

第 26 回大気化学討論会 講演要旨集

The 26th Symposium on Atmospheric Chemistry

Book of Abstracts

November 9 – 11, 2021

(オンライン開催)

主催：名古屋大学 宇宙地球環境研究所・日本大気化学会
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・横浜市立大学

Co-organized by

Institute for Space–Earth Environmental Research, Nagoya Univ.

The Japan Society of Atmospheric Chemistry

Earth Surface System Research Center, RIGC, JAMSTEC

Yokohama City University

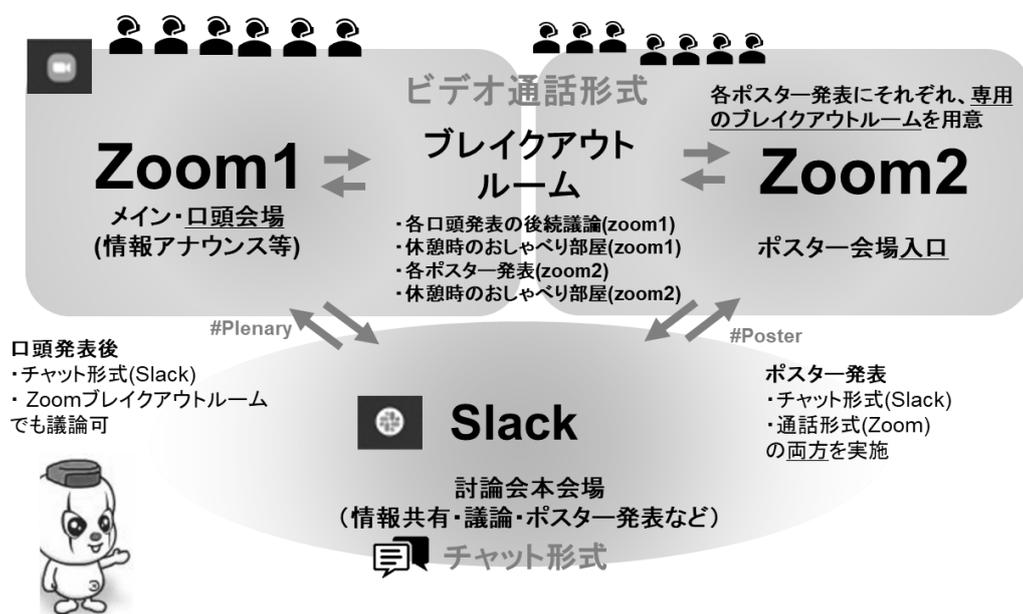
第 26 回大気化学討論会

会期：2021年11月9日(火)～11日(木)

会場：SlackとZoomによるオンライン形式

懇親会：Zoomによるオンライン形式(11月10日 18:30 - 20:30)

Slack をベースに 2 つの Zoom(口頭発表用メイン会場(Zoom1)とポスター発表用会場(Zoom2))を利用し実施します。



大会実行委員：

竹谷文一(主担当)、金谷有剛、宮川拓真、関谷高志、滝川雅之、Prabir K. 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)

〒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

Email: jpsac.meeting2021@gmail.com

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)

発表について

口頭発表: (@Zoom1 および Slack)

Zoom によるオンライン形式で実施します。発表後にも Slack 上でチャットによる質問に加え、ブレイクアウトルームによる議論を行えるようにします。

講演時間は以下の通りです。

ショート: 15 分(発表 10 分+質疑応答 5 分) / 8、10、15 分で鐘がなります

ロング: 25 分(発表 18 分+質疑応答 7 分) / 15、18、25 分で鐘がなります

口頭発表時の質問は Zoom の「リアクション」ボタンにある「手を上げる」を押してください。

ポスター発表: (@Zoom2 および Slack)

初日(11/9)と 2 日目(11/10)の 2 回行います。Slack 上の指定されたスレッドにポスターを掲示したチャットによる議論に加え、用意された Zoom のブレイクアウトルームで発表者が画面を共有し、聴講者と直接話をしながら議論を行います。ポスターの形式は自由ですが、(口頭発表のような)スライド形式で作成されると説明がしやすいかと思われま。また、初日(11/9)に 1 分ポスター紹介を行います。

11 月 9 日(火) 13:10 – 15:10

13:10 – 13:50 1 分ポスター紹介

13:50 – 14:30 奇数番号の発表を中心に実施

14:30 – 15:10 偶数番号の発表を中心に実施

11 月 10 日(水) 14:35 – 15:55

14:35 – 15:15 奇数番号の発表を中心に実施

15:15 – 15:55 偶数番号の発表を中心に実施

ナイトセッション: (@Zoom1)

今年度の討論会では初日にナイトセッション(11/9 19:00 - 20:30)を実施します(自由参加方式)。直前の特別セッション(大気化学の将来構想)の議論の続きを中心テーマとします。内容や在り方まで、感想や意見を自由に交換し、議論を深めたいと考えています。若手からシニアまで広くお気軽にお集まりください。お酒も飲みながらざっくばらんに進める想定です。特定話題にはブレイクアウトも使えます。

第26回大気化学討論会(2021)口頭発表プログラム

1日目:11月09日(火)

時間	講演番号 (★:学生)	発表形態	タイトル	発表者	座長	
9:30	9:45	開会挨拶・LOCアナウンス				
口頭発表①: 成層圏大気/短寿命成分 (@Zoom1)						
9:45	10:00	O1-01	ショート	陸別・昭和基地FTIRによるHFC-23, HCFC-22の観測	中島 英彰 国立環境研究所	永島 達也 (国立環境研究所)
10:00	10:15	★O1-02	ショート	近年の全球オゾン全量トレンド解析	鈴木 湧平 東北大学大学院 理学研究科	
10:15	10:30	★O1-03	ショート	対流圏オゾンの三酸素同位体組成を指標に用いた成層圏からのオゾン流入定量	許 昊 名古屋大学 環境 学研究科	
10:30	10:45	O1-04	ショート	モデルを用いた日本域におけるオゾン季節変動の将来変化	河野 なつ美 国立環境研究所	
10:45	11:00	休憩(15分)				
口頭発表②: 短寿命成分 (@Zoom1)						
11:00	11:15	★O1-05	ショート	西部北太平洋域における対流圏オゾン濃度の年々変動について	森脇 哲人 神戸大学大学院	中村 綾乃 (情報通信研究機構)
11:15	11:30	O1-06	ショート	熱帯西部太平洋域における大気中のヨウ素の動態観測	高島 久洋 福岡大学	
11:30	11:45	★O1-07	ショート	4方位角MAXDOASを利用したTROPOMI対流圏NO ₂ カラム濃度データの検証と補正	齊藤 輝 千葉大学 環境リモ ートセンシング研究 センター	
11:45	12:00	★O1-08	ショート	MOPITTとNICAM-TMの比較に基づくCO濃度および排出インベントリの評価研究	宮島 宏 千葉大学 環境リモ ートセンシング研究 センター	
12:00	13:10	昼休憩(70分)				
ポスターセッション① (@Zoom2 and Slack)						
13:10	13:50	※ポスター概要紹介(1分/1件)				石戸谷 重之 (産業技術総合研究所)
13:50	15:10	ポスター発表(前半40分奇数番号・後半40分偶数番号を中心に発表)				
15:10	15:20	休憩(10分)				
特別セッション: 大気化学の将来構想 (@Zoom1)						
15:20	15:30	S1-01	ショート	大気化学の将来構想2022-32へ向けて: 概要とセッション趣旨	金谷 有剛 海洋研究開発機構	持田 陸宏 (名古屋大学 宇宙 地球環境研究所)
15:30	15:55	S1-02L	ロング	大気化学の将来構想: 温室効果気体とオゾン層破壊物質	梅澤 拓 国立環境研究所	
15:55	16:20	S1-03L	ロング	大気化学の将来構想: 大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	金谷 有剛 海洋研究開発機構	
16:20	16:35	休憩(15分)				
16:35	17:00	S1-04L	ロング	大気化学の将来構想: 未来の大気化学のための室内実験	江波 進一 国立環境研究所	金谷 有剛 (海洋研究開発機構)
17:00	17:25	S1-05L	ロング	大気化学の将来構想: 陸域生態系と大気化学	持田 陸宏 名古屋大学 宇宙 地球環境研究所	
17:25	17:50	S1-06L	ロング	大気化学の将来構想: 人新世における海洋エアロゾル・生物の気候フィードバック	伊藤 彰記 海洋研究開発機構	
17:50	17:55	-	-	全体コメント	-	
17:55	18:00	1日目終了・LOCアナウンス				
19:00	20:30	ナイトセッション (@Zoom1)				

第26回大気化学討論会(2021)口頭発表プログラム

2日目:11月10日(水)

時間	講演番号 (★:学生)	発表形態	タイトル	発表者	座長	
9:00	9:05	LOCアナウンス				
口頭発表③: 装置・手法開発 (@Zoom1)						
9:05	9:20	O2-01	ショート	画像解析によるエアロゾル濃度推定アルゴリズム	佐藤 知紘 情報通信研究機構	中山 智喜 (長崎大学)
9:20	9:35	★O2-02	ショート	マルチスペクトルカメラ(MSC)による大気中水蒸気の2次元空間分布の高速推定	西脇 郁弥 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター	
9:35	9:50	O2-03	ショート	超小型衛星用の高分解能分子評価分光器(MAHOS)の開発	中川 真秀 情報通信研究機構	
9:50	10:05	★O2-04	ショート	大気中微量水素の安定同位体比測定法開発	杉本 颯馬 東京工業大学 物質理工学院	
10:05	10:20	O2-05	ショート	Single-Particle Extinction and Scattering法を用いたサブミクロン鉍物ダスト粒子の検出	吉田 淳 国立極地研究所	
10:20	10:35	休憩(15分)				
口頭発表④: エアロゾル (@Zoom1)						
10:35	10:50	O2-06	ショート	SPES法に基づく名古屋都市大気の水溶性エアロゾルの観測	大畑 祥 名古屋大学 宇宙地球環境研究所	栗栖 美菜子 (海洋研究開発機構)
10:50	11:05	O2-07	ショート	微量元素含有エアロゾルの高時間分解能観測と個別粒子解析	木名瀬 健 海洋研究開発機構	
11:05	11:20	★O2-08	ショート	多数の小型センサを用いた長崎「精霊流し」行事における爆竹起源PM _{2.5} の時空間変動の計測	鐘ヶ江 健太 長崎大学大学院 水産・環境科学総合研究科	
11:20	11:45	★O2-09L	ロング	再解析エアロゾルデータの精度検証に基づくインドシナ半島の光散乱/吸収AODの時空間変動	大野 健 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター	
11:45	12:00	★O2-10	ショート	都市域豪雨事例に注目した大気汚染物質が雲微物理過程および化学特性に及ぼす影響の推定	梶川 友貴 筑波大学	
12:00	13:10	昼休憩(70分)				
日本大気化学会 会員集会・奨励賞記念講演等 (@Zoom1)						
13:10	14:30	会員集会・奨励賞授与式・記念講演				
14:30	14:35	休憩(5分)				
ポスターセッション② (@Zoom2 and Slack)						
14:35	15:55	ポスター発表(前半40分奇数番号・後半40分偶数番号を中心に発表)				
15:55	16:05	休憩(10分)				
口頭発表⑤: 化学反応過程 (@Zoom1)						
16:05	16:20	★O2-11	ショート	C2クリーギー中間体が関与する大気反応過程の研究(2)	川越 博之 北海道大学大学院 環境科学院	藪下 彰啓 (九州大学)
16:20	16:45	O2-12L	ロング	大気化学モデルを用いた大気酸化反応系でのOH反応性予測における準揮発性有機化合物の不均一消失の影響	坂本 陽介 京都大学	
16:45	17:10	O2-13L	ロング	How do missing OH reactivity and heterogeneous HO ₂ /RO ₂ radicals loss affect ozone production during the 2020 AQUAS (Air QUALity Study) Kyoto campaign?	Jiaru Li 京都大学大学院 地球環境学堂	
17:10	17:15	2日目終了・LOCアナウンス				
17:15	18:30	(各自、懇親会のための夕食やお飲み物をご準備ください)				
18:30	20:30	懇親会(会場は別途連絡)				

第26回大気化学討論会(2021)口頭発表プログラム

3日目:11月11日(木)

時間	講演番号	発表形態	タイトル	発表者	座長	
9:00	9:05	LOCアナウンス				
口頭発表⑥: 温室効果気体/数値モデル (@Zoom1)						
9:05	9:20	O3-01	ショート	地上観測データによる国内メタン濃度の経年変化	速水 洋 早稲田大学	笹川 基樹 (国立環境研究所)
9:20	9:35	O3-02	ショート	CH ₄ surface flux estimation using local ensemble transform Kalman filter	Jagat Bisht 海洋研究開発機構	
9:35	9:50	O3-03	ショート	衛星観測を用いた領域二酸化炭素収支推定	眞木 貴史 気象研究所	
9:50	10:15	O3-04L	ロング	質量比混合法で調製された標準ガスはどこまで信頼できるのか?	青木 伸行 産業技術総合研究所	
10:15	10:30	休憩(15分)				
口頭発表⑦: 温室効果気体/数値モデル/COVID-19の大気環境影響評価 (@Zoom1)						
10:30	10:45	O3-05	ショート	GOSAT-GW衛星による温室効果ガス及び大気汚染物質の観測	谷本 浩志 国立環境研究所	山地 一代 (神戸大学)
10:45	11:00	O3-06	ショート	GOSAT-GW衛星観測をサポートするための輸送モデル開発状況	山下 陽介 国立環境研究所	
11:00	11:15	O3-07	ショート	三酸素同位体組成($\Delta^{17}O$)を用いた化学輸送モデル内の硫酸エアロゾル生成過程の検証と改良	板橋 秀一 電力中央研究所	
11:15	11:30	O3-08	ショート	Examining air quality change during COVID-19 lockdown period in Delhi	Joseph Ching 気象研究所	
11:30	11:45	O3-09	ショート	新型コロナウイルス蔓延期間における全球NO _x ・SO ₂ 排出量減少が二次生成無機エアロゾル分布に与えた影響	関谷 高志 海洋研究開発機構	
11:45	11:50	LOCアナウンス				
11:50	12:05	閉会式・学生優秀賞の発表・表彰 (@Zoom1)				

第26回大気化学討論会（2021）ポスター発表プログラム

ポスター番号 (★:学生)	発表タイトル	発表者	所属
P-01	ISS搭載の超高感度リモ放射サウンダSMILESによる中間圏放電現象化学の観測	山田 崇貴	情報通信研究機構
★P-02	GOSAT/TANSO-FTSによる成層圏オゾン濃度観測可能性の評価 -2011年北極オゾン減少-	関 英人	千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
P-03	大気ポテンシャル酸素の季節変動に対する南北半球間大気輸送の影響	石戸谷 重之	産業技術総合研究所
P-04	与那国島で観測されたCO ₂ はCOVID-19の影響を捉えることができたか？	遠嶋 康徳	国立環境研究所
P-05	連続観測で得られた南鳥島における大気中二酸化炭素濃度およびその安定同位体比の変動	村山 昌平	産業技術総合研究所
P-06	WRF/Chemを用いた"full-chemistry"モデルの開発:VPRMモデルによる森林起源CO ₂ エミッションの検証	滝川 雅之	海洋研究開発機構
P-07	NISMON-CO ₂ の逆解析における任意緯度経度格子での最適化	丹羽 洋介	国立環境研究所
P-08	全球メタン濃度の2020年の急増加の原因を探る-NIES観測ネットワークによるメタン濃度の時空間変動の解析-	梅澤 拓	国立環境研究所
P-09	タグ付きトレーサーモデルを用いた東アジアにおける人為起源メタン排出量の検証	池田 恒平	国立環境研究所
★P-10	大気境界層の水蒸気観測を利用した局地数値予報モデルの精度評価	亀井 敬介	千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
P-11	大気モニタリングに向けたVOCの測定及び校正システムの開発	斉藤 拓也	国立環境研究所
P-12	地上高分解能FTIRによる太陽光吸収スペクトルからのイソプレンカラム量解析手法の研究	長濱 智生	名古屋大学 宇宙地球環境研究所
★P-13	モノテルペンのオゾン分解からの二次有機エアロゾル生成機構の研究	山本 慎尋	北海道大学大学院 環境科学院
P-14	trans-3-hexeneのオゾン反応におけるsCl捕獲剤の添加効果	内田 里沙	日本自動車研究所
P-15	二酸化炭素分離・回収技術に使用されるエタノールアミンとオゾンの水溶液中での反応速度	藪下 彰啓	九州大学
★P-16	気体NO ₂ と凍結したKI水溶液の不均一反応	上田 哲也	九州大学大学院 総合理工学府

