size Distributions in Low-Level Stratiform Clouds Observed from Tokyo Skytree, *J. Meteor. Soc. Japan*, 96, 405-413.
- 三ツ木もも、速水洋、三浦和彦、森樹大 (2021)、都市大気に おける汚染物質とその成分の鉛直分布とその要因、大気 電気学会誌、98, 112-113.
- 三浦和彦, 関川俊男 (1988), 神楽坂における大気エアロゾ ル粒子濃度の変動 – 過去5年間のまとめ, Research Letters on Atmospheric Electricity, 8(2), 63-68.
- Miura, K. (1990), The Effect of the Inversion Layer on Ambient Aerosol Particles Concentration Near the Ground Surface, J. Japan Soc. Air Pollut., 25, 386-394.
- Miura, K., and Sekikawa T. (1990), Variation of concentration of ambient aerosols in Tokyo, *Atmospheric Environment*, 24A, 1401-1407.
- 三浦嘉浩,森樹大,三浦和彦,斎藤伸治 (2021),東京にお ける大気エアロゾルの湿度特性,*大気科学研究部門第5* 回成果報告会要旨集,東京理科大学総合研究院大気 科学研究部門,112-113.
- 水野建樹,近藤裕昭,吉門洋 (1993),東京湾上を横切って 形成される局地不連続線の構造と成因についての考察, 天気,40,171-180.
- Mori, T., Ohata, S., Morino, Y., Koike, M., Moteki, N., and Kondo, Y., (2020), Changes in Black Carbon and PM_{2.5} in Tokyo in 2003–2017, *Proc. Jpn. Acad. Ser B. Phys. Biol. Sci.*, **96**, 122–129.
- 大矢哲平, 三浦和彦, 森樹大, 三隅良平 (2021), 2018-

2020年における東京スカイツリーでのエアロゾルの雲粒 特性に関する研究,大気科学研究部門第5回成果報告 会要旨集,東京理科大学総合研究院大気科学研究部 門,98-99.

- Petters, M. D., and Kreidenweis, S. M. (2007), A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(8), 1961-1971.
- Pollak, L. W. and O'Connor, T. C. (1955), Photo-electric condensation nucleus counter of high precision, *Geofis. Pure Appl.*, 32, 139-146.
- 齋藤天眞,三浦和彦,森樹大,桃井裕広,青木一真 (2021), 東京神楽坂および富士山麓で測定した気柱全体のエア ロゾルの光学特性・微物理特性,大気電気学会誌,98, 106-107.
- Sasano, Y., Shigematsu, A., Simizu, H., Takeuchi, N., and Okuda, M. (1982), On the relationship between the aerosol layer height and the mixing layer height determined by laser radar and low-level radiosonde observations, *J. met. Soc. Jpn*, 60, 889-895.
- Snider, G. et al. (2016), Variation in global chemical composition of PM_{2.5}: Emerging results from SPARTAN, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 9629-9653.
- 鈴木興司, 定岡秀典, 中江茂, 三浦和彦 (2001), 都市域に おける大気エアロゾルの光吸収特性(2), 大気電気研究, 58, 71-72.
- 杉本三咲, 森樹大, 三浦和彦 (2021), 都市部で観測された 新粒子生成イベントに関する研究, *大気科学研究部門* 第5回成果報告会要旨集, 東京理科大学総合研究院大 気科学研究部門, 106-107.
- Tang, I. N. (1996), Chemical and Size Effects of Hygroscopic Aerosols on Light Scattering Coefficients, *J. Geophys. Res.*, 101, 19245–19250.
- Tobo, Y., Uetake, J., Matsui, H., Moteki, N., Uji, Y., Iwamoto, Y., Miura, K., and Misumi, R. (2020), Seasonal trends of atmospheric ice nucleating particles over Tokyo, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 125, e2020JD033658,

https://doi.org/10.1029/2020JD033658.

東京都 (2020), 2019年度(令和元年度)大気汚染状況の測定 結果について, https://www.metro.tokyo.lg.jp/tosei/ hodohappyo/press/2020/09/02/11.html

東京都環境局 (2019), 大気中微小粒子状物質検討会報告 書 ,

https://www.kankyo.metro.tokyo.lg.jp/air/air_poll ution /torikumi/particulate matter.html.

- Trisos, C. H., Amatulli, G., Gurevitch, J., & Robock, A. (2018), Potentially dangerous consequences for biodiversity of solar geoengineering implementation and termination, *Nature ecology & evolution*, 2, doi:10.1038/s41559-017-0431-0.
- 上田紗也子,三浦和彦 (2007),都心における大気エアロゾ ル粒子の湿度特性の季節変化,大気環境学会誌,42(6), 339-349.
- 鵜野 伊津志,王 哲,弓本 桂也,板橋 秀一,長田 和雄, 入江 仁士,山本 重一,早崎 将光,菅田 誠治
 (2017), PM_{2.5}越境問題は終焉に向かっているのか?大 気環境学会誌, 52, 177-184.
- Uno, I., Wang, Z., Itahashi, S., Yumimoto, K., Yamamura, Y., Yoshino, A., Takami, A., Hayasaki M., and Kim, B. G. (2020), Paradigm Shift in Aerosol Chemical Composition over Regions Downwind of China, *Sci. Rep.*, **10**, 6450.
- 渡辺彩水 (2015),富士山頂で測定したエアロゾル雲凝結核 特性と霧粒特性,東京理科大学理学研究科物理学専攻 2014年度修士論文,pp40.
- 渡辺彩水,長谷川朋子,三浦和彦,上田紗也子 (2013),富士山頂で測定した雲凝結核,大気電気学会誌,82,116-117.
- 矢吹正教,藤井一輝,三浦和彦,速水洋 (2020), 大気エアロ ゾル立体観測のための車載ライダーの開発,第37回エア ロゾル科学・技術研究討論会プログラム要旨集, 8-9.
- Yamamoto, G., and Tanaka, M. (1972), Increase of global albedo due to air pollution. J. Atmos, Sci., 29, 1405-1412.
- 横山晶美 (2021), 東京スカイツリーで測定した都市上空の雲 凝結核特性に関する研究, 東京理科大学理学研究科物

理学専攻2020年度修士論文, pp31.

吉門洋 (1994), 初冬期に高濃度大気汚染をもたらす関東平 野のよどみ構造, 大気汚染学会誌, 29(6), 351-358.

> 原稿受領日: 2021年7月6日 掲載受理日: 2021年7月17日

著者所属

- 1. 東京理科大学 理学部
- 2. 富士山環境研究センター
- * 責任著者

Kazuhiko Miura <miura@rs.tus.ac.jp>

都市大気の数値モデルシミュレーション ~相互比較研究とモデリング研究の展開~

Numerical model simulations for urban air quality -Model inter-comparison to be better modeling performance-

山地一代1*,茶谷聡2,板橋秀一3,嶋寺光4

都市の大気化学物質を対象とした数値モデル(大気質モデル: Air Quality Models)のシミュレーション は、大気化学研究分野で利用されるだけでなく、都市域の大気環境を改善方向へ導くための環境政 策を検討する際にも、その活用が期待されている。しかしながら、大気質モデルは、大気中の物質の 振る舞いを完璧に模倣できるわけではなく、その推定値は不正確な部分を含んでいる。このため、一 種類のモデル設定に頼った場合には、極端に偏った推定値に基づき大気汚染の原因を誤って解釈 する危険性も有する。本稿では、まず、わが国の都市大気研究に広く利用されている大気質モデルの 概要について紹介し、続いて、都市域での大気汚染物質濃度の上昇をより正確に模倣できるモデル 設定を提案するために、多くのモデル研究者が参加し、進めてきたモデル間相互比較研究について 紹介する。

1. はじめに

微小粒子状物質(PM2.5)に含まれる各種化学成分 (硫酸塩(SO₄²⁻),硝酸塩(NO₃⁻),アンモニウム塩 (NH4⁺), 元素状炭素(EC), 有機エアロゾル(OA)な ど)やオキシダント(Ox)は、大気中の光化学反応や 凝集・凝縮成長などを経て生成される二次大気汚染 物質(二次物質)である。都市の大気環境問題の解 決のためには、このような二次物質の効果的な対策 が重要な課題となる。今日の都市大気汚染対策を検 討する際には、大気化学物質の排出と輸送, 地表層 への沈降に加えて, 複数の化学物質が関与する光 化学反応などを網羅できる数値モデルシミュレーショ ンへの期待がますます高まっている。しかしながら、 大気汚染物質の排出量データ(エミッション・インベン トリ: Emission inventory)や初期・境界条件として数値 モデルに与えられる入力情報に含まれる不確かさや, 数値モデル内で扱われている大気現象の不十分さ などが原因となり、PM2.5やOxの主要成分であるO3, および,これらの関連物質の大気中の濃度や分布を