第26回大気化学討論会（2021）ポスター発表プログラム

ポスター番号 (★:学生)	発表タイトル	発表者	所属
P-17	衛星データを用いた船舶NO ₂ の検出	中村 綾乃	情報通信研究機構
P-18	富士山での火山性ガス監視システムの構築	加藤 俊吾	東京都立大学
P-19	夏の所沢における PANs 全量とオゾンの連続観測と 相関解析	松本 淳	早稲田大学
P-20	東京における光化学オキシダント生成過程の把握に 向けた 集中観測の計画	猪俣 敏	国立環境研究所
P-21	Light absorbing organic aerosols at Fukue Island: comparison of filter observation and remote sensing	朱 春茂	海洋研究開発機構
P-22	ICP-MS/MSを用いた大気試料の測定	岩山 直樹	株式会社静環検査センター 大 気環境イノベーションセンター
★P-23	SPES法に基づく非水溶性エアロゾルのオフライン分 析法の評価	川中子 ひかる	名古屋大学大学院 環境学研 究科
★P-24	福江島と名古屋の大気エアロゾルの化学組成と活性 酸素産生能力	小野 詩織	名古屋大学大学院 環境学研 究科
P-25	ヘリコプターを利用した富山県上空の過酸化水素お よびホルムアルデヒド濃度の測定	渡辺 幸一	富山県立大学
P-26	COVID-19による東京近郊の大気汚染への影響評価	藤縄 環	国立環境研究所
★P-27	日本4地点における地上リモートセンシングで得られ たエアロゾル光学特性による地表付近PM _{2.5} 、BC濃 度の変動解析	海塚 収英	千葉大学 環境リモートセン シング研究センター
P-28	北インドにおける低コストで自動データ転送する小型 大気観測装置の30個の展開:Aakashプロジェクト	松見 豊	名古屋大学 宇宙地球環境研 究所
P-29	COALA-2020観測においてオーストラリアで採取した 大気エアロゾル試料の化学分析	持田 陸宏	名古屋大学 宇宙地球環境研 究所
P-30	海洋地球研究船「みらい」による 広域の海洋大気微 小エアロゾル観測	宮川 拓真	海洋研究開発機構
P-31	海洋表層の基礎生産力への大気物質の影響:現場 観測による湿性沈着の効果検証	竹谷 文一	海洋研究開発機構

口頭発表 要旨

陸別・昭和基地FTIRによるHFC-23, HCFC-22の観測

武田真憲¹, *中島英彰^{2,1}, 村田 功¹, 長濱智生³, 森野勇², G. C. Toon⁴

1:東北大学院環境, 2:国立環境研, 3:名古屋大学ISEE, 4:NASA/JPL

1. はじめに

1980年代の南極オゾンホール発見以降、科学者の集約的な研究によって、人為起源のフロン (CFC: Chloro-Fluoro Carbons) が成層圏オゾン層破壊の原因であることが突き止められ、1987年には「オゾン層を破壊する物質に関するモントリオール議定書」が締結され、特定フロン類の削減スケジュールが制定された。その中で、オゾン層破壊能力の強いCFCは、よりオゾン層を破壊しないHCFCやHFCへと徐々に切り替わりつつある。ところが、これらのHFCの中には地球温暖化係数が大きなものも含まれており、気候変動対策の観点からもその削減と世界的な分布のモニタリングが求められている。本研究では、地上設置フーリエ変換赤外分光計 (FTIR) 観測データからHFC-23の解析方法を世界に先駆けて開発し、その手法を北海道陸別及び昭和基地におけるFTIR観測データに適用してその経年変化を求めた。またHCFC-22についても解析し、HFC-23との関連について解析を行った。

2. FTIRスペクトルからのHFC-23の解析

HFC-23は、特定フロンの代替物質であるHCFC-22の製造過程で数%の割合で放出される副生産物である。CO₂の12,690倍の温室効果を持つ長寿命物質である。大気中には2020年段階で約30 pptvしか存在しない微量成分であり、従来はGC/MSなどの分析器でないと測定することができなかった。本研究では1150 cm⁻¹付近の中間赤外領域にあるHFC-23の吸収線をFTIR分光データから解析することにより、HFC-23の気柱全量の導出を行った。HFC-23の吸収パラメータは、Harrison (2013, JQSRT)らの実験データをもとにToonが作成した疑似ラインパラメータを用いた。FTIRスペクトルの解析には、SFIT4と呼ばれる解析プログラムを用いた。解析対象マイクロウィンドウ内に弱い吸収線を持つH₂O, HDO, CH₄に関しては、それぞれ825, 1209, 1202 cm⁻¹付近の別の

領域で解いたプロファイルを用い、CH₄に関しては値も固定して解析を行った。図1にこのようにしてFTIR分光データから得られた陸別(緑)、昭和基地(青)におけるHFC-23の経年変化を、AGAGEのCape Grim (赤)、Trinidad Head (橙)の値と比較してプロットしている。FTIRの値の方が、数%低く導出されているが、増加トレンドは同様の値が求められていることがわかる。

3. FTIRスペクトルからのHCFC-22の解析

HFC-23との関連を解析するため、FTIR分光データからHCFC-22の解析も行った。解析には、Prognon et al. (2019, ACP)と同じ波数領域 (828.75-829.40 cm⁻¹)を用いた。HFC-23の解析の時と同じく、Tikhonov regularizationの手法を用い、 α の値としては50を用いた。図2にこのようにしてFTIR分光データから得られた陸別(緑)、昭和基地(青)におけるHFC-23の経年変化を、AGAGEのMace Head(黒)、Cape Grim(灰色)の値と比較してプロットしている。陸別の値はMace Headの値と、昭和基地の値はCape Grimの値とよく一致しており、南北両半球の増加傾向の遅延(数年)を表しているものと考えられる。

4. HFC-23とHCFC-22の相関解析

今回解析されたデータのうち、陸別におけるHFC-23とHCFC-22のデータには、中国国内におけるHCFC-22の製造に伴う放出が相当の割合で含まれていると考えられる。そこで、1998-2009年の陸別での観測があった日時から10日間の後方粒跡線解析を行い、空気塊が中国由来であるデータに対して、HFC-23とHCFC-22の相関を取ってみた。その結果、2000年のHFC-23とHCFC-22の観測値の間に、有意な正の相関関係が得られた。この相関の傾きは 0.12 ± 0.04 であり、相関係数 $R=0.45$, $P=7.35e-03$ であった。これから見積もられたHFC-23の排出量は 0.83 ± 0.28 Gg/yであり、この値はSimmonds et al. (2018, ACP)の報告値(2.83 Gg/y)の約1/3の値であった。

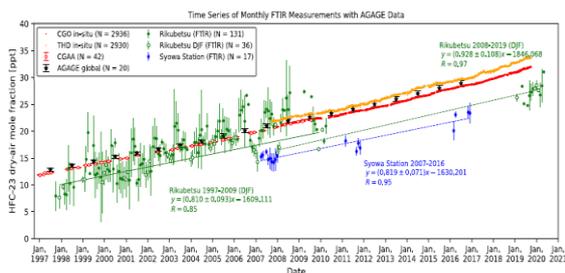


図1 FTIRとAGAGEによるHFC-23の経年トレンド

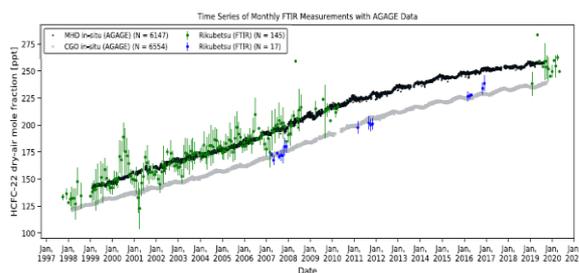


図2 FTIRとAGAGEによるHCFC-22の経年トレンド

近年の全球オゾン全量トレンド解析

*鈴木湧平¹, 村田功^{2,1}

1:東北大学大学院理学研究科, 2:東北大学大学院環境科学研究科

1. はじめに

オゾン全量は、自然要因(太陽11年周期、QBOなど)と人為起源の要因(オゾン破壊物質の排出)といった様々な要因によって変動する。極域以外のオゾン全量トレンドは、2000年以降不安定で多くの緯度帯で有意でないことが知られている。

我々のつくばでのフーリエ変換型赤外分光計(FTIR)観測によるオゾンの2014-2020年の経年変化を3高度域毎に調べたところ、全量も含めていずれも減少傾向を示した。さらに、気象庁がつくばで観測しているオゾン全量でも、同じ期間に減少傾向が確認された。本研究では、ここ数年のオゾンの減少が、他の地点ではどうなのかを明らかにすることを目的として、世界各地のオゾン全量のデータを解析した。

2. データと解析方法

本研究では、World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre (WOUDC)にある世界各地のオゾン全量のデータを使用した。様々な緯度帯で欠測期間の少ない地点を計43地点選び、2000年以降の約20年間のトレンドについて、最小二乗法を用いて解析した。経年変化部分は直線で、季節変動は2分の1年周期まで考慮し、フィッティングさせた。なお、今回は太陽11年周期やQBOなどの変動はフィッティングしていない。トレンドについて、95%信頼区間を用いて統計的に有意かどうか調べた。2015年前後からの減少傾向を調べるため、20年間を2期間に分けて解析した。2期間の境界を2011-2018年で1年ずつずらすことで、傾向が変わる年を特定した。例えば、2014年で区切った場合、2000-2013年が前半、2014-2021年が後半となる。また、トレンドの変化時期の確認のため、4年毎の増加率(%/yr)の経年変化も調べた。本研究では、ある年の1月1日を中心に前後2年、合計4年分のデータにフィッティングした増加率をその年の増加率とした。

3. 解析結果

図1に、つくばの20年間のトレンド解析例を示す。ここでは、フィッティングした残差の標準偏差が一番小さい2014年で区切った例を示している。つくばでは2014年以降有意な減少傾向であることがわかった。同様の解析を世界各地のデータで行った。一番有意な減少地点の多い2018年以降の全球オゾン全量トレンドの世界地図を図2に示す。概ね低緯度地域を除いて、

有意な減少傾向の地点が多い特徴がみられた。なお、2014年で区切った場合、南緯30度以南で有意な増加傾向の地点が多く、南緯30度以北では有意な減少傾向の地点が計18点と多かった。

さらに、増加率の経年変化については、特に、2019年(2017-2020年)に有意な減少傾向の地点が北半球中緯度のアジアとヨーロッパ、南半球中緯度のオセアニア、南半球高緯度の南極で多かった。

講演では、オゾンゾンデを用いた減少高度の特定についても報告する。

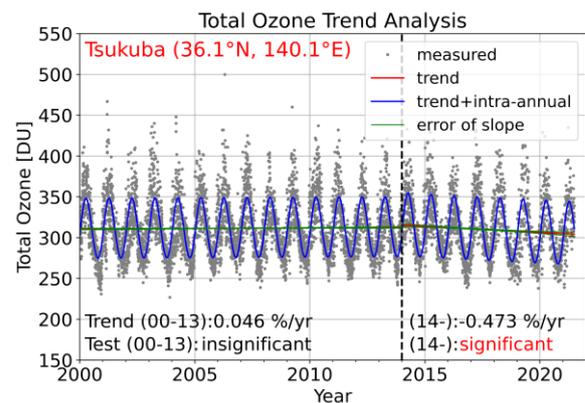


図1 オゾン全量の経年変化とフィッティング例(つくば)

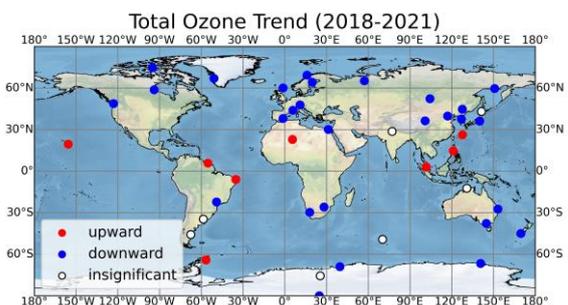


図2 2018年以降の全球オゾン全量トレンド

参考文献

WMO (World Meteorological Organization) (2018), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2018, Global Ozone Research and Monitoring Project Report No. 58, 588 pp., Geneva, Switzerland.

対流圏オゾンの三酸素同位体組成を指標に用いた 成層圏からのオゾン流入定量

*許昊¹, 角皆潤¹, 中川書子¹, 李一君¹, 佐藤啓市², 谷本浩志³

1:名大院環境, 2:アジア大気汚染研究センター, 3:国立環境研究所

はじめに

対流圏オゾン (O_3) は、温室効果に寄与すると共に、強力な酸化物質として、人間の呼吸機能や植物の光合成活性に直接有害な影響を与える可能性もある。さらに、光化学反応過程で重要な役割を担う。対流圏の大気環境や温暖化の抑制を考える上で、 O_3 の起源や対流圏内における挙動の把握は極めて重要である。そこで本研究は、フィルターパックを用いた O_3 捕集方法を改良し、対流圏 O_3 の三酸素同位体異常 ($\Delta^{17}O = (1+\delta^{17}O)/(1+\delta^{18}O)^\beta - 1$; $\beta = 0.5279$) を測定した。また $\Delta^{17}O$ と大気ベリリウム-7 (${}^7\text{Be}$) の相関を利用して、成層圏 O_3 の対流圏への流入量を定量した。

観測・分析

2017年9月から月1回の頻度で名古屋大学構内と新潟巻において大気試料を捕集した。捕集方法は、 NaNO_2 を含浸させた多段フィルターに大気試料を通過させ、 O_3 を NO_2 と速やかに反応させて NO_3^- 化し、生成した NO_3^- の酸素同位体組成から O_3 の酸素同位体組成を求めた (Xu et al., 2021)。大気 HNO_3 は NaNO_2 含浸フィルターの前にナイロンフィルターを設置し、除去した。また、高精度分析に十分な捕集量を確保するため、吸引流量は 5 L/min に設定した。フィルター上に捕集した NO_3^- は超純水で抽出した。一緒に抽出された未反応の NO_2 はアジ化水素 (N_3H) を添加することで、選択的に N_2O 化して除去した ($\text{HNO}_2 + \text{N}_3\text{H} \rightarrow \text{N}_2\text{O} + \text{H}_2\text{O} + \text{N}_2$)。その上で、Chemical conversion 法を用いて、 NO_3^- を N_2O に変換し、他成分と分離・精製した上で、Au 触媒で分解して O_2 化し、連続フロー型の同位体質量分析計 (MAT252) に導入して、 $\Delta^{17}O$ 値を測定した。この NO_3^- の酸素同位体組成から、 NO_2 由来の O 原子の寄与やフィルターブランクを補正することで、 O_3 の酸素同位体組成を求めた。なお、本手法で定量される酸素同位体組成は、 O_3 分子中の全 O 原子の平均同位体組成 ($\Delta^{17}O(\text{O}_3)_{\text{bulk}}$) ではなく、三原子分子である O_3 の外側に位置する O 原子の同位体組成 ($\Delta^{17}O(\text{O}_3)_{\text{terminal}}$) である。対流圏大気中の ${}^7\text{Be}$ 濃度 (2ヶ月1回) は原子力規制庁の公開データを利用した。

結果・考察

名古屋の $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値は+35.4‰から+42.1‰に分布し、平均は+37.5 ± 1.4‰であった。また新潟の $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値は+34.3‰から+41.4‰に分布し、平均は+37.0 ± 1.6‰であった。これは過去に報告された対流圏 O_3 の $\Delta^{17}O$ 値 (+36.1 ± 7.9‰) と概ね一致した。名古屋では昼夜別の O_3 捕集を実施したが、昼間の $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値は夜間に比べて平均 1.3‰高い $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値を示した。これは、夜間は地表面付近の高圧下で生成した、低 $\Delta^{17}O$ 値を特徴とする O_3 が主に滞留しているのに対し、昼間は上層の低圧下で生成した高 $\Delta^{17}O$ 値を特徴とする O_3 が鉛直混合により下層へ運ばれることを反映したものと考えられる。また、観測期間中の $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値の時間変化を見ると、4月に最も高い $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値を示した。これは、成層圏あるいは対流圏上層の高い $\Delta^{17}O$ 値を持つ O_3 の流入の影響を反映している可能性が高い。

さらに、 $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値は ${}^7\text{Be}$ 濃度の逆数との間に明瞭な直線関係 ($r^2 = 0.56$; $p < 0.01$) を示すことが明らかになった。この直線関係から外挿した低濃度側の対流圏バックグラウンド (${}^7\text{Be} = 1.3 \pm 0.5 \text{ mBq/m}^3$) の $\Delta^{17}O(\text{O}_3)$ 値 (+35.1 ± 1.9‰) は地表付近の高圧下で生成した O_3 の $\Delta^{17}O$ 値と考えられる。成層圏 O_3 の $\Delta^{17}O$ 値を+51.2 ± 5.2‰ (Krankowsky et al., 2007) と仮定すると、各観測期間について成層圏 O_3 の寄与率 f を求めることができる。その結果、名古屋の f 値は 0.7 ± 9.8% から 43.2 ± 10.3% の間に、また新潟の f 値は -4.9 ± 9.2% から 25.4 ± 8.1% の間に分布し、平均は 14.8 ± 8.8% (名古屋) および 11.6 ± 10.2% (新潟) となった。また、 f 値の季節変化に着目すると、春季に最も高く (名古屋: 19.6 ± 9.8%; 新潟: 23.0 ± 10.0%)、夏季に最も低い (名古屋: 8.0 ± 6.2%; 新潟: 4.1 ± 7.3%) f 値を示した。これは過去に CHASER に基づいて求めた f 値 (春: 21.1%、夏: 5.9%; Nagashima et al., 2010) と一致した。

モデルを用いた日本域におけるオゾン季節変動の将来変化

*河野なつ美¹, 永島達也¹, 原政之², 茶谷聡¹, 板橋秀一³

1:国立環境研究所, 2:埼玉県環境科学国際センター, 3:電力中央研究所

諸言

オゾン(O₃)は気温と正の相関関係を示すことが知られており(Bloomer *et al.*, 2009; 吉門 (2021)), 気候の温暖化による将来の濃度増加が危惧される。北米や東アジアの地域大気質に着目した研究でも、気候変動の影響によって夏季の対流圏 O₃ の濃度増加が顕著になることが指摘されている(Gao *et al.*, 2013, Zhu and Liao (2015))。一方で、リモートサイトで測定された O₃ 季節変動の長期変化に着目すると、近年の最大濃度日が夏から春へと早まることが示唆されており(Parrish *et al.*, 2013)、気候変動による前駆物質の輸送経路の変化が O₃ 季節変動に影響を与えるのではないかと考えられている。しかしながら、将来の気候変化が O₃ 季節変動に与える影響を議論した研究は行われていない。本研究では、CMIP5 で計算された将来の気候変化を領域大気質モデルに与えて、将来における O₃ の季節変動を評価した。その際、将来の気象因子と排出量変化の組み合わせを定めることにより、気候変動と大気汚染物質排出量の将来変化が O₃ の季節変動に与える影響を議論する。

モデル設定

現在気候の計算ではJRA-55、NCEP1、RGTSSTをそれぞれ気象データ、地表面データ、SSTの初期値・境界値として用いた。将来計算では、CMIP5のRCP8.5シナリオ下で計算されたMIROC5の気象因子(CL)を擬似温暖化手法(Sato *et al.*, 2007; Nguyen *et al.*, 2019)で力学的ダウンスケールした。さらに現在と将来のCL、BVOC排出量(VG)、人為起源の大気汚染物質排出量(ANTH)を3パターンで組み合わせ(表1)、気候変動と大気汚染物質排出量の将来変化をモデル内で考慮した。解析対象は東アジア・東南アジア・南アジアを含む7800×7800 km²の領域、また本州を含む1350×1950 km²の領域をそれぞれ第1ドメイン、第2ドメインとし、それぞれ水平解像度を60km、15kmに設定した。また、現在気候の計算は2010～2014年、将来気候は2090～2094年と5年間の通年計算を行った。

オゾン季節変動の定量化手法

オゾンの季節変動はParrish *et al.* (2019)やCooper *et al.* (2020)に代表されるように、月平均濃度に対して長期トレンドを除去した上で定量化される。本研究ではSTL分解(Cleveland and Devlin 1988)を用いて、オゾン濃度の時系列データをトレンド、季節、残渣の3成分に分解した。さらに、季節成分と残渣項の和に対して高速フ

ーリエ変換を適用し、フィッティング関数を決定した。本研究ではtwo-harmonic sine functionを用いてO₃ 季節変動の定量化を行う。

結果及び考察

関東、関西、瀬戸内における陸域のグリッドを対象に、季節変動の定量化を行なった(図1)。日本のO₃季節変動は5月濃度が最も高く、冬季に最小を示す。CLimpact(気候変動とBVOC排出量による変化)では既往研究と同様に夏季濃度が増加することにより、秋季ピークがBaselineと比べ不明瞭になった。一方でCL+APimpact(気候変動と大気汚染物質濃度による変化)では冬季濃度の増加が発生し、年間最小は夏季に現れるよう変化した。さらに、年間最大濃度も5月から4月へと早まり、秋季ピークは10月から11月へと遅れるなど上記2つとは異なる挙動を示した。今後、緯度帯や地域別の違いにも着目しつつ解析を進めていく予定である。

謝辞

本計算の一部は、国立環境研究所が保有するスーパーコンピュータ(HPE Apollo)を用いて行われた。

表1 モデル計算設定

ケース名	計算設定
Baseline	$CL_{\text{現在}} + VG_{\text{現在}} + ANTH_{\text{現在}}$
CLimpact	$CL_{\text{将来}} + VG_{\text{将来}} + ANTH_{\text{現在}}$
CL+APimpact	$CL_{\text{将来}} + VG_{\text{将来}} + ANTH_{\text{将来}}$

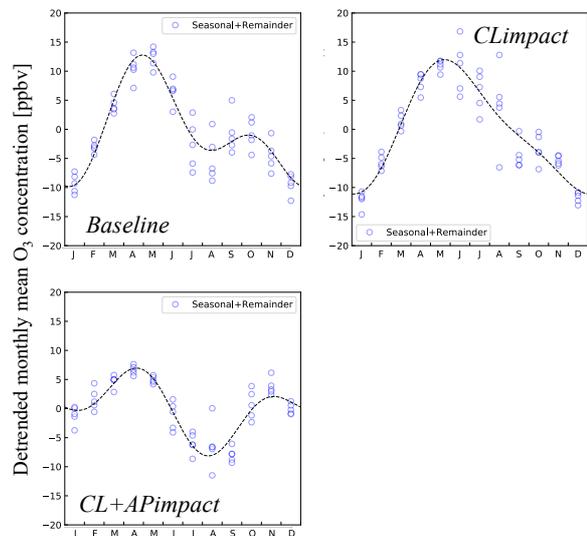


図1 各計算設定におけるオゾン季節変動

西部北太平洋域における対流圏オゾン濃度の年々変動について

*森脇哲人¹, 山地一代¹

1:神戸大学大学院

はじめに

対流圏オゾン(O₃)は、大気中にて窒素酸化物(NO_x)と揮発性有機化合物(VOC)の光化学反応で生成され、人間の健康や植物に悪影響を及ぼすほか、温室効果ガスとして地球環境にも影響を与えることが知られている。アジア諸国のO₃前駆物質の排出量の増加とともに、我が国のO₃濃度は上昇してきた(Ohara, 2011)が、近年は日本や中国などの東アジアにて前駆物質の排出量を削減しているにもかかわらず、日本の都市域にてオキシダント濃度に改善の兆しが見られない状況が続いている(環境省, 2020)。このような近年のアジア諸国の排出量変化が、日本およびその周辺地域の広域的なO₃濃度に与える影響に関する調査はまだ十分ではない。他方、我が国のO₃濃度の長期的な変動に関しては、前駆物質の排出量変化に加えて、総観規模の大気循環場の年々変動が影響するとの指摘がある(Okamoto et al., 2018)。本研究では、近傍の人為的な発生源影響が少ない西部北太平洋域の遠隔サイトにおける観測データを用いて、2000-2018年のO₃濃度の長期的な変動傾向を明らかにし、その変動の要因を調査する。

使用データ

本研究の解析対象地点は辺戸(26.9°N, 128.2°E)、小笠原(27.1°N, 142.2°E)、南鳥島(24.2°N, 154.0°E)とし、解析対象期間は2000-2018年の19年間である。辺戸、小笠原のO₃濃度の1時間観測値はEANETより、南鳥島の同観測値はWDCGGより取得した。また、気象データはNCEP-DOE Reanalysis2を使用した。

結果及び考察

図1[a]は辺戸、小笠原、南鳥島における2000-2018年の年平均O₃濃度を示す。この期間、辺戸のO₃濃度は0.32ppb/yearで減少傾向が明瞭*であった。また、大幅なO₃濃度の低下が起こる年が周期的に現れた。他方、同期間の小笠原のO₃濃度は0.28ppb/yearで増加傾向が明瞭*であった。特に2012年以降、それ以前と比較して高濃度となる傾向が見られた。南鳥島のO₃濃度に有意な増減傾向は見られなかったが、年々変動のパターンは小笠原と類似していることが分かった。図1[b][c][d][e]は対象3地点における各季節の平均O₃濃度を示す。辺戸における春季のO₃濃度は0.55ppb/yearで明瞭な減少傾向*が見られ、年平均O₃濃度の減少傾向は春季の変動傾向に影響を受けていると考えられた。他方、小笠原における夏季のO₃濃度は0.51ppb/yearで明瞭な増加傾向*が、秋季のO₃濃度は0.35ppb/yearで増加傾向**が現れていた。小笠原における年平均O₃濃度の増加傾

向は夏季と秋季のO₃濃度の増加傾向が影響していることが分かった。これらのO₃濃度の増減傾向の要因として、東アジア地域のO₃前駆物質の排出量変化に加えて、総観規模の大気循環場の年々変動が考えられる。850hPaにおけるジオポテンシャル高度と風のu, v成分を用いて気象場のアンマリー解析を行なった結果、期間前半(2000-2009年)と後半(2009-2018年)で気象場が大きく変化していることが明らかとなった。たとえば、春季には、辺戸周辺で期間後半の方が平年よりも東アジアからの輸送が弱まっている。また、夏季には、小笠原周辺で期間後半の方が平年よりも太平洋側からの輸送が弱まっていることが分かった。これらの結果がO₃濃度に影響を及ぼしていることが考えられた。学会当日はこれらの結果に加え、気候因子との相関も合わせて発表する。

*信頼度水準95%, **信頼度水準90%

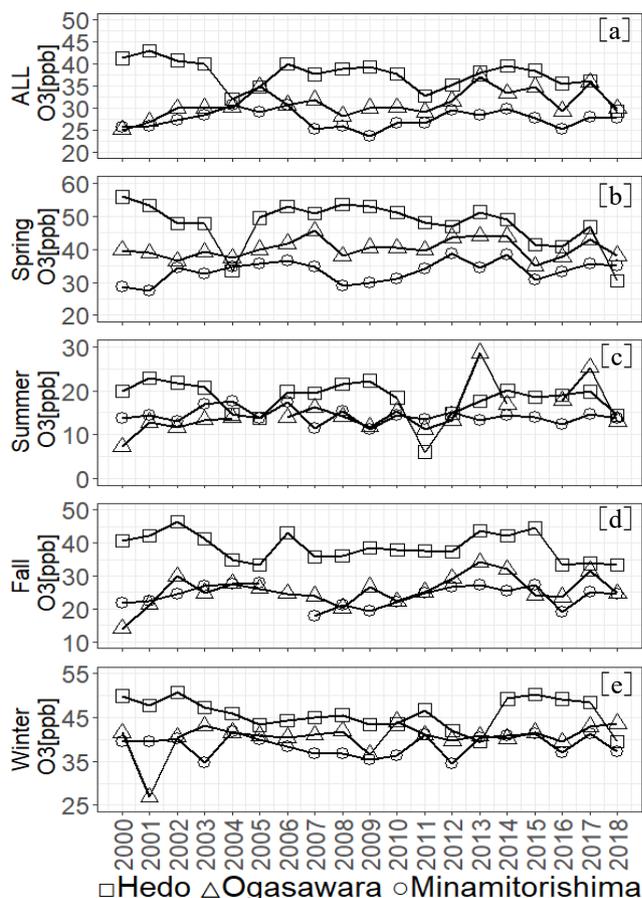


図1 2000-2018年の辺戸、小笠原、南鳥島におけるO₃濃度の年平均値[a], 春季(3-5月)平均値[b], 夏季(6-8月)平均値[c], 秋季(9-11月)平均値[d], 冬季(12-2月)平均値[e]

熱帯西部太平洋域における大気中のヨウ素の動態観測

高島久洋^{1,2*}, 金谷有剛², 大木淳之³, M. Van Roozendae⁴, 竹谷文一²

1:福岡大学, 2:海洋研究開発機構, 3:北海道大学, 4: BIRA-IASB

はじめに

大気中のヨウ素の時空間変動, ヨウ素の収支, ヨウ素を取り巻く光化学反応過程を明らかにすることは, ヨウ素がオゾン破壊をもたらすとともに, 粒子生成を通して地球の放射収支に影響ため重要である。これまで我々が実施してきた南半球から北極域の海洋上の大気中の一酸化ヨウ素 (IO) 観測により, 海面水温 (SST) が高い海域の大気中でヨウ素濃度が高いことが明らかになりつつある[1]。本研究では 2021 年 5 月末から 7 月上旬の海洋地球研究船「みらい」での高 SST 海域でのヨウ素の観測結果について報告する。

観測

海洋地球研究船「みらい」にて, MAX-DOAS 法と呼ばれる太陽散乱光を利用した受動リモートセンシング観測手法による一酸化ヨウ素 (IO) 観測, キャニスター大気採取による CH₃I 観測, O₃連続観測を実施した。観測期間は2021年5月26日~7月7日である (MR21-03航海)。船の航路を図1に示す。