モデルシミュレーションにて完璧に模倣することは、ま だまだ困難な状況である。例えば、日本と周辺地域 を対象とした大気質モデル研究では、PM2.5の総質 量をやや過小評価する傾向にあるが、NO3を大幅に 過大に、また一方で、OA を大幅に過小に推定してし まう問題のあることが知られている [例えば, Ikeda et al., 2015; Morino et al., 2015; Shimadera et al., 2016; Uno et al., 2017]。最近では、急激に進む中国の排出 規制効果が既存のエミッション・インベントリに十分に 反映されていないために, モデルが黒色炭素成分 (BC)濃度を過大評価しているとの報告もある [Kanaya et al., 2020]。他方, 地表付近の O3 濃度に 関しては,モデル推定値が夏季に大幅な過大評価 傾向となることは以前より多くの研究にて指摘されて きた [例えば, Yamaji et al., 2006; Li et al., 2007; Yamaji et al., 2008; Nagashima et al., 2010; Trieu et al., 2017]。これらの研究はそれぞれ評価対象とした期間 や地域,また,モデル入力情報などが異なるために, 各モデル推定結果の再現精度を直接比較すること

は難しい。そこで, 各モデル間の本質的な共通点と 差異を明らかにし,大気質モデル推定値の不正確な 部分についての理解を深めるために,評価対象の期 間と地域,モデル入力情報などを統一した,モデル 間相互比較研究が進められてきた。このような比較研 究をとおして, 例えば, アジア地域を対象とした国際 的なモデル間相互比較研究(Model Inter-Comparison Study for Asia (MICS-Asia) phase III)では、各モデル内で扱われている様々なメカニズ ムや与えられているパラメータの違いが地表 O3 濃度 の推定精度に影響を与えることが明らかになった[Li et al., 2019; Akimoto et al., 2019]。本稿では、わが国 の都市大気を対象とする数値モデルシミュレーション について,わが国で広く利用されている大気質モデ ルの概要を説明したあと、これまでに実施されてきた モデル間相互比較研究について紹介する。

都市大気を対象とした Air Quality Models (大気質モデル)の概要

Air quality models (大気質モデル)は、大気汚染物 質など,大気中の化学物質の振る舞いをコンピュー タ内で模倣するために,その物理的・化学的メカニズ ムを数理的に記述している。大気質モデルは,一般 的に,地球表面の状態や気象データ,さらに,化学 物質の排出量やその排出高度を入力情報として,大 気中に直接排出される一次大気汚染物質(一次物 質)に加えて、大気中にて複数の化学物質が関与す る光化学反応や凝集・凝縮成長などの結果として生 成される,ガス状および粒子状の二次物質を扱える ように設計されている。この様なモデルは、国内外に て,大気化学や大気環境の研究者のみならず,各国 の環境政策や行政機関にて広く利用されはじめてお り,大気汚染の原因因子を特定し,大気中の汚染物 質濃度の低減のための効果的な戦略の設計を支援 することが大いに期待されている。 例えば, 新たな排 出源となり得る人工物の建設が計画された場合に, この建設によって周辺地域の大気汚染物質濃度が 大気環境基準を超過することにならないかどうかを確認したり,必要に応じて適切な排出管理要件を決定したりする際に,大気質モデルは利用されてきた。さらに,大気質モデルは新しい排出規制が実施される際の大気汚染物質濃度の応答,つまり排出規制効果を予見するとともに,人類や生態系への大気汚染 暴露を低減するための排出規制の有効性の推定も可能とした。

大気質モデルは、大気中における化学物質の振 る舞いに注目した場合は、米国環境保護庁(USEPA: United States Environmental Protection Agency)の解 説 (https://www.epa.gov/scram/air-quality-models) に もあるように, Dispersion Model (大気拡散モデル), Photochemical Model (光化学モデル), Receptor Model (レセプターモデル)などに分類できる。また, Source(発生源)から化学物質濃度の時間発展を解 く方法(Forward model)と, 測定点から時間を遡って 発生源を突き止める方法(Backward model)がある。 他方,大気の流れを捉える視点の違いにより,モデ ルは、ラグランジュ的記述(Lagrangian specification) とオイラー的記述(Eulerian specification)に分類する こともある。前者では、時間とともに移動する空気塊 の軌跡に沿って各空気塊に含まれる化学物質の濃 度を計算しており,後者では,空間に固定された小 領域(グリッド: grid)で大気空間を分割し,各グリッド (格子)における化学物質の濃度変化を時々刻々と 計算している。それぞれの手法には長所と短所があ り,利用目的に応じて使い分けられているが,都市ス ケールの多種多様な大気化学物質の分布や動態を 同時に取り扱うような場合には、オイラー的記述を採 用するグリッドモデルが主流となってきている。大気 質モデルのより詳細な内容は、本号「会員からのお 知らせ」にて紹介されている、大気環境モデリング「鵜 野,2021]を参考にして頂きたい。

ここでは、わが国の都市大気モデル研究において 多数の実績を有する Community Multiscale Air Quality Model (CMAQ) [*Byun and Schere*, 2006]を例 として取り上げ,大気質モデルの概要を述べる。 CMAQは,USEPAが1998年に初回リリースしたオイ ラー型マルチスケール大気質モデルで,O₃,粒子状 物質,有害化学物質,および,それぞれの原因物質 の相互作用を扱い,これらの対流圏での振る舞いを 模倣し,大気中の濃度や沈着量を推定するソフトウェ ア(= モデル)である。CMAQは,ソースコードが完 全に公開されており,モデルユーザーが新たなモジ ュールを追加することが可能である。

図1は、CMAQ version 5.3.2 (Released in October, 2020) について、一定の時間間隔毎に出力された領 域気象モデルの推定結果を CMAQ にて利用する、 いわゆる、オフライン計算時の CMAQ 化学輸送モジ ュール(CCTM: CMAQ Chemical Transport Module)、 および、関連するインターフェイス・プロセッサ(IP: Interface Processor)、事後処理解析(Post-Processing and Analysis)ツール、および、データフローを示す。 領域気象モデルとしては、Weather Research and Forecasting(WRF) [*Skamarock et al.*, 2008]が一般的 に広く利用されている。CMAQ では、CCTM への入 力データを作成するために、CCTM の外部に IP が 備わっており、その主要なものとして、気象化学プロ セッサ (MCIP: Meteorology Chemistry Interface Processor), 側面境界条件生成プロセッサ(BCON: Boundary CONditions preprocessor), 初期条件生成 プロセッサ (ICON: Initial CONditions preprocessor)な どの IP が利用可能である。MCIP は,気象モデルの 出力結果から CCTM に必要なパラメータ(気象要素, 格子点情報,土地被覆状態など)を CCTM にて利用 可能な形式に整えている。BCON と ICON では,全 球モデル結果や観測データに基づき, CCTM で利 用する化学・エアロゾルメカニズムに応じた化学種の 入力濃度を作成している。また,繰り返し計算(restart simulation)や狭領域の入れ子計算(nesting simulation) 実行時には, BCON と ICON は, 親領域 の CCTM の出力値を用いて, 子領域の入力値を作 成する。CMAQ に備わっている,排出量作成ツール (Sparse Matrix Operator Kernel Emissions (SMOKE) model)も利用可能であるが、米国以外の地域に適用 させる場合には詳細な追加情報が必要となるため, わが国のモデルユーザーの多くは, 複数種のエミッ ション・インベントリを CCTM へ直接入力可能な形に 加工して利用している。加えて,生物起源,風送ダス ト, 波飛沫, および, 雷放電による NO の各排出量デ



図1CMAQの概要。

ータに関しては、CCTM 内にてオンライン生成可能 な実行オプションが備わっている。

CCTM では、上記の入力データをもとに、様々な 大気汚染物質とその前駆物質について排出・輸送・ 反応・沈着過程を計算し、それらの大気中の濃度や 大気からの除去量(湿性・乾性沈着量)などを出力す る。CCTM にて計算される各格子内の化学物質 c の 濃度(C_c)の時間変化は、Eq.(1)のように表される。

$$\frac{\partial C_{\rm c}}{\partial t} = Adv + Diff + R_c + E_c - L_c \tag{1}$$

 \sub{C} , Adv (advection), Diff (diffusion), R_c (chemical transformation of species, c), E_c (emissions of species, c), $L_c($ loss processes for species, c) t, \mathcal{E} れぞれ移流, 拡散, 化学的生成, 排出, 消失過程 (沈着・除去過程,化学的消失)を意味している。これ らは、CCTM を構成する各モジュールから求まる。大 気汚染物質の輸送には, 平均風の場による輸送に 関連する移流(advection)とサブグリッドスケールの乱 流混合に伴う拡散(diffusion)が含まれている。連続 の方程式の質量保存特性に支配されている移流プ ロセスは、MCIP から受け取る大気の力学・熱力学デ ータを利用する種々のメカニズムによって水平成分と 鉛直成分にて分けて導きだされる。化学物質の反応 過程においては,光化学反応を中心とする気相均一 反応,雲中の液相反応,粒子の生成・成長,および, 主に粒子表面での不均一反応による生成・消滅につ いて, 複数の異なる化学反応・エアロゾル生成メカニ ズムが実装されている。 例えば, CMAQv5.3.2 にて選 択可能な気相化学反応メカニズムは, 最新バージョ \mathcal{VO} Carbon Bond (CB) mechanism, CB6 version r3 [Yarwood et al., 2010], Statewide Air Pollution Research Center (SAPRC) mechanism, SAPRC version 07tc, および, その拡張バージョン [Carter, 2010; Xie et al., 2013], Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM), RACM version 2 [Goliff et al., 2013]である。それぞれの反応メカニズム では、O3と二次 OA(SOA)の前駆物質である揮発性