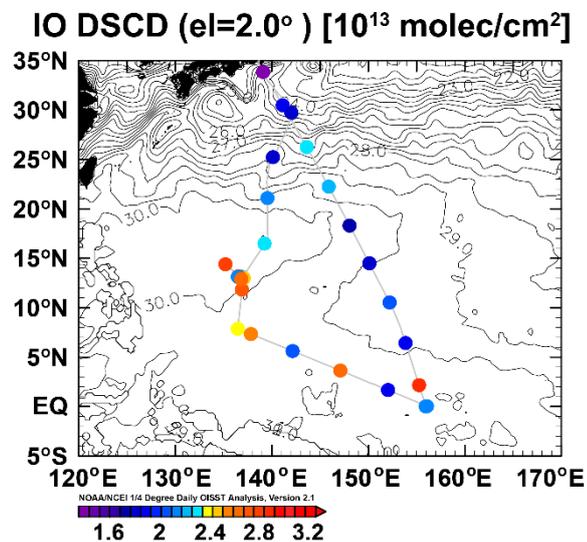


図1 2021年5月26日~7月7日の海洋地球研究船「みらい」における一酸化ヨウ素 (IO) の分布 (MAX-DOAS 法による仰角 2 度 DSCD 値)。等値線は SST 期間平均 (°C)。

結果・議論

航海全体を通して O₃ 濃度は 10~20 ppbv 以下と低く (図2), 後方流跡線解析からも観測大気は清浄であった。観測した IO 濃度はこれまでの「みらい」での観測結果 [1] と比べて航海全体で高く (2~4 × 10¹³ molec/cm²; 仰角 2°; 図2), 特に低緯度・高 SST 海域で

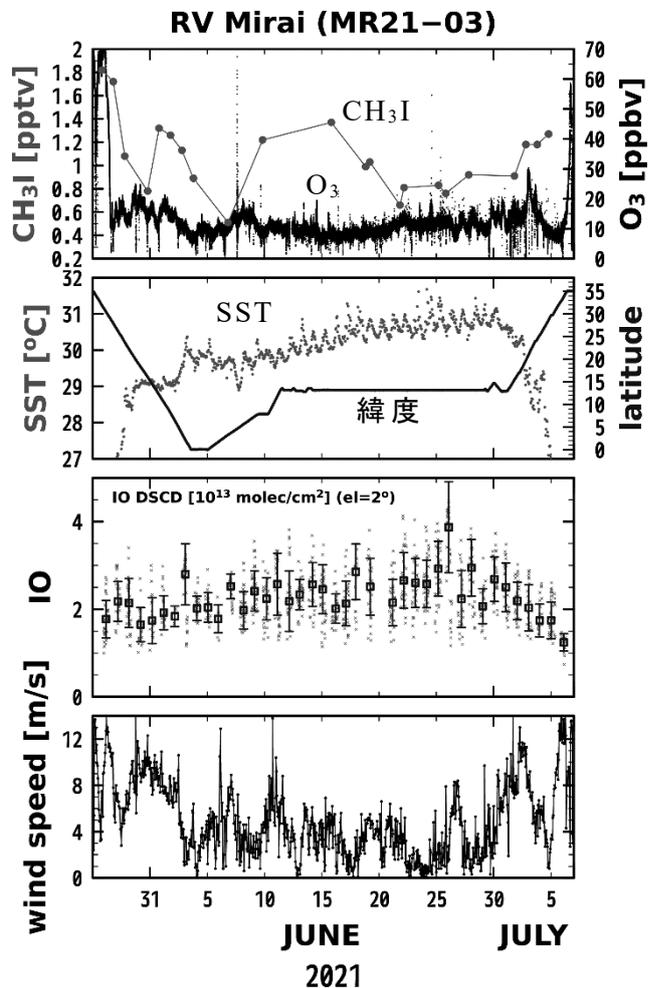


図2 2021年5月26日~7月7日における O₃, CH₃I, 緯度, SST, IO, 風速の時系列。

高い傾向がみられた (図1, 2)。この傾向は先行研究と一致する [1]。また変動性も, IOが高い海域で高い。CH₃I は日本近海で高い傾向 (1 pptv >) がだが, 低緯度域では高い場合と低い場合が観測された (図2)。今後放射伝達モデルを用いた IO 濃度の定量化を進めるとともに, ボックスモデルと全球化学輸送モデルを用いてヨウ素・オゾンに関連した光化学反応過程について解析する予定である。

謝辞

「みらい」MR21-03航海の観測では植木巖主席, 観測支援員の支援を受けた。JSPS 科研費 (21H04933) の助成を受けた。NOAA/NCEI 0.5° OISST (Analysis, Ver 2.1) を用いた。図の作成に地球流体電脳ライブラリを用いた。

[1] Takashima et al., ACPD, 2021. doi.org/10.5194/acp-2021-680.

4方位角MAXDOASを利用したTROPOMI対流圏NO₂カラム濃度データの検証と補正

*齊藤輝¹, 入江仁士¹, Damiani Alessandro¹

1:千葉大学環境リモートセンシング研究センター

1 背景、目的

短寿命気候強制力因子 (SLCFs)の1つである二酸化窒素(NO₂)の濃度を把握することは、気候変動や大気質をコントロールするうえで重要である。最新の衛星搭載センサの1つであるESAのTROPOspheric Monitoring Instrument (TROPOMI) は数km四方の水平分解能を実現したが、先行研究は対流圏NO₂カラム濃度データの過小評価のバイアスを報告しており (e.g. Verhoelst et al., 2021)、原因の完全な解明には至っていない。

本研究では地上観測データとの比較によって2019年のTROPOMIデータを検証し、バイアスの原因を考察する。また地上観測によるNO₂鉛直分布を利用したTROPOMIデータの補正法を検討し、NO₂鉛直分布のバイアスへの影響を考察する。

2 方法

千葉大学に設置したMulti-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) (Irie et al., 2011) による地上観測を行った。特に本研究ではMAX-DOASを4台組み合わせた複数方位角(13°W, 95°W, 118°E, 175°E)での同時観測を4方位角MAXDOASとし、対流圏NO₂の空間分布へのアプローチを行った。4方位角MAXDOASデータは各日のTROPOMI観測時間±30分のデータを平均し、1日のデータとした。

TROPOMIデータは千葉大学 (35.63°N, 140.10°E, 21 m a.s.l.)を中心に0.2°×0.2°の範囲の、qa_value(データ品質の指標)≥0.5のデータを平均し、その日のデータとした。その際プロダクトタイプと雲割合による制限の異なる3種類のデータセットを作成し、個別に比較を行った。

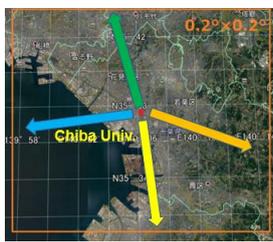


図1
4方位角MAXDOASと観測方向とTROPOMIデータの使用範囲。

3 結果、考察

図2に示すのがTROPOMIと4方位角MAXDOASによる2019年各月の対流圏NO₂カラム濃度データの比較結果である。各TROPOMIデータセットはいずれも4方位角MAXDOASと類似した季節変化を示し、良好に相関した(R= 0.91, 0.89, 0.88)。しかしながら年平均値では雲割合≤20%で制限したOfflineプロダクトで-48%と、先行研

究と類似した過小評価のバイアスが確認された。

バイアスの原因のひとつとして、対流圏NO₂の水平方向の空間不均一性が考えられる。これを指標化する4方位角MAXDOASの4方向の変動係数(CV)に着目した。ところがCVとバイアスは相関せず、バイアスを完全には説明しないことが示唆された。

もう一つの有力な原因であるNO₂鉛直分布のバイアスへの影響を確かめるために、4方位角MAXDOASによるNO₂鉛直プロファイルとTROPOMIのアベレージングカーネル(AK)を利用した補正を行った。結果は図3に示すように、補正後ではバイアスの改善がみられた(100mプロファイルで-1.3%)。この結果から、バイアスには対流圏NO₂の鉛直プロファイルの影響が大きく関与していることが示唆された。

本研究は都市部である千葉周辺におけるTROPOMIデータのバイアスを定量化し、複数方位角の地上観測データを利用した検証や補正の有用性を示した。

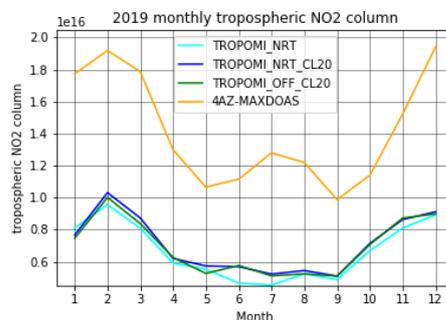


図2 4方位角MAXDOASとTROPOMIの各データセット(NRTとOFFはプロダクトタイプを、CL20は雲割合<20%を意味する)による対流圏NO₂カラム濃度 (molecules/cm²)の月別グラフ(2019年)。

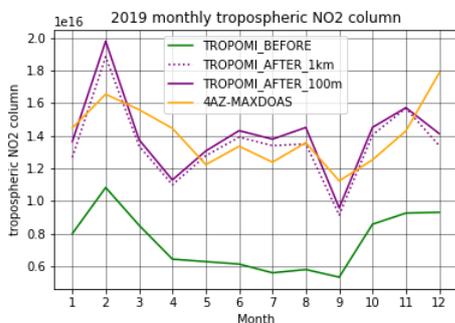


図3 補正前と補正後(1kmと100mはそれぞれ補正に用いた4方位角MAXDOASプロファイルの分解能)のTROPOMIと、4方位角MAXDOASによる対流圏NO₂カラム濃度 (molecules/cm²)月別グラフ(2019年)。

MOPITTとNICAM-TMの比較に基づくCO濃度 および排出インベントリの評価研究

*宮島宏¹, 齋藤尚子¹, 丹羽洋介²

1:千葉大学環境リモートセンシング研究センター, 2:国立環境研究所

1. 目的

一酸化炭素(CO)は大気汚染物質であり、大気中の化学反応を通して間接的にメタンなど様々な微量気体の濃度を支配している。対流圏でのCOの寿命は2か月から数か月と短寿命化学種の中では比較的長いから、COの大気中での輸送過程を調べることは重要である。

本研究では、大気輸送モデルNICAM-TM (Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model-based Transport Model)で計算されたCOデータ(NICAM-TM CO)と衛星Terra搭載のMOPITT (Measurement of Pollution in the Troposphere)で観測されたCOデータ(MOPITT COデータ)を全球・領域別に比較し、NICAM-TM CO濃度の特徴の把握を試みた。比較の結果、地表付近や上空の広い範囲でモデルが20-30%程度の過小評価を示したことから、モデルに与えられているCOの排出エミッションの評価も試みた。

2. 使用データ

本研究では、NICAM-TM [Niwa et al., 2011, 2012, 2017]で、緯度・経度2.5°グリッド、40気圧層で計算された2005年から2018年のCO濃度データを使用した。NICAM-TMには、COのエミッションとして、EDGAR (v4.3.2)による化石燃料消費、GFED (v4.1s)によるバイオマス燃焼、VISIT [Ito et al., 2018]によるイソプレン酸化からの放出、およびNICAM-TM CH₄の酸化が与えられている。

MOPITTについては、マルチバンド(熱赤外TIRバンド+近赤外NIRバンド)のレベル2プロダクトのV8のCO濃度データを使用した。なお、MOPITTのV8のCO濃度のデータ質は他データとの比較に基づく検証解析が実施されている[Deeter et al., 2019]。

3. 解析方法

本研究では、MOPITT COデータ(CO_{MOPITT})とNICAM-TM COデータを二通りの方法で比較した。NICAM-TM COデータのオリジナルデータ(CO_{NICAM-org})とそのまま比較する方法と、NICAM-TM COオリジナルデータに、MOPITT観測のCOアベレーシングカーネル(AK)行列を適用したデータ(CO_{NICAM-AK})と比較する方法である。ここでは、NICAM-TM COデータの各モデルグリッドについて、NICAM-TM COデータの月平均値、モデルグリッド内に存在するすべてのMOPITT COデータとAK行列の月平均を計算した。CO_{NICAM-AK}の月平均値は、CO_{NICAM-org}の月平均値に対応するAK行列の月平均値を適用することで求めた。

4. 解析結果

比較の結果、まず地表付近(大気第一層)では、人為起源のCOが多い北半球中緯度(30-60°N)の広い範囲で、CO_{NICAM-AK}がCO_{MOPITT}に対して40-60 ppb程度(20-40%)の過小評価であることがわかった。図1(a)に地表面におけるCO_{NICAM-org}、CO_{NICAM-AK}、CO_{MOPITT}の30-40°Nでの季節変動を示す。地表面においてはCO_{NICAM-AK}はCO_{MOPITT}に対して全ての季節で20-30 ppbの過小評価となっている。このことから、モデルに与えられている人為起源のCOエミッションが過小評価である可能性が示唆される[Crippa et al., 2018]。

次に、バイオマス燃焼など自然起源のCOが多い低緯度(20°S-20°N)の領域では、CO_{NICAM-AK}は概ね10%以内ではあるが、CO_{MOPITT}に対して過小評価となっていた。一方、CO_{NICAM-AK}の過大評価(40-60 ppb)が燃焼の特に激しい領域(2015年の8-9月でのインドネシアなど)で局所的に見られた。

上部対流圏(250 hPa)においては、全球の広い範囲でCO_{NICAM-AK}がCO_{MOPITT}より20-40 ppb程度(30-40%)過小評価になっていた。特に、3-5月に北半球中緯度(20-50°N)、9-11月に南半球の中低緯度(0-40°S)で、広範囲かつ30 ppb以上(30%以上)のCO_{NICAM-AK}の顕著な過小評価が見られた。図1(b)に、250 hPaにおける30-40°Nでの季節変動を示す。上空においては、特に春季に、CO_{NICAM-AK}が40 ppb(30%)以上の顕著な過小評価となっていた。このような上空でのモデルの過小評価は、MOPITT COデータの正バイアスの可能性に加えて、モデル側の人為起源のCOエミッション、上空への輸送、消失過程の扱いなどに原因があると推察される。

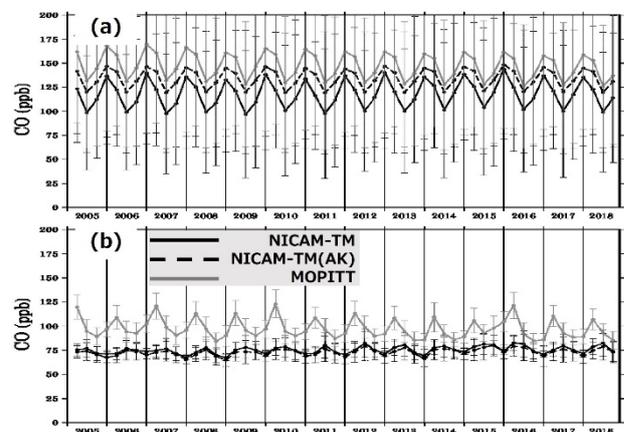


図1 30-40°NにおけるCO濃度の季節変動。
(a)は地表面、(b)250hPaにおける変動を示す。

大気化学の将来構想2022-32へ向けて: 概要とセッション趣旨

*金谷有剛¹, 持田陸宏², 日本大気化学会, 日本学術会議IGAC小委員会

1:海洋研究開発機構, 2:名古屋大学

はじめに

大気化学の研究分野では、2000年に「日本の地球大気化学研究 1989-1999-10年間の総括と今後の研究戦略-」を、2008年に「今後の日本の大気化学研究 IGAC 小委員会の提言」をまとめて以降、研究コミュニティ全体として、研究計画構想を俯瞰的な文書としてまとめる機会を持ってこなかった。このことは、ボトムアップ型の取組で有意義な研究活動が実施できてきたことの証ともいえるが、大型研究の提案等の際に、拠り所とする戦略文書が存在しないなど、デメリットも大きい。また近年、学問の成熟とともに学術的に深い探求・洞察が求められるようになって共に、Future EarthやSDGsといった超学際的な出口や、社会貢献的な切り口も求められるなど、私たちを取り巻く状況も変化した。このような現況を踏まえ、今後10年(2022-2032年)で推進すべき研究で、周辺分野も巻き込みつつ実施すべき課題を、日本大気化学会とIGAC小委員会の主導により文書として整理することとした。この文書作成は、私達自身が学術研究の方向性の道標として活用することに加え、今後、大型研究や大型設備を提案・獲得していく際に対外的に示すことや、より一般に、本学会の活動をアピールしつつ、周辺学会との連携を図る際のコミュニケーションツールとして活用することを目指すものである。

取りまとめの方針と今回お願いしたいこと

現在、2019年の作業開始から2022年夏ごろの公表へ向けての中間地点にある。本特別セッションや、一次原稿へのパブリックコメントなどで、日本大気化学会会員の皆さんの意見やコメントを取り入れたい。今回とくに、オープンな議論を反映した文書としたい。

これまでの経緯や取りまとめの方針は以下のとおりである。当初から全ての分野の網羅を意識しすぎると、広く薄い内容の文書となることが懸念されたため、まずはいくつかのコアテーマと代表者をトップダウンで指名し、「尖った」サイエンスを記述する文書とすることを目指した。代表者には、数名程度の執筆コアメンバーチームを組織し、またコミュニティからの広いインプットを受けられるように、小研究会等を自主的に開催し、活動を進めてもらうように依頼した。2019年度末ごろから活動に入ったものの、ほどなく新型コロナ感染症の蔓延により、対面での会合は不可能となり、オンラインで規模を縮小して進めざるを得なくなった。それでも、限られた機会を活用し、構想と執筆を進め、5つのコアテーマについては本日、そのエッセンスを発表する段階に至った。また、一次原稿についても意見をいただく段階となった。前述

の小研究会で広く意見を聞くことができなかった側面もあるため、ぜひ本特別セッションにて、まずはサイエンスや開発の構想に対し、大所高所から、あるいはフレキシブルな視点から、幅広くご意見をいただきたい。

コアテーマと裾野の拡張について

今回はSLCFガスと排出、温室効果気体、基礎物理化学プロセス、海洋関係、陸域関係に関する5つのコアテーマから発表していただくが、エアロゾル・雲関連、成層圏以上についてもコアテーマとしての活動が進行中であり、JpGU2022において発表と意見交換の機会を設け、取りまとめる方針としている。その他の課題や横断的な取り組みについても、既存テーマでの記述を確認しつつ、必要に応じて囲み記事化などの方法で記述を加えたいため、追加すべき事項そのものの提案を含めコメントいただき、執筆にもご協力いただきたい(追加事項の例としては北極研究、同位体利用、上部対流圏・成層圏下部など)。最終的には、このような方法で裾野を広げた文書とし、また、ギャップに加えて重複についても確認して、相互参照する形に整理したい。

公表の形式について

まず、これらのコアテーマに関する各論を、本学会の和文学術論文誌である「大気化学研究」にて束ね、2022年の夏ごろに公表する。当誌はオープンアクセス媒体であり、広く学会内外に読まれるものとした。読み手としては、隣接分野の専門家程度を想定している。体裁の統一感を得るための工夫として、究極の目標は何か、最近の世界の動向と我が国の強み、現在の重要なギャップを記述してから、今後10年どのような取り組みを進めるべきか、と論考を進められる形式とした(各アブストラクト参照)。

さらに、これらの各論を俯瞰し、学問としての、また社会的役割を意識した課題や、分野間・国際・国内連携、必要となるファシリティ等を「序文」にまとめる。この作業はIGAC小委員会で行い、各論と合わせて、日本学術会議の「記録」文書とする。この序文の構想については検討中であり、確認やコメントをいただく機会を別途用意したいと考えているが、盛り込むべき要素などについては今回ぜひご意見をいただきたい。

謝辞: 本文書の取りまとめの方向性は、各コアテーマ代表者や、IGAC小委員会の共同世話役である谷本浩志氏、竹川暢之氏との議論で策定してきたものである。各論取りまとめの労に加えて、感謝申し上げたい。

大気化学の将来構想：温室効果気体とオゾン層破壊物質

*梅澤拓¹，丹羽洋介¹，齊藤拓也¹，齋藤尚子²，豊田栄³

1:国立環境研究所, 2:千葉大学, 3:東京工業大学

大気中の温室効果気体 (GHG) やオゾン層破壊物質 (ODS) は、様々な人為・自然放出源を起源に持ち、様々な消失・吸収過程によって大気から除去される。大気中の GHG や ODS の変動を理解するためには、地球表層での GHG や ODS の交換や大気中での化学反応を定量的に把握する必要がある。パリ協定やモントリオール議定書にもとづく国際社会の取り組みも進展しており、これら対象気体の放出起源や分布の正確な把握や排出インベントリの検証に関する科学的知見を提供し、実効的な排出削減策の立案にも貢献することが求められている。将来の GHG や ODS の収支を正確に予測す

るためにも、これらの循環メカニズムの解明が重要である。このため、地上、航空機、船舶、人工衛星による大気観測、フラックス観測、大気化学輸送モデル、陸域・海洋の物質循環モデルなど、多様なアプローチによる研究が行われ、GHG や ODS の全球・地域収支が推定されてきた。現在では、複数のアプローチを組み合わせた統合的研究が国際的に展開されるようになり、我が国の研究も大きな責務や貢献を果たしている。

究極のゴールは何か。	<ul style="list-style-type: none"> GHG や ODS の大気中濃度の変動要因を放出源や消失源の観点から定量的に理解し、循環メカニズムの理解にもとづいて正確な将来予測を可能とすること パリ協定やモントリオール議定書にもとづく国際社会の取組に対し、対象気体の放出起源や分布の情報を正確に提供し、実効的な排出削減策の立案に貢献すること
この 10 年での世界的な動向や日本での研究の強み	<ul style="list-style-type: none"> 継続的に発展してきた大気観測、排出インベントリ、大気化学輸送モデル、陸域生態系モデルなどを活用し、トップダウン法とボトムアップ法の比較・統合比較解析が可能になり、そのための国際プロジェクトが組織されて日本の研究者も多く参加してきた 日本の GHG 観測衛星である GOSAT/TANSO-FTS による CO₂ や CH₄ のカラム平均濃度のデータ処理・利用研究が大きく進展し、後続の国内外の衛星観測データも利用可能となって、衛星観測データを利用した地表面フラックスの推定研究も進展した パリ協定の発効を受け、GHG の人為排出量を地域・都市域スケールで把握するための観測・モデル研究が盛んに行われた GHG や ODS の放出源としてアジア地域の重要性が高まるなか、アジア地域の放出源変動を高感度に検出できる日本の観測データの価値は高く、継続的なデータ提供が求められている 日本国内の観測では、地上のみならず、大気球、航空機、船舶など、独自の観測プラットフォームが開発・維持されるとともに、GHG の循環解析に有効な関連トレーサの観測も独自の技術開発にもとづいた成果が報告されている 大気化学輸送モデルや陸域生態系モデルが日本の複数の研究グループで独自に開発され、世界的にも高い認知度を得ている
現在の重要なギャップ	<ul style="list-style-type: none"> 全球スケールでは大陸内陸部や熱帯地域の観測データが依然として不足しており、地域・都市域スケールではさらに高密度の観測データが期待されているが、高精度観測の維持や解析システムの整備、新たな観測の展開などには技術的・コスト的な課題が大きい 多様なプラットフォームによる観測データが飛躍的に増加しているが、統一的なデータの質の担保やデータを最大限活用するためのモデルの高度化など、多様なデータを地表面フラックスの逆解析に十分に活用するための課題がある
それらを踏まえ、今後 10 年の研究をドライブする key question or 作業仮説	<ul style="list-style-type: none"> パリ協定やモントリオール議定書が機能しているかをどのように評価するか？どのような時空間密度・測定精度・観測プラットフォームの観測データが必要なのか？多様な観測データを活用するためのモデル解析システムをどのように構築すべきか？ 気候変動、海洋酸性化、オゾン層破壊・回復などに伴って、海洋と陸域生態系の GHG と ODS の放出源・吸収源、大気化学反応はどのように変化するか？特に劇的な変動が起こりうる北極圏の湿地、永久凍土、森林火災がどのような影響を受けるのか？
主な連携相手	GCP, RECCAP, NOAA, AGAGE, IGAC

大気化学の将来構想：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明

*金谷有剛¹，須藤健悟^{2,1}，Prabir Patra¹，坂本陽介³，関谷高志¹，藤縄環⁴，谷本浩志⁴，江口菜穂⁵，齋藤尚子⁶，笠井康子⁷，出牛真⁸，佐藤知紘⁷

1:海洋研究開発機構，2:名古屋大，3:京都大，4:国立環境研究所，5:九州大，6:千葉大，7:情報通信研究機構，8:気象研究所

対流圏の大気化学反応を支配するのは「OH ラジカル」を中心とした反応系である。OH はメタンの大気中滞在時間やオゾン・PM2.5 の生成など，大気汚染物質の濃度や分布動態を決定づける。多くの大気汚染物質は短寿命気候強制因子 SLCFs として直接・間接的に気候変動に影響するほか，健康影響を引き起こす。しかしながら OH の収支や濃度分布・変動は未だ十分に把握できておらず，戦略的なプロセス研究が必要である。SLCF 濃度変化を根源的な変動要因である「人間活動

による排出増加」と定量的に結び付けることは，これらの温暖化・健康影響を和らげる方策を練るうえで重要である。しかしながら，非線形性や自然プロセスの寄与分離などの重要課題が残されている。気候変動のフィードバックも含め，これらの課題を取り上げ，現場観測，数値モデル解析に新たな衛星観測を統合した具体的な戦略や，長寿命温室効果ガスと複合した解析について議論する。

究極のゴールは何か。	<ul style="list-style-type: none"> ・光化学反応・大気輸送・沈着等の諸プロセスを方程式で表現でき，排出量や境界条件が与えられれば，大気微量ガス成分群の濃度時間発展や収支を将来予測できること。各プロセスの役割を定量的に理解できること。 ・濃度変動の原因を排出量変化に結び付けて把握でき，フィードバックを含め各成分による短寿命気候強制因子 (SLCFs) としての気候変動への寄与や健康影響を定量化でき，緩和策を提案できること。 ・物理および化学等の法則に基づき，精度のよい化学天気予報を社会に発信できること。
この 10 年での世界的な動向や日本での研究の強み	<ul style="list-style-type: none"> ・世界的に，衛星観測や高精度現場観測・標準化が進展し，大気成分濃度情報の時空間的なカバレッジが大幅に向上し，観測と数値モデルの統合化が進んだ。 ・日本の強みとしては，東アジア広域オゾン・PM2.5 大気汚染の原因把握，OH ラジカル反応性や不均一反応取り込み係数の評価，同位体などからのプロセス知見，複数の地球システムモデル開発，大気化学輸送モデルとデータ同化の進展，GOSAT 等で培った衛星観測解析技術，排出インベントリの高度化がある。
現在の重要なギャップ	<ul style="list-style-type: none"> ・大気化学の心臓部となる OH ラジカル反応系の理解不足 ・オゾン化学の非線形性と生成速度制限因子の空間分布の理解不足 ・大気組成変化と排出との因果関係定量化，排出インベントリ/削減施策の迅速評価が不十分 ・向上した衛星観測でも高度分布情報（成層圏含む），日変化情報が得られない ・突発事象予測のための早期検出観測情報の不足
それらを踏まえ，今後 10 年の研究をドライブする key question or 作業仮説	<ul style="list-style-type: none"> ・OH 反応系の理解不足は亜硝酸，ハロゲン類，不均一反応，揮発性有機化合物などで解消し，全球 OH 量推定における方法間のギャップ（半球間勾配，トレンド）は埋まるか？ ・キロメートル級の水平分解能を備え，連続的な面分布を計測できる衛星観測システムや温室効果気体 (GHG)-大気質 (AQ) の統合解析は，オゾン化学の非線形性・生成制限因子の把握や，重要な排出源の評価を格段に進展させるか？ ・地球温暖化による各物質へのフィードバック等の理解も向上させて，脱温暖化などの意思決定に科学エビデンスを与えられるか？ ・数値モデルへのデータ同化の対象に，アンモニア，VOC などを NO_x 等に加え総合化すると，オゾン，PM2.5 予測等が向上するか（気候変動・健康問題に加えて食糧問題へも知見を提供してゆけるか）？ ・大気化学と気象・地球システムとの相互作用の理解向上や，鍵となる観測情報の取り込みにより，化学天気予報・地球システム将来予測だけでなく，気象の現業数値予報モデルが向上でき，社会に有益な情報を与えられるか？
主な連携相手	IGAC, iCACGP, COSPAR, CEOS, SPARC

大気化学の将来構想：未来の大気化学のための室内実験

*江波進一¹, 石塚紳之介², 羽馬哲也³, 猪俣敏¹

1: 国立環境研究所, 2: 名古屋大, 3: 東京大

室内実験・理論計算研究が大気化学の発展に果たしてきた役割は大きい。地球の環境は気相・液相・固相によって構成されており、これまでの大気化学の主な舞台は気相であった。気相は均一な反応場であり、化学反応を取り扱いやすいため、室内実験・理論計算研究が盛んにおこなわれてきた。一方、溶媒分子が反応に重要な影響を与える液相、異なる相が接触する境界相である界面は、気相とは異なる独自の反応場である。近年、液相・界面を含む多相(multiphase)で起こる物理化学過程が大気理解の鍵となることがわかってきた。

IPCC の報告書によると放射強制力の不確かさが最も大きいのはエアロゾルと雲の相互作用に関する項目である。二次有機エアロゾルの生成率は、モデル間で $10 - 143 \text{ Tg yr}^{-1}$ と大きく異なり、未だに大きな誤差の要因である。また大気汚染によって世界で年間約 430 万人が死亡しており、エアロゾルはその主因であるとされる。

界面を含む多相反応によって、大気中のエアロゾルは変質し、その毒性も常に変化している。大気中のエアロゾルがどのように発生、成長、変質していくのかという「エアロゾルの一生」に関しては未だによくわかっていない。このように、液相・界面を含む多相で起こる物理化学過程はエアロゾルがもたらす気候変動への影響と健康影響において極めて重要であるにもかかわらず、その全容解明にはほど遠いのが現状である。