有機化合物 (VOCs: Volatile Organic Compounds)の グルーピング方法が異なる。

先に述べたように、わが国の都市大気モデル研究 では CMAQ が広く利用されているが、同一のモデル フレームを利用した場合にも、入力データの与え方 や利用するパラメータ設定など、各ユーザーのモデ ルの使い方に違いがあるため、モデル結果に差異が 生じることも懸念されている。この種の人的差異の程 度を確認することも、モデル間相互比較が担う役割 の一つであると考えている。

3. 都市大気モデリングのためのモデル間相 互比較研究

3.1 モデル間相互比較研究

複数のモデルが参加するモデル間相互比較研究 の目的は、参加モデルの個々の不正確さを共通の 物差しにて定量的に評価すると同時に,研究対象を 正確に模倣(= モデリング)できる究極の模型(= モ デル)を実現するために、全てのモデルが共通して 模倣可能な現象,全てのモデルが模倣困難な現象, さらに、モデル間で差異が生じる現象などを明確にし、 モデリングの不正確さが生じる要因を特定することで ある。大気質モデルについては、半球スケールや大 陸間規模では Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP) [例えば, Fiore et al., 2009], 複数の地域を対象とする枠組みとしては Air Quality Model Evaluation International Initiative (AQME) [例えば, Rao et al., 2011], アジア地域を 対象とする MICS-Asia [例えば, Carmichael et al., 2002, 2008; Li et al., 2019]などの国際的な枠組みに て,モデル間相互比較研究が進められてきた。

わが国の都市大気に関しては,夏季関東地域に おける O₃ と PM_{2.5} の主要成分を対象に,森野ら [2010]により,初の組織的なモデル間相互比較実験 が行われた。この相互比較実験に参加したモデルは CMAQ のみで,エミッション・インベントリなどのモデ ル入力情報を含む複数種のモデル設定が異なる4 組のグループよりモデル推定結果が提出された。全 てのモデル推定値は、O₃と PM_{2.5} 中の SO₄²⁻の濃度 を比較的よく再現していたが、ECとOAを過小評価 していた。また、PM_{2.5} 中の NO₃-濃度に関しては、モ デル推定値間に 10 倍程度のばらつきが見られた。 一次物質のモデル間差異は、モデルが利用するエミ ッション・インベントリの違いにてある程度説明できた が、モデル格子条件や入力情報などを統一していな かったために、モデル推定値間のばらつきの原因を 特定するには至らなかった。

そこで、複数の研究グループが中心となって、わが 国のエミッション・インベントリの整備やモデル検証用 の観測データの蓄積などを包括した、都市大気モデ リングのためのモデル間相互比較プロジェクトを開始 した。以下では、わが国の都市域を対象としたモデ ル間相互比較プロジェクト、Urban Air Quality Model Inter-Comparison Study (UMICS) [例えば、*Chatani et al.*, 2014; *Shimadera et al.*, 2014; *Shimadera et al.*, 2018], および, Japan's STudy for REference Air quality Modeling (J-STREAM) [例えば, *Chatani et al.*, 2018; *Itahashi et al.*, 2020; *Yamaji et al.*, 2020; *Chatani et al.*, 2020]の概要を紹介する。

3. 2 Urban Air Quality Model Inter Comparison Study: UMICS

UMICS は,環境省環境研究推進費(C-1001, 2010-2012年度)にて,関東都市部におけるPM_{2.5}に



図2 大気質モデルの計算対象領域と検証データ観測地点。

関する大気質モデルの不確実性評価と改良のため に実施されたモデル間相互比較研究である。まず UMICS では、EC を対象としたモデル間相互比較, UMICS1 [Chatani et al., 2014]を実施し、設定の異な る7種類の CMAQ と、Regional Air Quality Model (RAQM2) [Kajino et al., 2012]の合計 8 種類のモデ ル推定値が提出された。同時に、大気中化学物質の 未知過程の把握とモデル検証用データ取得を目的と した集中観測(2010 年冬季および 2021 年夏季)を関 東域(図 2)にて実施した。この集中期間を対象として 実施されたモデル比較実験、無機イオン成分を対象 とした、UMICS2 [Shimadera et al., 2014], OA を対象 とした、UMICS3 [Shimadera et al., 2018]には 6 組の モデルグループの参加があった。

UMICS1 では, 全モデルが EC 濃度を過小評価し たが, RAQM2 は CMAQ に比べて EC 濃度を高く推





定することが示された。また、エミッション・インベントリ の年次更新を伴う改良, 鉛直拡散の妥当性検証, 及 び,広域輸送の妥当性検証が,関東地域の EC 濃度 推定の主要な課題として挙げられた [Chatani et al., 2014]。UMICS2/3 では、参加モデルに M0~M5 の ID を割り当て,標準モデル(M0)と集中観測結果を 比較した上で、M0とM1~M5の差異を確かめた(図 3)。M0は, PM2.5 濃度, EC, SO42-, NH4+各成分濃度 をおおむね良好に再現したものの, NO3 濃度を著し く過大評価,他方,OA 濃度を著しく過小評価した。 参加モデルの推定値間差異は, 概ね±10%で, NO3⁻ の過大と OA の過小は全モデルに共通して見られた [Shimadera et al., 2014; Shimadera et al., 2018]。この 結果を踏まえ, 追加の感度実験を実施した結果, NO3⁻の過大評価については, HNO3-NH3 乾性沈着 速度と NH, 排出の季節プロファイルの見直しによっ て改善できる可能性を見出した。全ての推定値はとも に, SOA 濃度が一次 OA (POA) 濃度に比べてはるか に低く,また,感度実験によって, OA 濃度の VOC 排 出に対する感度が低く,一方,凝縮性粒子排出に対 して感度が高いことが判明し,既存のエミッション・イ ンベントリにおける未把握発生源からの関与が考えら れた [Shimadera et al., 2018]。UMICS 実施後, SOA を対象とする凝縮性粒子のモデル表現に関する取り 組みが精力的に推進されている [例えば, Morino et al., 2018].

3. 3 Japan's STudy for REference Air quality Modeling: J-STREAM

Japan's STudy for REference Air quality Modeling (J-STREAM)は,(独)環境再生保全機構環境研究 総合推進費(JPMEERF20165001, 2016–2018 年度) にて,わが国都市域の二次物質を対象に,規範的な 大気質モデルの確立のために実施された,全国規 模のモデル間相互比較研究である [*Chatani et al.,* 2018]。J-STREAM の位置づけを含む推進費課題 (5-1601)の概要は図4に示す。J-STREAM では,相

互比較参加者らがモデルを利用する際のモデル設 定間の違いを調査することで、各モデル内にて扱う 各種プロセスやエミッション・インベントリなどの要改 良箇所を特定し、わが国の都市大気環境の評価の ために最適なモデリング設定を提案することを目的と した。特に, PM2.5 や Ox 濃度の上昇時のモデル推定 精度の向上と有効な発生源対策への適切な情報源 となり得る信頼性の高いモデリングの提案, さらに, モ デル利用上の限界の把握に主眼をおき,大気汚染 モニタリング測定一般局(大気測定局)の観測値との 比較による季節毎のモデル推定値の再現性検証(J-STREAM Phase1) [例えば, Kitayama et al., 2018; Itahashi et al., 2018a; Itahashi et al., 2020; Yamaji et al., 2020; Chatani et al., 2020], 複数の推進費課題に て実施された集中観測との比較による高濃度の再現 性の検証(J-STREAM Phase2) [Itahashi et al., 2018b], 高濃度時を対象とした発生源感度の検証(J-STREAM Phase3)を実施した [Itahashi et al., 2019; Chatani et al., 2020]。J-STREAM は,大学や研究所