本講演では、室内実験の観点から、今後10年後の大気化学の発展の鍵となるテーマ・未解決問題を取り上げ、その突破口となりうる研究について議論する。

究極のゴールは何か。	<ul style="list-style-type: none"> ・大気中で起こるすべての物理化学過程の理解。 ・分子レベルの不均一性が与える溶媒効果や界面の特殊性を考慮した反応速度定数・取り込み係数・光学定数の導出。 ・上記のデータをもとに、大気中で起こるすべて物理化学過程(エアロゾルに関しては、化学組成・揮発性分布・吸湿性・光学特性)を計算によって再現・予測可能。
この10年での世界的な動向や日本での研究の強み	<ul style="list-style-type: none"> ・世界的に、エアロゾルの生成につながる気相反応の理解が進んだ。 ・界面を含む多相反応の重要性が認識されるようになった。 ・界面の性質を明らかにする実験装置や理論計算が発達した。 ・日本では、物理化学をベースとしたオリジナルの研究成果が出ている。 ・アジアの新興国の台頭と日本の地理的なメリット(共同研究や人材交流)。
現在の重要なギャップ	<ul style="list-style-type: none"> ・室内実験(シンプルな系かつ高濃度)と実大気(複雑な系かつ低濃度)のギャップ。 ・最終生成物の生成メカニズムを確定するための中間体の検出。 ・エアロゾル成分をどれだけの割合のものを分析でき、また正しく定量できているか。 ・界面現象は定性的にしか扱えず、定量化できていない(例えば界面における反応速度定数の増大)。
それらを踏まえ、今後10年の研究をドライブするkey question or 作業仮説	<ul style="list-style-type: none"> ・計測機器の高感度化・多成分同時高時間分解能計測装置の精度の向上ができるか? ・酸化過程におけるモノマー・ダイマーの生成機構(特に、HOMs)や粒子相での化学反応過程を正しく理解できるか? ・二次生成エアロゾルの生成収率は、カギと考えられる要因(酸化剤・気温・湿度・既存粒子の量や性状)でどう(シンプルに)整理できるか? 他に見落としている要因はあるか? ・エアロゾルの化学的変質過程をmicroscopicに捉えられないか?(具体例: 光ピンセットで大気中のエアロゾルを捕捉、そのまま数日キープして分光(Raman, IR)測定。日中のOH酸化、夜間のNO₃酸化による成分変化の証拠が得られないか?) ・界面特有の現象の把握 ・不均一性(複雑さ)・界面現象の定量化に向けたブレークスルーは何か?
主な連携相手	IGAC・分子科学会

大気化学の将来構想：陸域生態系と大気化学

*持田 陸宏¹, 伊藤 昭彦², 松田 和秀³, 谷 晃⁴

1:名古屋大学, 2:国立環境研究所, 3:東京農工大学, 4:静岡県立大学

陸域の生態系は、温室効果をもたらす CO₂ や CH₄ などの長寿命気体、大気光化学過程やエアロゾル生成に関与する揮発性有機化合物 (VOCs)、氷晶核としての役割が注目されているバイオエアロゾルなど、大気化学・放射・微物理過程に関わる様々な物質の供給源としての側面を持っている。これらの物質の大気への供給を時空間的に把握することは、ローカル〜グローバルスケールの大気過程を理解する上で重要であるが、様々な環境における多様な生態系からの供給過程は、これまで十分に解明されていない。

また、硝酸塩の沈着や植生による炭素固定など、大気

から生態系への物質の供給は、生態系やそれを含む陸域環境に影響を及ぼしていると考えられる。さらに、植生の光合成や呼吸を通して大気と交換がある CO₂ や、陸域植生から放出される VOCs を前駆体とする生物起源二次有機エアロゾルは、放射収支に関与して気候に影響を及ぼすことが考えられ、それが植生に影響をもたらすフィードバック機構の存在が議論されている。

本テーマに関する将来構想においては、これらの大気-陸域間の相互作用に関するこれまでの研究の取り組みを振り返り、これまで十分に解明されていない問題に対する今後のアプローチを議論する。

究極のゴールは何か。	<ul style="list-style-type: none"> 長寿命気体、特に温室効果ガスの動態・交換量をマルチスケールで短期〜長期にわたり高精度に把握する。交換の変化のメカニズムを解明し、地球環境変動に伴う収支を定量的に予測することで影響評価、適応・緩和策の立案に貢献する。 大気物質の沈着・交換プロセスの理解を深め、現象をモデル化し、化学輸送モデルの予測精度向上へと繋げる。 BVOC の放出機構やそれに及ぼす要因を、分子・細胞・組織・個体・群落の各レベルで明らかにし、BVOC が介在する大気質や気候への影響を解明する。 大気エアロゾルの収支に対する陸域生態系の影響を定量的に把握し、その将来予測を可能とする。また、これをエアロゾルの気候影響や気候と植生の関係から理解する。
この 10 年での世界的な動向や日本での研究の強み	<ul style="list-style-type: none"> 地上・衛星による観測データ量の飛躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地上物質循環モデルによる収支推定で貢献。iLEAPS が実施され、国内でも大気-陸域間の物質交換に関する学際的な研究が活性化した。 今世紀に入り、新技術による様々な化学成分・沈着表面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速度の不確実性が大きい成分・表面などが明らかになった。 植物間コミュニケーション、放出の環境応答等の分子〜生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展。日本で土地改変・都市緑地に関する BVOC 研究が進展した。 自動酸化による高次に酸化された有機分子 (HOMs) の生成など、生物起源二次有機エアロゾル (BSOA) の生成機構の理解が向上。日本では BSOA に関わる室内実験・野外観測での貢献。
現在の重要なギャップ	<ul style="list-style-type: none"> 温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。 沈着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精緻化への貢献。 BVOC の放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。 生物起源二次有機エアロゾルの生成量・特性の把握と、大気モデルによる表現。
それらを踏まえ、今後 10 年の研究をドライブする key question or 作業仮説	<ul style="list-style-type: none"> CO₂ 施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。観測・モデル手法を高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組みが必要。 Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。 新規 BVOC 測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。 BSOA の生成が気候プロセスもたらす影響を量的に把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。
主な連携相手	IGAC, iLEAPS, iCACGP

大気化学の将来構想：人新世における海洋エアロゾル・生物の気候フィードバック

*伊藤彰記¹，宮崎雄三²，竹谷文一¹，岩本洋子³，金谷有剛¹，西岡純²

1:海洋研究開発機構，2: 北海道大学，3: 広島大学

地球規模で大気環境や気候が変化中、人間活動が海洋生態系へ与える影響、およびその海洋生物活動の変化を介して気候へ与える影響を定量的に評価することは容易ではない。その主な理由は、生物地球化学的な物質循環において、物理化学現象に加えて生物活動によるさまざまなフィードバック効果が働くためである。海洋生物活動の影響を受けてエアロゾルおよびその前駆体が雲特性をどの程度変化させ、それにより、気候へどのような影響をどの程度与えるのか？さらにそ

の気候影響が海洋生態系にどのようなフィードバックをもたらすのか？同時に、大気から海洋への栄養塩供給が、生物地球化学的な物質循環をどの程度変化させ、それにより、海洋生態系へどの程度影響を与えるのか？本発表では、これらの研究課題に関する最新の知見を総括する。将来構想として、観測・実験・数値モデル研究の融合、大気化学分野と隣接する研究分野との連携、および新規研究課題の開拓を展望する。

究極のゴールは何か。	<ul style="list-style-type: none"> 人類は地球規模での大気汚染や温暖化を引き起こし、人新世と呼ばれる時代に突入した。これらの人為的な地球環境変化が大気化学・陸域海洋生態系相互作用へ与える影響およびその影響による気候フィードバックを本質的に理解し、統合的に評価・予測することは重要である。従って、観測・実験・数値モデル研究を融合し、人新世における「大気微量成分と海洋生物活動の相互作用による気候影響と海洋生態系へ与える影響およびその気候フィードバックを明らかにすること」が究極のゴールとなる。
この10年での世界的な動向や日本での研究の強み	<ul style="list-style-type: none"> CLAW 仮説で提案された気候フィードバックを支持する観測事実は、確認されなかった。 海洋生物学－大気エアロゾルの化学・物理過程－雲凝結核能・氷晶核能への影響に関する統合的な研究が国内外で進んだ。 国内では太平洋を中心として船舶による大気化学観測データが蓄積された。 有機物・鉄・反応性窒素の大気－海洋間収支に関する観測・モデルの統合研究体制が構築された。 同位体を用いた解析や蛍光法を用いた成分解析など先端的な計測/分析による洋上観測により海洋大気エアロゾル組成の新たな情報が蓄積された。 北太平洋亜寒帯において、海洋内部の鉄の分布や循環に関する知見が蓄積された。 鉱物起源鉄に加えて燃焼起源鉄を新たに考慮することで、大気モデルによるエアロゾル中鉄濃度および鉄溶解度の観測再現性が向上し、燃焼起源鉄は鉱物起源鉄より効率的に栄養塩施肥効果に働くことが海洋モデルから示唆された。
現在の重要なギャップ	<ul style="list-style-type: none"> 表層海水から大気への有機物の供給過程・量と、その雲凝結核能・氷晶核形成能、雲降水過程への影響に関する気象・気候システムとしての総合的な理解が不十分である。 各海域において海洋生態系に影響を与えうる大気成分の供給量および起源に関する理解が未だ不十分である。 北極海・北太平洋・インド太平洋・南太平洋において、大気・海洋パラメータを同期させた統合的な船上観測やメソコスム等の現場実験による検証データが少ない。 海洋－大気境界層での有機物と栄養塩の相互作用の理解が不足している。
それらを踏まえ、今後10年の研究をドライブするkey question or 作業仮説	<ul style="list-style-type: none"> 地球温暖化や海洋酸性化および海洋への栄養塩の沈着量の変化に伴って、海洋から大気へのエアロゾルや前駆体の放出量・質はどうか変化し、雲凝結核・氷晶核を介してどの程度の正または負の気候フィードバックが生じるのかを明らかにする。 大気から海洋への様々な栄養成分および阻害成分の供給に対する海洋生態系(基礎生産など)の応答を定量化する。 北極海・北太平洋・インド洋・南太平洋において長期的な大気・海洋統合船上観測と大気・海洋物質循環モデル研究を展開する。 個別に行われてきた有機物・栄養塩の観測・実験・モデル研究を融合するとともに、分野横断型研究を推進する。
主な連携相手	<ul style="list-style-type: none"> 日本海洋学会，日本気象学会，日本地球化学会，日本エアロゾル学会，SOLAS，CATCH，BEPSII，GESAMP，GEOTRACES

画像解析によるエアロゾル濃度推定アルゴリズム

*佐藤知紘¹, 新見道治², 高島久洋³, 石井昌憲⁴, 高林正典², 山本和憲¹, 村田健史¹,
吉田一志¹, 笠井康子¹

1:情報通信研究機構, 2:九州工業大学, 3:福岡大学, 4:東京都立大学

背景と目的

地球温暖化や大気汚染等, 大気に関わる環境問題の解決は人類の必須課題である。エアロゾルは, 太陽光の散乱・吸収や雲凝結核等の放射強制力における重要な役割を担うとともに, PM2.5に代表されるように健康被害を招く大気汚染物質である。

本研究では, 一般に使用されるカメラによる上空撮影画像データからエアロゾル濃度を推定するアルゴリズムを開発し, エアロゾル観測を簡便化する。これにより, スカイラジオメーター等の専門的な機材の導入が困難な場所でも, カメラ1つでエアロゾル濃度の測定が可能となり, より広範囲かつ高密度な観測が可能となる。

データ取得

2020年12月に福岡大学と九州工業大学の屋上に定点カメラを設置し, 上空画像の撮影を開始した。撮影された画像データは, 情報通信研究機構が開発した映像転送システムを用いてインターネットを経由して自動でサーバーに送信, 1分間隔で保存した。本研究では, 2021年1月1日~6月30日の9時~18時までの画像データを解析対象とした。

エアロゾル濃度には, 環境省大気汚染物質広域監視システム[1]の浮遊粒子状物質(SPM)の速報値データを使用した。福岡大学撮影カメラには福岡市祖原局, 九工大撮影カメラには北九州市の戸畑局の観測データを使用した。また, 天候により撮影条件を選定するため, ひまわり8号衛星観測データから算出された日射量データ[2]を使用した。本研究では, 全天日射量(GSI)と散乱日射量(DSI)を組み合わせ, $GSI > 550 \text{ W/m}^2$ かつ $DSI/GSI < 0.15$ を満たす晴天時のみを使用した。

エアロゾル濃度分類モデルの構築

本研究では, 上空撮影画像からエアロゾル(SPM)濃度を3クラス(Low: 0-10, Middle: 10-25, High: 25以上 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$])に分類する機械学習モデルを構築した。エアロゾルによる波長による散乱の差を抽出するために, 画像データの画素毎に反射率(濃淡, B, G, R)及び画素値比(B/G, G/R, R/B)を計算し, 図1で示す8つの画像範囲における平均値を求めた。反射率は, 輝度である画素値を照度で割ることで導出した。照度は, SPM平均値が低く(祖原: $8.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 戸畑: $6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 日射量も条件を満たした2月8日11時~14時の平均画像データにバイラテラルフィルタをかけることで導出した。

クラス分類モデルには, K近傍法, サポートベクターマシン(SVM), ランダムフォレスト(RF)の3種類の機械

学習モデルをテストした。6か月分の観測データから日射量データによる選別を行い, 6:4の割合で訓練用とテスト用にデータをランダムに分け, 各モデルにおける正解率(Accuracy = 予測が的中した数/全サンプル数)を計算した。表1に, 福岡大学撮影カメラに対して実施した結果を示す。ここでは, 過学習を防ぐために画像範囲毎に最もSPM濃度と相関が強い色成分の反射率及び画素値比を入力変数としている。3つのモデルを比較した場合, RFが最も正解率が高く, 反射率と画素値比の両方を用いた場合で70%であった。この傾向は九工大撮影カメラでも同様であり, その正解率は70%であった。

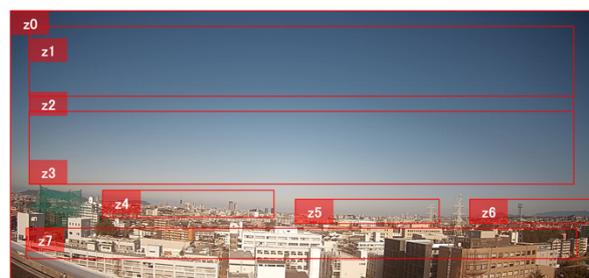


図1 画像範囲(福岡大学カメラ)

z0:画像全体, z1:空(上), z2:空(中), z3(下),
z4:境界(左), z5:境界(中), z6:境界(右), z7:建物

表1 3クラス分類正解率(福岡大学カメラ)

	反射率	画素値比	反射率+ 画素値比
K 近傍法	64%	64%	65%
SVM	65%	65%	65%
RF	67%	67%	70%

まとめと今後の展望

本研究では, エアロゾル濃度のより簡便な観測を実現するために, 上空撮影画像データによるエアロゾル濃度の3クラス分類を試みた。福岡県を対象に, 晴天時における画像データに対して分類モデルを構築し, 正解率70%を達成した。

データアクセス

- [1] 環境省大気汚染物質広域監視システム <<https://soramame.env.go.jp/>, 2021年9月20日アクセス>
[2] 気象データダウンロード <<https://veda01.cr.chiba-u.jp/>, 2021年9月20日 アクセス>

マルチスペクトルカメラ(MSC)による 大気中水蒸気の2次元空間分布の高速推定

*西脇郁弥¹, 入江仁士¹, 眞子直弘¹

¹:千葉大学環境リモートセンシング研究センター

研究背景

水蒸気は降水現象の源として私たちの生活に深くかわり、時に豪雨や豪雪といった災害をもたらす。特に、大気下層における水蒸気の増加は、潜在的な大気不安定の増大を意味するため、その動態の把握は重要である[Shoji, 2007]。

水蒸気の可視化の研究は、ハイパースペクトルカメラ(HSC)を使用した可視光(400 ~ 750 nm)の波長領域での観測が報告されており、水蒸気の差分傾斜カラム密度(differential Slant Column Density, dSCD)の空間分布の可視化が達成されている[Manago et al. 2018]。

しかし、HSCによる水蒸気画像の作成には1枚当たり1 ~ 2時間程度かかり、複雑な大気の動態を短時間に把握することは難しいという課題がある。

研究目的

本研究では、水蒸気吸収波長の1つである820 nm周辺の波長に着目し、観測可能な波長数を絞ったマルチスペクトルカメラ(MSC)を用いることで、従来手法よりも短時間で水蒸気の空間分布の可視化を実現することを目的としている。

観測機器

本研究では、MSC (Mecaw, Tetracam)と、比較のためにHSC(GS-A, EBAジャパン)およびMAX-DOAS装置(PREDE)を用いた。主な仕様を表1に示す。