図 4 J-stream の概要。



図 5 大気質モデルの計算対象領域, 関東(a)と関西(b), および, PM₂₅成分測定を実施している大気測定局(O)。

のモデル研究者に留まらず,地方行政業務や環境コ ンサルタント業務などにて大気質モデルを利用する 多業種のモデル利用者が参加し,提出されたモデル 推定結果は最大で 45 種類(J-STREAM Phase2)に 達した。本稿では,これらの結果の一部を紹介する。

J-STREAM Phasel では, 32 種類のモデル推定結 果が提出され、全てのモデル推定値を季節毎の観測 値と比較した [例えば, Itahashi et al., 2020; Yamaji et al., 2020; Chatani et al., 2020]。図 6 は, 関西を対象 とするモデル領域内全観測地点(図 5)の PM2.5 およ びその成分濃度の日平均値を示す。モデル設定間 の明らかな違いが見つかったものの,ほとんどのモデ ル推計値は観測された PM25 濃度と比較的良い一致 を示した。特に、暖候期にどのモデルも推定精度が 良く, これは SO4²⁻や NH4⁺など PM2.5 主要成分の良 好なモデル再現性の結果であった。他方,大気質モ デルは、冬季の極端な濃度上昇時に PM2.5 濃度を過 小評価する傾向がある。これはモデルが地表面温度 をより高温に推定した結果,冬季に形成される強安 定な大気成層状態をモデルが十分に表現できない ため, 地表近くに蓄積された大気汚染物質濃度を過 小評価するという問題を示唆する。提出された複数 のモデル推計値間の比較を通して,一次物質を中心 に、エミッション・インベントリの違いが有意なモデル 間濃度差を引き起こすことが示され,この知見に基づ き,わが国のエミッション・インベントリの改良が進めら れている。また、二次物質については、各モデル設 定にて利用した化学・エアロゾルメカニズムの違いに よってモデル推定値間に差異が生じることが確認で きた。SOA に関しては, 生成収率モジュール(前駆物

質(VOCs)をグルーピングし,室内実験で測定された 収率などを基にその生成量を計算)と半揮発性有機 炭素(SVOCs: semi volatile organic compounds)の揮 発特性と酸化反応を取り入れた,揮発性基底関数 (VBS: volatility basis set) モジュールの異なる2種類 の SOA 生成モジュール間で OA 濃度の推定値が大 きく異なった。他方,生成収率モジュールにて POA のエイジングや新たに複数の SOA 生成過程を追加 することが SOA 過小評価の改善につながることが示 された [Yamaji et al., 2020]。さらに, 冬季の SO4²に 関しては、FeとMnを触媒とした溶存酸素によるSO42-液相生成モジュールの検証や NO2 による SO42-液相 生成モジュール追加が SO42のモデル再現性向上に 効果的であることが明らかになり [Itahashi et al., 2018a; Itahashi et al., 2018b], Itahashi et al. [2018a; 2018b]によって新たに作成されたモジュールも公開 されている。地表 O3 濃度に関しては, 各モデル設定 にて利用している化学メカニズムの違い(例えば、 SAPRC 99, SAPRC07tb, CB05tbc)によって, 推定濃



図6 関西を対象とする計算領域内(図5参照)のPM₂₅および 成分濃度の日平均値。濃度は観測地点(図5参照)の平均 値。カラー線はそれぞれのモデル推定値。*Yamaji et al.* [2020]をもとに作図。

度に有意な差が生まれ, 例えば, SAPRC07tb は, CB05tbcに対して3.5~5.4 ppbv, SAPRC99に対して 1.8~4.4 ppbv それぞれ高濃度となり, この傾向は海 洋上など清浄地域にて特に強く現れた [Kitayama et al., 2019]。SAPRAC 系メカニズムが, 他のメカニズム と比較して高濃度傾向に, CB 系メカニズムが低濃度 傾向になることは, Li et al. [2019]でも指摘されている。 他方, 同じ化学メカニズムを利用した場合にも, 各モ デル間での洋上でのO₃消失過程の扱われ方の違い が都市域のO₃推定値に多少の影響を与えることも確 認された [Chatani et al., 2020]。

4. おわりに

大気質モデルの各ユーザーによる設定間のばら つきと大気汚染物質濃度の推定限界を把握し、都市 域での大気汚染物質の濃度上昇をより正確に推定 できるモデル設定を提案するために,多くのモデル 研究者が参加する都市大気モデル間相互比較研究 が進められた。この比較研究を通して、エミッション・ インベントリの不正確さや気象モデルの推定値が大 気質モデルの推定精度に影響を与えることが認めら れ,現在,エミッション・インベントリの改良や気象モ デルの最適設定の調査が進められている。さらに, 各モデルにて利用されている気相化学反応やエアロ ゾル生成・成長のメカニズムの違い,さらに,各モデ ルユーザーの改良などによって、モジュール内の化 学物質の扱われ方が各モデル設定によって異なるこ とが、二次物質の濃度推定結果を左右することが示 された。これらの結果をもとに、わが国の都市大気中 の二次物質をモデルが過大もしくは過小評価する間 題を解消するために最良のモデル設定や追加モジ ュールが提案された。同時に、各大気質モデルにて 扱われていない重要なメカニズムの存在が示唆され た。これらの情報は、J-STREAM の成果公開ウェブ サイト(https://www.nies.go.jp/chiiki/jstream.html)より 利用可能である。また、本紙にて紹介できなかった J-STREAM の結果は、今後も同サイトより発信する予 定で,本稿とあわせてご活用頂きたい。

謝辞

本研究は,環境省環境研究推進費(C-1001)および (独)環境再生保全機構環境研究総合推進費 (JPMEERF20165001)にて行われました。

参考文献

- Akimoto, H. et al. (2019), Comparison of surface ozone simulation among selected regional models in MICS-Asia III - effects of chemistry and vertical transport for the causes of difference. *Atmos. Chem. Phys.*, 19(1), 603-615, doi: 10.5194/acp-19-603-2019.
- Byun, D. and Schere, K. L. (2006), Review of the Governing Equations, Computational Algorithms, and Other Components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System. *Appl. Mech. Rev.*, 59(2), 51-78, doi: 10.1115/1.2128636.
- Carmichael, G. R. et al. (2002), The MICS-Asia study: model intercomparison of long-range transport and sulfur deposition in East Asia. *Atmos. Environ.*, 36(2), 175-199, doi: 10.1016/S1352-2310(01)00448-4.
- Carmichael, G. R. et al. (2008), MICS-Asia II: The model intercomparison study for Asia Phase II methodology and overview of findings. *Atmos. Environ.*, 42(15), 3468-3490, doi: 10.1016/j.atmosenv.2007.04.00.
- Carter, W. P. L. (2010), Development of the SAPRC-07 chemical mechanism. *Atmos. Environ.*, 44(40), 5324-5335, doi: 10.1016/j.atmosenv.2010.01.026.
- Chatani, S. et al. (2014), Multi-Model Analyses of Dominant Factors Influencing Elemental Carbon in Tokyo Metropolitan Area of Japan. *Aerosol and Air Quality Research*, 14(1), 396-405, doi: 10.4209/aaqr.2013.02.0035.
- Chatani, S. et al. (2018), Overview of Model Inter-Comparison in Japan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM). *Atmosphere*, 9(1), doi: 10.3390/atmos9010019.
 Chatani, S. et al. (2020), Identifying key factors influencing

model performance on ground-level ozone over urban areas in Japan through model inter-comparisons. *Atmos. Environ.*, 223(15), doi: 10.1016/j.atmosenv.2019.117255.

- Fiore, A. M., Levy Ii, H. and Jaffe, D. A. (2011), North American isoprene influence on intercontinental ozone pollution. *Atmos. Chem. Phys.*, 11(4), 1697-1710, doi: 10.5194/acp-11-1697-2011.
- Goliff, W. S., Stockwell, W. R., and Lawson, C. V. (2013), The regional atmospheric chemistry mechanism, version 2. *Atmos. Environ.*, 68, 174-185, doi: 10.1016/j.atmosenv.2012.11.038.
- Ikeda, K. et al. (2015), Source region attribution of PM2.5 mass concentrations over Japan. *Geochem. J.*, 49(2), 185-194, doi: 10.2343/geochemj.2.0344.
- Itahashi, S. et al. (2018a), Model Performance Differences in Sulfate Aerosol in Winter over Japan Based on Regional Chemical Transport Models of CMAQ and CAMx. *Atmosphere*, 9(12), doi: 10.3390/atmos9120488.
- Itahashi, S., Yamaji, K., Chatani, S. and Hayami, H. (2018b), Refinement of Modeled Aqueous-Phase Sulfate Production via the Fe- and Mn-Catalyzed Oxidation Pathway. *Atmosphere*, 9(4), doi: 10.3390/atmos9040132.
- Itahashi, S., Yamaji, K., Chatani, S. and Hayami, H. (2019), Differences in Model Performance and Source Sensitivities for Sulfate Aerosol Resulting from Updates of the Aqueousand Gas-Phase Oxidation Pathways for a Winter Pollution Episode in Tokyo, Japan. *Atmosphere*, 10(9), doi: 10.3390/atmos10090544.
- Itahashi, S. et al. (2020), Model Performance Differences in Fine-Mode Nitrate Aerosol during Wintertime over Japan in the J-STREAM Model Inter-Comparison Study. *Atmosphere*, 11(5), doi: 10.3390/atmos11050511.
- Kajino, M. et al. (2012), Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type. *Atmos. Chem. Phys.*, 12(24), 11833-11856, doi: 10.5194/acp-12-11833-2012.

- Kanaya, Y. et al. (2020), Rapid reduction in black carbon emissions from China: evidence from 2009-2019 observations on Fukue Island, Japan. *Atmos. Chem. Phys.*, 20(11), 6339-6356, doi: 10.5194/acp-20-6339-2020.
- Kitayama, K., Morino, Y., Yamaji, K. and Chatani, S. (2019), Uncertainties in O₃ concentrations simulated by CMAQ over Japan using four chemical mechanisms. *Atmos. Environ.*, 198, 448-462, doi: 10.1016/j.atmosenv.2018.11.003.
- Li, J. et al. (2007), Modeling study of ozone seasonal cycle in lower troposphere over east Asia. J. Geophys. Res. Atmospheres, 112(D22), doi: 10.1029/2006JD008209.
- Li, J. et al. (2019), Model evaluation and intercomparison of surface-level ozone and relevant species in East Asia in the context of MICS-Asia Phase III - Part 1: Overview. *Atmos. Chem. Phys.*, 19(20), 12993-13015, doi: 10.5194/acp-19-12993-2019.
- 森野 悠 他. (2010), 大気質モデルの相互比較実験による O₃, PM_{2.5} 予測性能の評価—2007 年夏季, 関東の事例, *大 気環境学会誌*, 45, 212–226, doi: 10.11298/taiki.45.212.
- Morino, Y. et al. (2015), Verification of Chemical Transport Models for PM_{2.5} Chemical Composition Using Simultaneous Measurement Data over Japan. *Aerosol Air Qual. Res., 15*, 2009-2023, doi: 10.4209/aaqr.2015.02.0120.
- Morino, Y. et al. (2018), Contributions of Condensable Particulate Matter to Atmospheric Organic Aerosol over Japan. *Environ. Sci. Technol.*, 52(15), 8456-8466, doi: 10.1021/acs.est.8b01285.
- Nagashima, T., Ohara, T., Sudo, K. and Akimoto, H. (2010), The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(22), 11305-11322, doi: 10.5194/acp-10-11305-2010.
- Rao, S. T., Galmarini, S. and Puckett, K. (2011), Air Quality
 Model Evaluation International Initiative (AQMEII)
 Advancing the State of the Science in Regional
 Photochemical Modeling and Its Applications. *Bull. Am. Meteorol.* Soc., 92(1), 23-30, doi:

10.1175/2010BAMS3069.1.

- Shimadera, H. et al. (2014), Sensitivity analyses of factors influencing CMAQ performance for fine particulate nitrate. *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 64(4), 374-387, doi: 10.1080/10962247.2013.778919.
- Shimadera, H., Kojima, T. and Kondo, A. (2016), Evaluation of Air Quality Model Performance for Simulating Long-Range Transport and Local Pollution of PM_{2.5} in Japan. Adv. Meteorol., 1-13, doi: 10.1155/2016/5694251.
- Shimadera, H. et al. (2018), Urban Air Quality Model Inter-Comparison Study (UMICS) for Improvement of PM2.5 Simulation in Greater Tokyo Area of Japan. *Asian J. Atmos. Environ.*, 12(2), 139-152, doi: 10.5572/ajae.2018.12.2.139.
- Skamarock, W. C. et al. (2008), A Description of the Advanced Research WRF Version 3. University Corporation for Atmospheric Research, doi: 10.5065/D68S4MVH.
- Trieu, T. T. N. et al. (2017), Evaluation of summertime surface ozone in Kanto area of Japan using a semi-regional model and observation. *Atmos. Environ.*, 153, 163-181, doi: 10.1016/j.atmosenv.2017.01.030.
- 鵜野伊津志,弓本桂也,板橋秀一 (2021),大気環境モデリ ング.森北出版
- Uno, I. et al. (2017), Seasonal variation of fine- and coarse-mode nitrates and related aerosols over East Asia: synergetic observations and chemical transport model analysis. *Atmos. Chem. Phys.*, 17(23), 14181-14197, doi: 10.5194/acp-17-14181-2017.
- Xie, Y. et al. (2013), Understanding the impact of recent advances in isoprene photooxidation on simulations of regional air quality. *Atmos. Chem. Phys.*, 13(16), 8439-8455, doi: 10.5194/acp-13-8439-2013.
- Yamaji, K. et al. (2006), Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan? *Atmos. Environ.*, 40(10), 1856-1868, doi: 10.1016/j.atmosenv.2005.10.067.

Yamaji, K. et al. (2008), Future prediction of surface ozone over

east Asia using Models-3 Community Multiscale Air Quality Modeling System and Regional Emission Inventory in Asia. J. Geophys. Res. Atmospheres, 113(D8), doi: 10.1029/2007JD008663

- Yamaji, K. et al. (2020), Model Inter-Comparison for PM2.5 Components over urban Areas in Japan in the J-STREAM Framework. *Atmosphere*, 11(3), doi: 10.3390/atmos11030222.
- Yarwood, G., Jung, J., Whitten, G. Z., Heo, G. and Estes, M. (2010), Updates to the Carbon Bond Mechanism for Version 6 (CB6), in: 9th Annual CMAS Conference, 1–4.

原稿受領日: 2021 年 7 月 2 日 掲載受理日: 2021 年 7 月 14 日

著者所属:

- 1. 神戸大学大学院 海事科学研究科
- 2. 国立環境研究所 地域環境保全領域
- 3. 電力中央研究所 サステナブルシステム研究本部
- 4. 大阪大学大学院 工学研究科
- * 責任著者:

Kazuyo Yamaji <kazuyo@maritime.kobe-u.ac.jp>

『大気環境モデリング』刊行について

鵜野伊津志1*

【書籍名】 大気環境モデリング 鵜野伊津志編著,弓本桂也・板橋秀一共著 ISBN:978-4-627-29101-0 森北出版株式会社(本体 6,200 円)

大気環境・大気汚染解析の研究において化学輸 送モデルは不可欠な解析ツールである。その利用は 大気汚染の現状把握,メカニズム解明,将来予測, 政策評価など広範囲に渡っており,高度な化学輸送 モデルがオープンソースソフトとして公開され,計算 機性能の進展で誰でも自由に利用できるようになっ てきた。正しく使わなければ,"Garbage–In Garbage– Out"になりかねないが,モデルの物理・化学・数値計 算法・応用例を網羅した日本語の分かりやすいテキ ストがこれまでなかった。本書は 30 年以上のモデル 研究の経験を有し,大気環境モデルの開発・応用・ 教育を進めてきた著者らが分担して執筆している。

本書は、モデリングの基礎から計算技術、モデル を使った応用例まで段階を追って学べるように3部で 構成されている。各章の内容は下図の通りである。ま ず、第 I 部では、モデル研究に必要な大気化学・大 気物理と大気モデリングの基礎を概説している。第 II 部は化学輸送モデルを使った数値計算に際して知 っておくべき基本的な計算手法、化学輸送モデルを 構成する発生・輸送・反応・沈着過程などのサブモデ





ルについて説明されている。第 III 部は応用編であり, アジアスケールの大気環境の解析例,黄砂モデルの 詳細と応用例,データ同化の構成と化学輸送モデル への応用例が記載されている。第 III 部では,第 I, II 部で記載されたモデルの数理が具体的にどのように 活用されるかが理解出来る。

読者層は大気化学・気象学の基礎を学んだ学部 後半・大学院生を対象としたが、大気環境モデリング が扱うべき内容は非常に広範囲で、限られたページ 数のなかで、説明の不十分な部分や応用の具体例 の数などに制限があった。また、練習問題などを含め る余裕も取れなかった。これらについては読者の意 見をもとに修正の機会を考えたい。より入門レベルの 本として、多くの演習を含めた『はじめての大気環境 モデリング』もあって良いかと思案している。是非、読 者諸氏の貴重なご意見を賜りたい。

本書は大気環境モデリングの講義テキストや自習 書などに多くの活用が可能である。本書を通じてモ デリングの理解が深まり、この分野の研究者の増加・ 発展につながることを期待したい。