表1. 観測機器の主な仕様

観測機器	観測波長(nm)	分解能(nm)
MSC	780, 820, 860	10
HSC	350 ~ 1100	6
MAX-DOAS	310 ~ 515	0.4

リトリバル手法

本研究では差分吸収分光法(DOAS法)を用いて、天空光のスペクトルを観測することで得られた水蒸気(H₂O)の光学的厚さを、計算で再現するようにdSCDを求める。一般的に低仰角からの天空光は、天頂方向からの天空光に比べて有効光路長が長いいため、スペクトルには分子の吸収特性が多く含まれている。本研究では、地上付近における対象分子のdSCDの2次元分布を求めるため、低仰角で観測した画像のスペクトルを、雲のない状態で天頂方向をほぼ同時に観測した参照スペクトルでピクセルごとに除する。これにより、カメラの感度による画素ごとの不均一性など、対象画像と参照画像に共通する要因をほとんど排除できるという利点がある。

観測条件

観測は2021年8月30日の10:00 ~ 14:00に千葉大学工学系総合研究棟 I の屋上(35.63 °N, 140.10 °E)で行った。三脚で両カメラを固定し、南西方向を約20秒間隔、天頂方向を約10分間隔で観測した。その際、両カメラの画角内に水平線とMAX-DOAS装置の観測範囲も含まれるように方向を決め、露光時間は2000 msとした。

結果と考察

本稿では、両カメラで10:30に撮影した画像から求めた水蒸気のdSCDと、同時刻にMAX-DOAS装置が観測したdSCDを仰角ごとに比較した結果を図1に、MSCの水蒸気画像を図2に示す。今回のケースでは、MSCを用いることで水蒸気画像の作成にかかる時間を1枚当たり約5分に短縮することができた。

dSCDの仰角ごとの相関を調べたところ、MSCとMAX-DOAS装置で相関係数 $R=0.97$ 、HSCとMAX-DOAS装置で $R=0.92$ と強い正の相関が得られたが、絶対値は両カメラともMAX-DOAS装置より過小評価することがわかった。過小評価の原因としては、光路長や半値幅の違いなどが挙げられる。MAX-DOAS装置は水蒸気の吸収の弱い可視光を観測し、光路長が長くなるのに対し、両カメラは水蒸気の吸収の強い近赤外光を観測するため光路長が短くなると考えられる。半値幅については、MAX-DOAS装置が0.4 nm と一番狭く水蒸気の吸収のみを観測することになるのに対し、半値幅が6, 10 nmと広い両カメラは、水蒸気の吸収帯ではない波長も観測するため誤差が大きくなると考えられる。

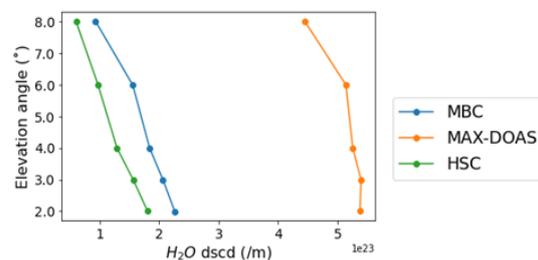


図1. 仰角ごとのdSCDの比較

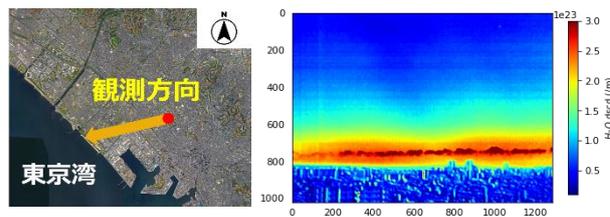


図2. 観測方向とMSCの水蒸気画像

超小型衛星用の高分解能分子評価分光器 (MAHOS) の開発

*中川真秀¹, 山田 崇貴¹, 佐藤 滋¹, 加藤 一郎¹, 西堀 俊幸², 笠井 康子^{1,3}

1: 情報通信研究機構, 2: 宇宙航空研究開発機構, 3: 筑波大

はじめに

地球大気における水蒸気や気温測定、惑星大気の水資源探査を目的として、我々は超小型テラヘルツ波分光センサを開発した。特に300~3000 GHzのテラヘルツ(THz)周波数帯では、マイクロ波と比べて高い周波数分解能を維持したままセンサの小型軽量化を実現可能であり、超小型衛星を開発することで、短期間で多くの打ち上げが可能になる。特に480 GHz帯は水蒸気(H₂O)と酸素分子(O₂)のスペクトルを同時に観測できるという特徴を持つ。この波長域のヘテロダイン分光は大気中の化学物質の時間的・空間的変化を観測可能にする。この小型受信機に搭載可能な低消費電力かつ高分解能の小型FFT分光器(MAHOS: Molecular Assessment High-resolution Observation Spectrometer)を新たに開発した¹。

システム構造

本分光器は小型衛星搭載用の一辺50 cmの立方体形状、低重量(<10 kg)、低消費電力(<30 W)の超小型テラヘルツ波受信機に搭載することを想定して開発した(図1a)。ミキサ検出部でヘテロダイン検波し、最終的に中間周波数(IF: 5.5~6.5 GHz)にダウンコンバートさせてMAHOSで測定を行う。本研究で開発したMAHOSの略図(図1b)と仕様(表1)を示す。内部システムはfield programmable gate array (FPGA)等がプリント基板上に配置されており、黒く塗装したアルミニウム合金製筐体中に固定されている。間欠動作により消費電力が5~10Wと可変である。

システム性能

MAHOSの周波数安定性、信号感度、入力応答、アラン分散に関する室内実験で性能評価を行った。信号発生源による入力信号応答から、ダイナミックレンジ約95 dB範囲で直線性を保ち、受信機からMAHOSに入力される想定される観測信号強度をカバーする。ノイズソースとアンプを用いて、MAHOSのアラン分散を測定

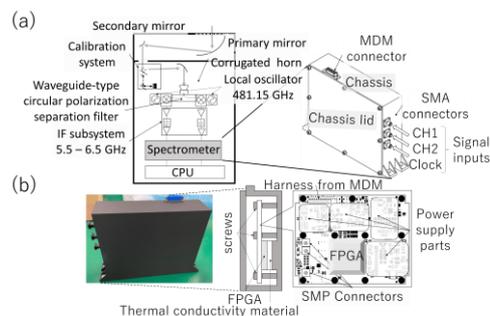


図1 (a)小型衛星受信機の概要とMAHOS外観
(b)MAHOSプロトタイプ写真と内部概要

した。図2に5.8 GHzで取得したノイズ振幅のアラン分散を示す、約1200秒の信号平均化を達成した。また、構造・熱解析により打ち上げ時に耐えうる剛性と安定性を確保した。本発表ではこれらの結果も合わせて報告する。

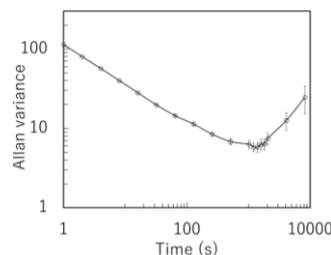


図2 FFTスペクトロメーターのアラン分散 (5.8 GHz)

参考文献

¹ Nakagawa et al. (2021), DOI:10.1109/JMASS.2021.3093549.

謝辞

本研究は総務省の電波資源拡大のための研究開発(JPJ000254)によって実施した。

表1 MAHOSの仕様

	要求値	仕様値
体積 (m ³)	0.150 × 0.120 × 0.040 (±0.005)	0.154 × 0.125 × 0.040
重量 (kg)	< 1.0	0.70
消費電力 (W)	最小 5	間欠動作により 5~10
周波数範囲 (GHz)	5.5 - 6.5	5.33 - 6.65 (BPF 5.5 - 6.5)
ダイナミックレンジ (dB)	30	30 <
周波数	周波数チャンネル	16,384
分解能	チャンネル間隔 (kHz)	81.25
(kHz)	サンプリング周波数 (Gs/s)	2.6624

大気中微量水素の安定同位体比測定法開発

*杉本颯馬¹, 豊田栄¹, 山田桂太¹

1:東京工業大学 物質理工学院

1. 研究背景・目的

大気中に約500 ppbの低濃度で存在している気体成分である水素は主に化石燃料やバイオマスの燃焼、炭化水素の酸化などの人為的要因、あるいは海洋からの放出や窒素固定などの自然的要因によって発生する。また、土壌吸収や大気中OHラジカルによる酸化が主な消滅過程であることが知られている。近年、水素は二酸化炭素を排出しないエネルギー源として注目されており、将来の温室効果ガス排出量削減のためにも用途の拡大が期待されている。

一方で、水素需要の増大に伴って予想される大気への水素漏洩によって、地球温暖化が間接的に促進される可能性が指摘されている。したがって、今後増加が予想される人為起源水素の大気化学的影響を正確に見積もるために、現在の水素の循環過程を全球規模で解明する必要がある。

物質循環を定量的に把握する有効な手法の一つに、安定同位体比測定が挙げられる。水素の場合、安定同位体比は以下の式(1)によって算出される。

$$\delta D [\text{‰}] = \frac{R_{\text{Sample}} - R_{\text{VSMOW}}}{R_{\text{VSMOW}}} \times 1000 \quad R_x = \frac{D_x}{H_x} \quad (1)$$

(VSMOW : ウィーン標準平均海水)

また、1 ppm 未満の微量水素試料を測定するためには、分析装置に導入する前に気体試料から水素のみを分離し、低温で濃縮する前処理が必要となる。前処理過程は Rhee(2004)、Kawagucci(2010)、Komatsu(2011)らによって既に検討がなされているが、前処理系の低コスト化や測定時間の短縮、測定精度の向上は依然として重要な課題である。したがって本研究では構造を簡略化した前処理系を作製し、水素の安定同位体比を 30 分程度の短時間かつ ±5%以内の精度で測定することを目指す。

2. 実験方法

図1に前処理系の概略図を示す。分離部であるカラム1にモレキュラーシーブ3A、濃縮部であるカラム2及びカラム3にモレキュラーシーブ5Aを充填剤としてそれぞれ使用した。バルブの開閉によって流路を限定することができ、今回はカラム3の評価を行うために図1実線部の流路に導入した試料をガスクロマトグラフ-同位体比質量分析計(GC-IRMS)で分析した。まず、導入した水素が十分な精度で検出されることを確認するために、ヘリウムで2%に希釈した水素試料を用いて模擬測定を行った。さらに、比較的濃度の高い試料の一例として、当研究室が2014年3月に畜産草地研究所にて採取した乳牛呼気試料の測定を行った。

各試料の測定ではキャリアガス流量を2.0 mL/minに設定し、カラム3を液体窒素に浸した状態で試料を導入した。その後、実験的に求めた最適冷却時間(7分)を経て液体窒素から熱湯に切り替えた。この操作によってトラップされた水素を同位体比質量分析計へ導入して、ピーク面積及び安定同位体比を測定した。なお、乳牛呼気試料の測定では、試料体積を1 mLに固定した。

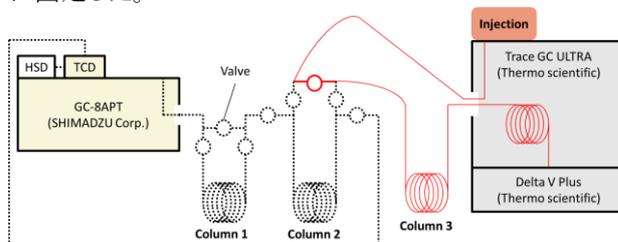


図1 前処理・分析装置概略図

3. 実験結果

図2に模擬測定における水素導入量、ピーク面積、安定同位体比を示す。体積を調節して導入した水素試料に対してピーク面積は良好な直線性を示した。また、 δD は導入量1.5~74.4 nmolの全データ(n=24)で $-193.0 \pm 6.5\text{‰}$ 、導入量7.4~74.4 nmolのデータ(n=18)で $-193.6 \pm 4.2\text{‰}$ となった。

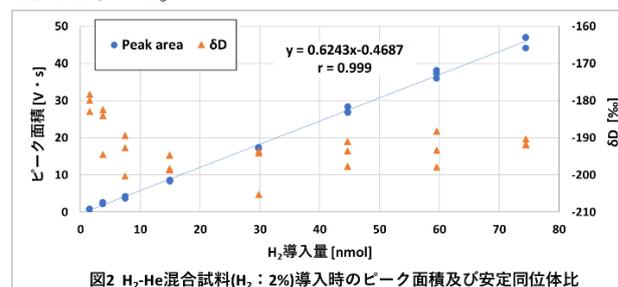


図2 H₂-He混合試料(H₂: 2%)導入時のピーク面積及び安定同位体比

一方で、乳牛呼気試料の δD は試料濃度10.6~17.1 ppmの全試料(n=8)で $-684.7 \pm 31.8\text{‰}$ 、14.8~17.1 ppmの試料(n=6)で $-688.7 \pm 6.8\text{‰}$ となった。本実験では先行研究で報告されている主要水素発生源における δD と比較して低い値となり、Walter(2012)らが報告した微生物由来水素の δD と類似する結果となった。

4. 今後の展望

10 ppmを超える濃度の水素試料において、安定同位体比測定が可能となる濃縮を行うことができた。より低濃度の水素試料の分析では、試料導入体積を増やして分離・濃縮を行う必要がある。したがって、今後は図1点線部のカラムを含む系全体での前処理過程の検討を行う。その場合に、冷却時間やキャリアガス流量などの諸条件を最適化することが新たに課題となる。

Single-Particle Extinction and Scattering法を用いた サブミクロン鉱物ダスト粒子の検出

*吉田淳¹, 茂木信宏², 足立光司³, 丑久保裕太²

1:国立極地研究所, 2:東京大学, 3:気象研究所

1. はじめに

土壌の風食によって発生する鉱物ダストエアロゾルは、大気放射と相互作用したり、雲凝結核や氷晶核として働いたり、海洋生態系に微量栄養素を供給したりするので地球気候において重要な役割を持つ。したがって鉱物ダストエアロゾルの観測データを蓄積することは、その気候影響を理解するために重要である。しかし、鉱物ダストエアロゾルの粒径分布といった微物理を高時間分解能で測定する方法は確立されておらず、気候影響評価をするために必要な質の観測データを蓄積することが現状では難しい。

本研究では近年開発が進んできているSingle-Particle Extinction and Scattering (SPES) 法¹が鉱物ダスト粒子の検出および粒径の定量に利用できるかどうか検証を行った。SPES法は固体粒子にレーザー光(632.8 nm)を照射することで発生する前方散乱光を測ることで、サブミクロン粒子の複素散乱振幅 S_{22} という物理量を高時間分解能で測定することができる。 S_{22} は粒子の複素屈折率や粒径に依存するので、成分の異なる粒子を分類してその粒径を測定できると期待される。

2. 研究方法

様々な成分の固体粒子を水に分散させてSPES法で測定することで、粒子成分ごとにどのような S_{22} の値をもつか調べた。鉱物ダストは石英や粘土鉱物といった透明なケイ酸塩鉱物が主成分である一方、酸化鉄といった有色鉱物が副成分として存在する。そこで、本研究では高純度の石英試薬と酸化鉄試薬を測定した。環境中の鉱物ダスト試料についてはKGa-1b、NX illite、アリゾナテストダスト(ATD)、ゴビ砂漠の砂を測定した。

大気環境中の固体粒子には鉱物ダストのほかにブラックカーボン(BC)や生物粒子が存在する。そこで本研究では、BCの標準物質としてfullerene sootを、生物粒子の標準物質としてバクテリアが原料であるSnomax®を用いて S_{22} 測定を行った。

3. 結果と考察

図1ではサンプルごとの主要な S_{22} データ点(ReS_{22} , ImS_{22})の分布をまとめている。粒子成分ごとに様々な ImS_{22}/ReS_{22} 比をもっており、これはサンプル間の複素屈折率の違いを反映している¹。

約9割以上の鉱物ダスト粒子は石英試薬と似た分布を示していることが分かった。これらの粒子はケイ酸塩

鉱物であると考えられる。残りの鉱物ダスト粒子は高い ImS_{22}/ReS_{22} 比を持っており、酸化鉄試薬と似た分布を示していることが分かった。これらの粒子は酸化鉄のような光吸収性の強い鉱物であると考えられる。光吸収性の強いfullerene sootの S_{22} データ点も酸化鉄粒子のような高い ImS_{22}/ReS_{22} 比を持っている。また、Snomax粒子の S_{22} データ点分布はケイ酸塩鉱物粒子の S_{22} データ点分布よりも低い ImS_{22}/ReS_{22} 比を示しており、これはSnomaxの構成成分であるバクテリアの屈折率の実部がケイ酸塩鉱物に比べて低いことを反映していると考えられる。

図1から分かるように、ケイ酸塩鉱物の S_{22} データ分布はfullerene sootとSnomaxのデータ分布とほとんど被っていない。これは、鉱物ダスト、BC、生物粒子が混合しているような環境試料をSPES法で測定したときに、鉱物ダストの主成分であるケイ酸塩鉱物粒子を検出できることを示唆している。発表では、 S_{22} 平面上におけるケイ酸塩鉱物粒子のデータ点の抽出や、抽出されたデータ点から粒径分布や形状を推定した結果についても述べる予定である。

引用文献

¹Moteki, N., *J Quantitative Spectrosc Radiat Transf*, 243, 106811, 2020.