1. 九州大学応用力学研究所

* Itsushi Uno <uno@riam.kyushu-u.ac.jp>

第26回大気化学討論会のお知らせ

竹谷文一1*, 岩本洋子2, 内田里沙3, 石戸谷重之4, 坂本陽介5

第 26 回大気化学討論会は, 2021 年 11 月 9 日 (火)~11日(木)に昨年度と同様にオンライン形式で 開催いたします。現地開催を模索しましたが, 新型コ ロナウイルス感染拡大防止の観点から, 海洋研究開 発機構が LOC として, オンライン形式での開催とさせ ていただくことになりました。

- 主催:日本大気化学会,名古屋大学宇宙地球環境研究所(ISEE)
- 共催:海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表 層システム研究センター
- 日程: 2021 年 11 月 9 日(火)~11 日(木), 3 日間 終日(予定)

懇親会:オンライン形式にて会期中に開催予定

発表・参加申込: 下記のURL(第26回大気化学討 論会 Web サイト)より受付開始後に内容をご確認の 上,講演申込・参加登録をお願いします。

https://jpsac.org/symposium/26th_touronkai_2021

講演・参加申込受付開始: 8月23日(予定) 講演申込・予稿原稿送付〆切: 9月24日(予定) 講演プログラム発表: 10月11日(予定) 参加申し込み最終〆切: 10月29日(予定)

- *1 ×切等の日程が変更になる場合は大会 Web ページにて随時お知らせいたしますので,最新 の情報は大会 Web ページをご確認下さい。
- *2 参加費は日本大気化学会の会員の方は無料と する予定ですが,非会員の方は参加費を徴収 する可能性があることを予めご了承下さい。



現地開催ではありませんが、オンラインでも臨場感 のある雰囲気を提供したいと思っています。

*3 オンライン大会ツールのアカウント発行等の準 備の都合上,当日参加は受け付けません。必ず 事前の参加申込をお願いいたします。

第 26 回大気化学討論会は,昨年に引き続き 「Slack」と「Zoom」を併用したオンライン形式で開催 の予定です。出張の手間なく効率的に多くの方と研 究交流ができる良い面が活かされるようにしたいと思 います。また,口頭発表に加えて,各ポスター発表で も zoom を利用することにより,インタラクティブな議論 をしていただけるような仕組みを検討しています。皆 様の積極的なご参加をお待ちしております。

問合せ先:

- 〒236-0001 神奈川県横浜市金沢区昭和町 3173-25
 海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層
 システム研究センター
 第 26 回大気化学討論会事務局
 E-mail: jpsac.meeting2021@gmail.com
- 大会実行委員(LOC): 竹谷文一(主担当)・金谷有 剛・宮川拓真・関谷高志・滝川雅之・Prabir

Patra・朱春茂・伊藤彰記・川名華織・木名瀬健・ 栗栖美菜子(海洋研究開発機構)・関本奏子 (横浜市立大学),関山剛(気象研究所) プログラム委員:岩本洋子(広島大学,主担当)・ 内田里沙(日本自動車研究所)・石戸谷重之(産

業技術総合研究所)•坂本陽介(京都大学)

著者所属:

- 1. 海洋研究開発機構
- 2. 広島大学
- 3. 日本自動車研究所
- 4. 産業技術総合研究所
- 5. 京都大学

* 責任著者:

Fumikazu Taketani <taketani@jamstec.go.jp>

2021年度日本大気化学会奨励賞の候補者募集

日本大気化学会では下記の通り第17回(2021年度) 奨励賞の募集を行います。皆様からの推薦(自薦, 他薦を問いません)をお願い致します。日本大気化 学会事務局までメール(jpsac-post@bunken.co.jp)ま たは郵便でお送り願います。

募集要項

- 選考対象は大気化学の分野で優れた研究を行っ た本会会員(学生会員を含む)で,原則として 2021年4月1日現在で満39歳以下または学位 取得後10年未満の者。(※応募回数に制限はあ りません。過去の業績ばかりでなく将来性も含め て選考を行いますので、学生を含めた若い世代 からの応募も歓迎いたします。)
- 2. 推薦資料は下記の事務局宛にメールまたは郵便 で提出。
 - 〒162-0801

東京都新宿区山吹町 358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局宛

e-mail: jpsac-post@bunken.co.jp

- 1. 推薦資料は次の 5 つの項目を含んだ A4 用紙と する(メールの場合, pdf ファイルーつにまとめて パスワードをかけたものを添付し, 別メールでパス ワードを送る)。
 - (1) 会員番号
 - (2) 略歴(年齢や推薦対象研究の実施との対応 が分かる程度の学歴・職歴など)
 - (3) 推薦対象とする研究課題名(和文と英文の両 方を記載)
 - (4) 推薦理由(和文または英文。和文の場合1200 字程度,英文の場合600 words 程度)
 - (5) 業績リスト(3ページ以内) 項目は論文(査読の有無を付記),学会発表 (国際・国内に分類し,口頭・ポスター・招待講演

を付記),著書,外部資金獲得状況,その他特記 事項とする。

4. 推薦資料提出の締め切りは <u>2021 年 7 月 31日</u>。 注)

- ・ 選考の段階で, 選考委員会から追加資料の提出を 求められた場合には, その指示に従って下さい。
- ・提出された資料は返却致しません。
- ・資料は奨励賞の選考以外には使用致しません。

過去の受賞者および大気化学会奨励賞に関する細 則については、日本大気化学会 HP 内の記事 https://jpsac.org/news/post_4047/ をご参照ください。

> 日本大気化学会 表彰委員長 宮崎 雄三

(日本大気化学会 運営委員会)

第 25 回大気化学討論会報告

齋藤尚子1*,入江仁士1

第25回大気化学討論会は、千葉大学環境リモー トセンシング研究センター(CEReS)が担当し、2020 年11月11日(水)~13日(金)にオンライン形式で 開催されました。当初の予定では、千葉大学の大学 会館であるけやき会館(大ホール、レセプションホー ル)での開催を計画していましたが、新型コロナウイ ルス感染拡大防止の観点から、やむなく討論会初の 試みであるオンライン形式での開催となりました。

これまでしばしば温泉地で開催され、参加者が夜 遅くまで議論し交流する大気化学討論会の「三密」な 雰囲気をオンライン形式でいかにして「再現」するか という点について検討を重ね、大会のオンラインシス テムとして「Slack」を採用し、大会参加者全員を大会 の Slack システムにメンバー登録し、ポスター発表は Slack のポスター専用チャンネルで、口頭発表や会 員集会は Slack の専用チャンネルから「Zoom」に参 加する形式で進めることとしました(写真1)。参加者



写真1 第 25 回大気化学討論会の「Slack」のオンライン 大会システム。

には Slack システムで表示される各自のプロフィール 画像として「参加証」を配布し、「参加証」の色で一般 (青色)と学生(緑色)が容易に区別できるなどの工夫 をしました。また、コーヒーブレーク時の参加者同士 の会話を再現するため、「Slack コール」という15人以 下のオンライン通話システムを利用し、参加者同士が オンライン上で交流し、インタラクティブな議論ができ るようにしました。

大会の数か月前に通常のオンサイト開催からオン ライン開催に切り替えたため、当初は例年より発表件 数や参加者が減るのではないかと予想していました が、例年並みか例年以上の 172 名(うち学生 40 名) の参加申し込みがありました。発表件数もロ頭発表 37 件(ロング 25 分発表 12 件、ショート 15 分発表 25 件)、ポスター発表 32 件と、ロ頭発表の申し込み件 数が例年より多かったこともあり、例年は 2 日半の会 期を 3 日間にして開催しました。

コロナ禍ですでに多くの方がオンライン形式での 学会に参加した経験をお持ちであったこともあり, Zoom による口頭発表も大きなトラブルなく順調に進 行し,通常のオンサイト大会と変わらない活発な質疑 が行われていました。また、ポスターは Slack システム 上に常時掲示されており、参加者はチャットでいつで も自由に発表者に質問ができるため,どの発表に対 しても活発な質疑のやり取りが行われていました。今 大会の特別セッションとして千葉大学環境リモートセ ンシング研究センターの市井和仁教授に「ボトムアッ プ・トップダウン手法による陸域物質循環モニタリング」 と題した招待講演を行っていただきましたが、50分の 時間枠を超過するほど参加者から多くの質問が寄せ られ, 講演後も Slack 上で参加者との質疑のチャット が続くなど、Slack システムの利点が大いに活かされ ました。

懇親会,会員集会および奨励賞メダル授与式・受 賞記念講演,学生優秀賞の表彰・閉会式もすべてオ ンライン形式となりましたが、「エア授与式」や「オンラ インじゃんけん大会」などなるべく「臨場感」を醸し出 す工夫がなされました(写真 2,3)。今回の討論会で は 4 名の方が学生優秀賞に選ばれました。おめでと うございます。



写真 2 奨励賞の「エア授与式」。谷本会長(左)と受賞 者のお一人である朱春茂さん(右)。



写真 3 閉会式での学生優秀賞のオンライン表彰式の 様子。谷本会長(右上)と4名の受賞者の学生さんたち。

大会終了後にオンラインで実施した任意のアンケ ート調査では、回答に協力して下さった参加者(87 名)の多くが今回の大会に満足しているようでした(図 1)。一方で、今後の大会の在り方として従来の対面 形式での議論や交流を望む声やオンサイトとオンライ ンのハイブリッド形式を期待する声もありました(図 2, 3)。オンライン大会には出張の手間なく効率的に多く の方と研究交流ができるプラスの面があるものの、オ ンサイト大会の臨場感や議論・交流のしやすさをいか に再現するかについてはさらなる工夫が必要だと思 います。



図1. アンケート調査結果(大会満足度)。



最後に、今大会の開催にあたり、日本大気化学会 運営委員の皆様、特にプログラム委員の皆様に多大 なるご協力をいただきました。また、講演要旨集の作 成および郵送、大会システムの使用料に名古屋大学 ISEE の共同利用・共同研究の公募による補助金を 使用させていただきました。ここに厚くお礼申し上げ ます。

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)

著者所属:

1. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター

* 責任著者

Naoko Saitoh <nsaitoh@faculty.chiba-u.jp>

JpGU 2021「大気化学」セッション開催報告

中山智喜1*,齋藤尚子2,内田里沙3,豊田栄4,坂本陽介5,江口菜穂6

1. JpGU 2021「大気化学セッション」

日本地球惑星科学連合 (JpGU) 2021 年大会 (JpGU Meeting 2021)は、2021 年5月30日から6 月6日に、オンライン形式で開催されました。大気化 学セッションには、48件の投稿があり、6月6日に口 頭セッション4コマ(1コマ90分)および、ポスターセ ッションのコアタイム1コマが開催されました。

オンライン学会は Confit を用いて行われ, 口頭発 表セッションは Confit から Zoom に移動する形で行 われました。口頭発表セッションには 70 名以上の参 加がありました。関連研究分野で精力的に研究を進 められている 2 名の研究者による招待講演を実施し ました。野村大樹博士(北海道大学)には,「雪氷-大 気間の物質輸送に関する研究:北極海長期漂流観 測より」, 羽島知洋博士(海洋研究開発機構)には, 「生態系-大気化学相互作用と地球システムモデル」 というタイトルでご講演頂きました。また,ポスターセッ ションのコアタイムでは, Confit 上でのコメント機能を 用いた議論に加え, Zoom のブレークアウトルームを 利用して直接質疑が行われました。

2. オンライン懇親会

学生の皆さんとの交流会を兼ねて、日本大気化 学会および JpGU「大気化学セッション」のオン ライン懇親会を、6月6日の夕方から開催しまし た。30名程度(うち、学生9名程度)の参加があ りました。Zoomのブレークアウトルーム機能を 用いて4つのグループに分かれ、20分程度毎にメ ンバーを入れ替えながら歓談しました。学生から 研究者に大学院進学や海外での研究生活につい て質問したり、研究者から学生に今回の会議に参 加した感想や大学生活について質問したりする など,親睦を深めました。懇親会終了後の二次会 では学生のみのグループを作り歓談する機会も 設けました。他大学の学生と交流するよい機会に なったようでした。

当セッションおよび懇親会にご参加頂いた皆 様,開催にご協力頂いた皆様に深く感謝申し上げ ます。来年度は、幕張での開催が予定されていま す。来年度の大気化学セッションにも投稿頂けま すよう,よろしくお願いいたします。



図1 Confit 内の大気化学セッションの画面。



図2 オンライン懇親会の様子。

著者所属

- 1. 長崎大学 水産·環境科学総合研究科
- 2. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
- 3. 一般財団法人 日本自動車研究所
- 4. 東京工業大学 物質理工学院
- 5. 京都大学 大学院人間·環境学研究科
- 6. 九州大学 応用力学研究所
- * 責任著者

Tomoki Nakayama <t-nakayama @nagasaki-u.ac.jp>

日本大気化学会会員集会プログラム

日時:2021年6月6日(日) 12:15-12:50 ※ 場所:Web 会議による開催

- 1) 谷本会長より挨拶
- 2) 会員報告、会計報告
- 3) JpGU 大気化学セッションの開催状況
- 4) 第26回大気化学討論会開催について
- 5) 奨励賞の募集について
- 6) 大気化学研究誌について
- 7) 「大気化学の将来構想」について
- 8) 第12期日本大気化学会役員選挙について
- 9) 第11期運営委員より会員皆様へ
- 10) その他

※ JpGU2021 大気化学セッション開催日に合わ せ、日曜日の実施となりましたため、録画の閲覧 も可能とし、2021 年 6 月 8 日 (火) 12:15-12:45 に もご質問・ご意見いただく時間を持ちました。

(日本大気化学会 運営委員会)

1

第12期日本大気化学会役員選挙の結果について

1. 役員選挙について

日本大気化学会の選挙細則に基づき,第 12 期 (大気化学研究会からの期)運営委員会役員選挙を インターネット投票により実施した。

2021年4月15日 選挙告示

2021 年 4 月 30 日~5 月 12 日 会長選挙投票

2021年5月17日 会長当選者の公表

2021年5月24日~6月1日

会長以外の運営委員選挙の投票 2021年6月4日 運営委員当選者の公表

2. 開票

立会人:

選挙管理委員:竹川暢之,森本真司,齋藤尚子 インターネット投票準備委員:内田里沙,森本真司 立会方法:

投票システム上で立会人が独立に集計結果を確 認後,電子メール合議記録をもって立会いとした。 会長選挙開票の立会日時:

2021年5月13日 9:00-12:00

会長選挙の投票内訳:

有権者数 224 人

投票者数 143 人 (投票率 63.8%) 投票総数 143 人×1 票 = 143 票

白票 5 票

運営委員選挙開票の立会日時:

2021 年 6 月 2 日 10:00-15:00 運営委員選挙の投票内訳:

有権者数 224 人 投票者数 133 人 (投票率 59.4%) 投票総数 133 人×5 票 = 665 票

白票·未使用票 21 票

3. 当選者

会長 金谷 有剛 (海洋研究開発機構) 運営委員 (10 名, 50 音順) 入江 仁士 (千葉大学) 岩本 洋子 (広島大学) 内田 里沙 (日本自動車研究所) 加藤 俊吾 (東京都立大学) 齋藤 尚子 (千葉大学) 関山 剛 (気象研究所) 竹川 暢之 (東京都立大学) 竹谷 文一 (海洋研究開発機構) 宮崎 雄三 (北海道大学) 山地 一代 (神戸大学)

投票結果を受け,選挙管理委員長代理 (森本 真 司)から当選者の役員就任意思確認を実施した。

4. 結果報告

2021年5月17日 会長当選者の公表2021年6月4日 運営委員当選者の公表

日本大気化学会 選挙管理委員会 竹川 暢之 (委員長), 森本 真司, 齋藤 尚子 インターネット投票準備委員 内田 里沙, 森本 真司

(日本大気化学会 運営委員会)

第19-20回日本大気化学会運営委員会議事録

第19回日本大気化学会運営委員会

(大気化学研究会より通算 50 回)

日時:2021年 1月 8日(金)13:30~15:30

場所:WEB 会議による開催

出席者:谷本浩志,金谷有剛,内田里沙(途中まで), 江口菜穂(途中まで),齋藤尚子(途中まで),関山剛, 豊田栄(途中から),中山智喜,永島達也,山地一代, 廣川淳,竹川暢之

欠席者:森本真司

谷本会長より, コロナの状況は引き続き見通せな いため, 本年も新しいやり方も取り入れ学会の活動 維持を目指したい旨, 挨拶があった。引き続き, 以下 の報告・審議を行った。

1) 役員選挙の実施方式について

竹川選挙管理委員長より資料に基づいて説明が あった。選挙のオンライン化まで確定させ 2020 年 11 月の会員集会でも周知してきたが、その後、実行の 段階に入ってから、運用上の問題(現行の細則通り の選挙が難しい)が発覚した。具体的には、現行の 細則にある、会長への投票が次点以下だった場合に 運営委員への投票へ読み替える方式が、最終候補 となっている複数のオンライン選挙業者ではいずれ の場合でも、票の紐づけが困難なため実現できない 点である。この問題を克服する方法として2つの案の 提案があった。

第1の方法では、会長と運営委員を同時期の1度 の選挙で選出するが、同一者を会長と運営委員の投 票用紙に記載可とする。第2の方法では、まず会長 のみ選挙し、その結果を明らかにしたのちに、改めて 2回目の選挙で運営委員を選出する。いずれも前回 までのやり方と近い部分、異なる部分があり、理解が 難しい。また、いずれの場合でも細則の改訂が必要 となる点が確認され、丁寧に会員に原案を提示し意 見収集するのが望ましいという点で一致した。さらに、 第3の方法として、従前の紙による投票に戻し既存の ルールで実施することも含め、議論した。

まず、これまでの方式での票の読み替えについて も,会長票が有効となった・ならないによって,有効と なる運営委員への投票数が変化し,必ずしも公平で はなかった点にも留意すべきとの意見があった。第1 の方法については、1 度の選挙で済む反面、同一者 を会長と運営委員の投票用紙に記載可とする点は一 般の選挙では馴染みがなく,補足説明が選挙のたび に必要となりうること,同一者へ投票した場合には死 票が発生する点が課題であるとの議論があった。第2 の方法については、そのような不完全性は排除でき るが、2回に分けて選挙を長期間かけて実施すること による弊害(投票率低下など)や,制度の大幅な変更 との疑念を抱かれる点が懸念された。費用面につい ては、オンラインで実施すれば2回に分けての選挙 でも大幅な支出増とはならない点が確認された。第3 の方法については, IT 化の世の中の流れや, コロナ 影響下での選挙管理委員の開票負担なども考えれ ば今後も長く支持し続けるのは難しいとの議論があっ た。

これらの議論を経て、運営委員会の中では意見の 過半数が案2に収斂し、原案とすることとなった。この 方式と必要な細則の変更について、また、他の方式 との比較について、会員向けに2回のオンライン説明 会で丁寧に説明し、疑問点に答えてゆくこととした。 その説明会の議論の結果も踏まえ、運営委員会(メ ール審議)にて細則変更を決定し、3 月以降の選挙 へ臨むこととした。

2) JpGU2021 について

中山委員から資料の提示と説明があった。オンサ

イトとオンラインのハイブリッド開催の予定となっており、大気化学セッションは 6/6 の 4 コマが仮配分されたことなどが報告された。招待講演者の候補者に関する議論があった。

3) 第26回大気化学討論会準備状況について

第25回大気化学討論会のLOCも務めた齋藤委 員より、オンライン開催に関するアンケートの結果が 紹介され、総じて好印象を持った会員が多かったこと が共有された。子育てなどで普段出席が難しい人も 出席しやすいとの意見があった。状況は変化してい るが、現段階でオンサイト開催を決めるのは難しいた め、オンライン開催としてゆく方向で一致した。選挙 を挟み期が代わるため難しいが、当面、幹事会で引 き取って動き出し、年度内を目途に日付や担当者を 絞り、JpGU前の運営委員会では案を確定して、会員 集会でアナウンスできるようにするスケジュール観が 共有された。

4) その他

2020 年 9 月にマンチェスターで実施される予定だ った, IGAC Science Conference の延期状況について, 谷本会長から情報提供があった。2021 年 9 月にひと まずオンラインで会議を実施する。その際, LOC は無 しで, IGAC の公式アクティビティや WG 単位でのセ ッション開催を, SSC メンバーが主体となり企画する 予定である。

以上

第20回日本大気化学会運営委員会

(大気化学研究会より通算 51 回)
日時:2021 年 5 月 27 日(木)10:30~12:30
場所:WEB 会議による開催
出席者:谷本浩志,金谷有剛,内田里沙,江口菜穂, 齋藤尚子,関山剛,竹川暢之,豊田栄,中山智喜, 永島達也,山地一代,廣川淳,森本真司,竹谷文一 (討論会 LOC) **欠席者:**なし

谷本会長より、今期の運営委員会も終わりに近い が、JpGU でのセッションや次期への引継ぎなどに万 全を期すべしとの挨拶があった。引き続き、以下の報 告・審議を行った。

1) 第26回大気化学討論会の開催について

LOC を務める竹谷会員(海洋研究開発機構)から, 開催概要の説明があった。引き続きコロナ収束状況 が見通せないことから、オンラインでの開催とし、前回 好評だった zoom と slack の併用を基本線とする計画 である。会期については、11 月 8 日の週の 3 日間と し、次期運営委員の都合なども加味して 7 月上旬に は決定し、会員に告知することとした。例年通り、名 古屋大学宇宙地球環境研究所の共同利用研究集 会としても位置付け、アブストラクトの印刷・発送等に 充てる計画とした。前回 LOC の千葉大学より、運営 上の要点を申し送ることとした。

2) 会員·会計報告

関山会計・会員幹事より、令和3年5月17日現在 の会員情報が報告された(令和3年度正会員227名, 学生31名, 賛助会員5社)。会費未払い者や過去を 含む学生の動向確認を強化した結果, 退会者の確 認が進み会員数は減少したが, 会費の未払い問題 は徐々に解消しつつある。一方で, 外国滞在者の支 払い方法の確保については今後の課題である。会計 に関しては、令和2年度の決算報告書について説明 があり、町田監事から監査報告を受けたことが示され た。繰越金の増がみられたが, その理由は, コロナ影 響により, 使途として計画していた IGAC2020 集会へ の若手派遣旅費が発生しなかったことなどであるとの 説明があった。令和3年度には、オンライン選挙費用 や男女共同参画学協会のオブザーバ参加費が支出 として加わる予定である。今後の有効な使途につい ては次期運営委員会で議論すべきであるが,若手支援の研究費補助, JpGU で募っている寄付への参加, 国際学会への出展,会議資料等をアップできるサー バレンタル費用などに充てる可能性についての議論 があった。

3) JpGU2021 大気化学セッションについて

中山委員から資料をもとに説明があった。大気化 学セッションでは6月6日の口頭4コマと夕方にポス ター発表が実施されることが確認された。若手のポス ター発表等での質疑応答を活発にするための議論 がなされた。昼に会員集会,夜に学生との交流会・懇 親会が zoom で開催される点が確認された。

4) 選挙の運営状況について

竹川選挙管理委員長より状況の報告があった。第 12期の本会役員選挙をオンラインで初めて実施して いる。細則の変更などを伴ったが、大きな問題なく進 んでいる。投票率向上のためにはリマインドの効果が 高いことが示された。例年、JpGU 時期の会員集会で、 次期の運営委員メンバーと体制が示されてきたが、 今回は後日メールで会員に周知することとなった。会 員への選挙に関するメール連絡が不達となったケー スがあったことを受け、会員アドレス管理を強化する 方向が確認された。

5) 会員集会予定

6月6日の大気化学セッション日の昼に開催される 会員集会の内容と資料の準備について確認された。 今回,日曜日の開催となるため,後日の会員集会の 再開催について議論があったが,6月6日の会員集 会のビデオ録画を会員に周知し,質疑があれば6月 8日にオンラインで受け付けることとした。

6) その他

6月末前後に, 次期への引継ぎのための運営委員 会を開催する予定。 以上

(日本大気化学会 運営委員会)

編集後記

大気化学研究第45号が当初の予定通り、7月中に発刊となりました。ご多忙の中、当方からの原稿依頼に応じて頂いた著 者の皆様、そして短い査読期間であったにも関わらず詳細なコメントを頂いた査読者の皆様に心より感謝申し上げます。今号 では、「都市大気の大気化学」をテーマに、温室効果気体観測からOHラジカル反応性研究、エアロゾル観測、そして大気化 学モデル比較実験まで、計4編の総説記事をご寄稿頂きました。都市大気の大気化学は古くからのテーマですが、現在でも 精力的に新しい研究が進められていることが今号の総説記事から伺えます。読者の皆様が専門とされる分野およびその周辺 の分野について、現在の研究動向を概観する一助となれば幸いです。

さて、私事ですが、運営委員の任期満了のため、今号をもって本誌の編集から離れることになります。本誌の編集を担当さ せて頂いた4年間に、数多くの会員の皆様に快く記事の執筆と査読を引き受けて頂き、あらためて感謝いたします。至らぬ点 (や編集ミス)も多々ありましたが、どうかご容赦頂けると幸いです。次号からは新しい編集委員会によって大気化学研究誌が 編集・発行されます。本誌が、引き続き学会員の皆様の情報発信と情報交換の場として有効に活用されることを願っておりま す。(MO)

大気化学研究 第45号 (2021年7月23日 発行)

編集兼発行:日本大気化学会 編集委員:森本真司(共同編集長),山地一代(共同編集長),竹谷文一,宮崎雄三 連絡先:〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局 電話:03-5389-6237 FAX:03-3368-2822 電子メール:jpsac-post@bunken.co.jp ホームページ:https://jpsac.org/publications/aacr/

《本誌掲載著作物の転載を希望される方へ》 本誌に掲載された著作物を転載される場合は、上記までご連絡ください。無断での二次使用や勝手 な加工はお控えください。