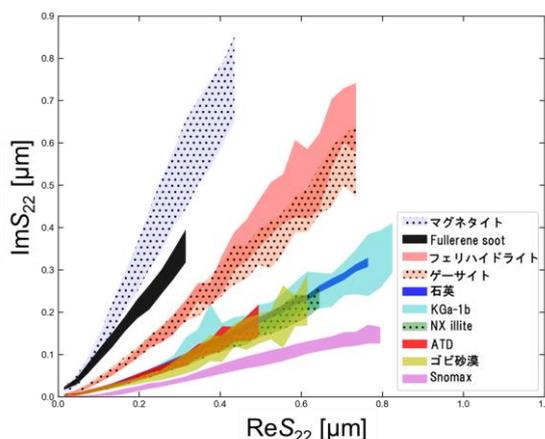


図1 複素散乱振幅 S_{22} の測定データ分布。各サンプルについて ImS_{22} の 25-75 パーセンタイル領域を塗りつぶしている。

SPES法に基づく名古屋都市大気の非水溶性エアロゾルの観測

*大畑祥^{1,2,3}, 茂木信宏⁴, 川中子ひかる³, 足立光司⁵, 當房豊^{6,7}, 持田陸宏^{1,3}

1: 名大宇宙地球環境研, 2: 名大高等研究院, 3: 名大院環境, 4: 東大院理, 5: 気象研, 6: 国立極地研, 7: 総合研究大学院大学

はじめに

鉱物ダストや生物起源一次粒子などの非水溶性エアロゾルは、大気中の主要なIce Nucleating Particles (INPs)と考えられている。しかし、非水溶性エアロゾルの種別を特定して粒径別数濃度を測定する手法は、黒色炭素(BC)など一部の種別を除き確立されておらず、その動態やINPsへの寄与の理解は不十分である。

近年、水中に分散した個別粒子にレーザーを照射し、その入射光と前方散乱光の干渉から、粒子の体積や複素屈折率の情報を取得する機器が開発された(Moteki, 2020; 2021)。この手法は、主にサブミクロン粒子を分析対象としたSingle-Particle Extinction and Scattering (SPES)法や、SPES法の検出粒径範囲を拡張し理論的基礎付けがされたComplex Amplitude Sensing (CAS)法と呼ばれている。

本研究では、名古屋においてポリカーボネートフィルタに採取した大気エアロゾルを純水に分散させ、非水溶性粒子をSPES装置で分析した。得られた信号の特徴から、検出された粒子をBC-like、Dust-like、Bio-like粒子に分類し、それぞれの気粒子数濃度の変動を明らかにした。また、既存のエアロゾル測定器による観測を同時に行い、SPES装置を用いたフィルタ分析手法の検証とデータの解釈に利用した。

観測の概要

場所: 名古屋大学東山キャンパス

期間: 2021年4月27日-2021年5月20日

機器: オフライン分析(1-3日毎の試料分析)では、SPES装置で非水溶性エアロゾルの数濃度を測定し、電子顕微鏡(SEM)で粒子の形状や元素を分析した。オン

ライン分析では、Single Particle Soot Photometer (SP2)でBCの粒径別数濃度を測定し、Optical Particle Sizer (OPS)で全エアロゾルの粒径別数濃度を測定した。

結果と考察

SPES装置で各粒子に対して得られる複素前方散乱振幅(S_{22} ; 複素数)の実部と虚部の散布図の特徴から、BCと推定される粒子のデータを抽出した。それ以外の粒子は、球形を仮定し、レーザー波長(633 nm)に対する複素屈折率の実部が1.45-1.60の範囲の粒子をDust-like、1.33-1.40の範囲の粒子をBio-likeと判別した(複素屈折率虚部は0を仮定)。各粒子群の粒径範囲は、体積等価粒径で、BC-like: 0.3-0.7 μm 、Dust-like: 0.4-1.2 μm 、Bio-like: 0.5-2.0 μm 程度と推定された。

BC-like粒子の数濃度は、SP2で測定されたBC数濃度(粒径0.32-0.65 μm)と高い相関があり($R = 0.92$)、濃度の絶対値も概ね一致している(原点を通る回帰直線の傾きが0.69)ことから、SPES装置を用いたフィルタ試料分析の妥当性を支持する結果が得られた(図1左)。

Dust-like粒子の数濃度はOPSの粗大粒子数濃度と相関し($R = 0.81$)、採取日に5月9日を含む試料の濃度が最も高く(2.6 cm^{-3})、それ以外の期間平均の4.6倍であった(図1右)。この日は顕著な黄砂の飛来があり、電子顕微鏡分析により円相当径0.6 μm 以上の粒子の90%がAl, Siを含む鉱物ダストであることが明らかになった。

今後、Bio-like粒子の数濃度変動の解釈や、各粒子群のINP数濃度への寄与分析も進める予定である。

引用文献

N. Moteki, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 243, 106811, 2020.
N. Moteki, *Opt. Express*, 29(13), 20688-20714, 2021.

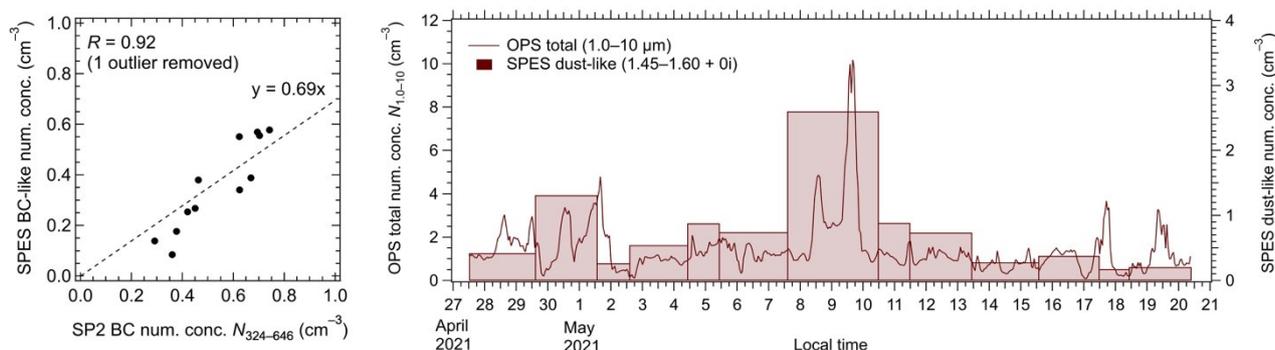


図 1. (左) SP2 で測定された BC 数濃度(粒径 0.32-0.65 μm)と SPES 装置で推定された BC 数濃度(粒径 0.3-0.7 μm 程度)の散布図。1 点の外れ値を除いてある。(右) OPS で測定された全エアロゾル数濃度(粒径 1.0-10 μm)と SPES 装置で推定された鉱物ダスト数濃度(粒径 0.4-1.2 μm 程度)の時系列。

微量元素含有エアロゾルの高時間分解能観測と個別粒子解析

*木名瀬健^{1,2}, 足立光司¹, 林政彦³, 原圭一郎³, 西口講平⁴, 梶野瑞王¹

1:気象研究所, 2:海洋研究開発機構, 3:福岡大学, 4:京都大学

1. 背景

直径2.5 μm 以下の大気中微粒子(PM_{2.5})には遷移金属など様々な微量元素を含有するものが存在し、人体に悪影響を及ぼす。グローバルモデルでは、2010～2015年に3.3～4.2百万人がオゾン・PM_{2.5}による大気汚染で亡くなり、2050年には6.6百万人が命を落とすと推定している。PM_{2.5}、特にナノ粒子は呼吸器を通じて人体深くに侵入・沈着、体内で活性酸素やラジカルを生成し、細胞に酸化ストレスを与える。さらに100nmよりも微小な粒子は、血管を通り抜けて様々な臓器に到達し影響することが示唆されている。

PM_{2.5}による酸化ストレス影響を理解するためには、微量元素存在量と粒子性状の両方を理解することが重要である。過去の研究でも様々な微量元素濃度が観測されてきたが、時間分解能は1日程度であり、短時間で起きる挙動は観測例が少ない。他研究では、微量元素を含むPM_{2.5}は長期暴露だけでなく、短期暴露でも人体に影響することが示唆されており、短時間における各種微量元素濃度の挙動の把握は重要である。さらに、微粒子が体内で引き起こす化学過程理解には粒子の物理・化学的性状が重要となるが、微量元素を含む微小粒子の観測例は少なく、元素によっては観測例がない。

本研究では、GED-ICP-MSを利用してPM_{2.5}中の微量元素濃度の増減を分単位で把握し、同時に透過型電子顕微鏡(TEM)を利用した個別粒子解析を行って、観測例が少ない、もしくは観測例がない微量元素を含むエアロゾル粒子の性状理解を目指す。

2. 観測手法

観測は福岡大学キャンパス内にて、2018年1月25日～2月8日(冬季)と5月9日～31日(春季)の二期間で行った。サイクロンで外気から粗大粒子を除去し、ガス交換機(GED)を接続した誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)を利用して、PM_{2.5}中の各種元素濃度を観測した。通常ICP-MSは外気中の粒子を直接導入できないが(Arガス雰囲気化にする必要があるため)、本観測ではGEDにより粒子が浮遊したまま空気をArガスに変換、直接ICP-MSに導入し、リアルタイムで多種元素の増減を観測した。同時に採取したフィルター試料を定量し各元素のシグナルを換算することで、分単位での多種元素観測を実現している。

また、TEM分析のための試料は2段式インパクターで3時間ごともしくは1時間ごとに採取した。サンプリングにはCuグリッドを主に用い、Cu含有粒子の検出のために

一部期間でMoグリッドも使用した。微小粒径ステージ(50%カットオフ粒径が100～700nm)の試料を用い、一視野(STEMモードで8000～10000倍)あたり100個程度の粒子について、TEMでの粒子観察と、STEM-EDSでの元素分析を行った。硫酸塩などと内部混合した粒子の場合、分析の際に電子線に弱い成分(硫酸塩など)が消失し、比較的強く、電子線に強い結晶状態の微量元素を含む粒子が現れる。本分析では同じ視野で2回分析を行うことで、微量元素を含む粒とそれを内包する粒子の各々の物理・化学状態を分析した。さらに、様々な粒子が内部混合した大きな粒子(数 μm)も個別に分析し、全分析を通じて13000個以上の粒子を分析した。

3. 結果

全期間を通じて、GED-ICP-MSは44種の元素を検出しその変動をとらえ、Fe、Zn、Pbをはじめとした多くの元素で、大陸からの空気塊を観測した際に高濃度化する様子が観測できた。平均大気中濃度が1(ng/m^3)よりも低濃度の微量元素では、Co、Ga、Ge、As、Rb、Y、Mo、Ag、Cd、In、Sn、Sb、Te、Cs、La、Tl、Bi、U濃度が大陸からの気塊を観測した際に高濃度となった。

本発表では特に、大気中濃度において高い相関関係を示した元素(Zn-Pb、V-Ni、As-Cd、Ga-Rb-Cs)や、報告例が稀、もしくは未報告の微量元素(Mo、Tl)に着目し、これらの元素を含む微粒子の存在形態について紹介する。

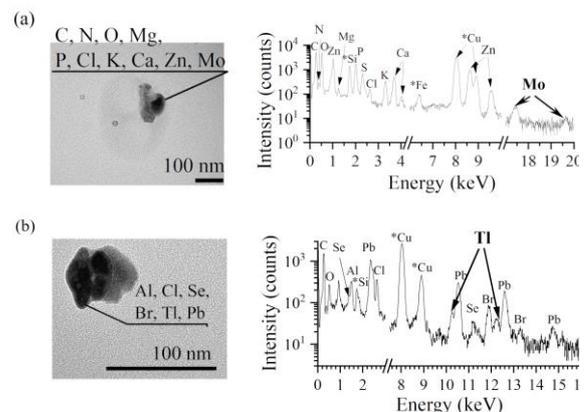


図1 (a)Mo含有粒子と(b)Tl含有粒子の電子顕微鏡写真とEDSスペクトルの例。

多数の小型センサを用いた長崎「精霊流し」行事における 爆竹起源PM_{2.5}の時空間変動の計測

*鐘ヶ江健太¹, 中山智喜¹

1:長崎大学大学院 水産・環境科学総合研究科

はじめに

爆竹や花火の使用に伴うPM_{2.5}の放出は、周辺地域の大气環境や参加者・観覧者の健康に影響を及ぼしている可能性がある。例年8月15日に開催される長崎県の精霊流しは、国内で最も多くの爆竹が使用される行事である。本研究では、長崎市中心部の爆竹の使用が多いと予想される主要ルートの周辺で、小型PM_{2.5}センサを用いた多地点およびモバイル観測を実施した。PM_{2.5}の時空間変動を捉えるとともに、得られたデータに大気拡散モデルを適用して、爆竹使用由来のPM_{2.5}放出量を推定した。

実験方法

2019年8月15日に開催された精霊流しにおいて、光散乱式小型PM_{2.5}センサ(Nakayama et al. 2018)を搭載した固定型計測器10台を精霊流しのルート周辺に設置し、2分毎にPM_{2.5}の重量濃度の測定を行うとともに、モバイル型計測器8台を携帯して、4つのコースを30分毎に歩き、1分毎に測定した。

結果と考察

図に、得られたPM_{2.5}の30分毎の濃度分布の変化を示した。ルートが車両通行止めになり、精霊流しが本格的に実施された18:00以降に、PM_{2.5}濃度が顕著に増加し、2分平均値が最大686 µg/m³に到達した。また、大規模に爆竹を使用するグループの移動に伴って、時間の経過とともに、高濃度測定点がルートに沿って移動している様子が確認できた。

ルートの風下側のPM_{2.5}濃度は、ルートからの距離の増加につれて減少していた。そこでプリュームモデルおよび拡散モデルを適用し、精霊流しルートからのPM_{2.5}の放出フラックスを推定したところ、単位時間・ルートの単位距離あたり、280~480 mg/m・sと推定された。また、観測時にルートを通じた精霊船と長崎市全体で流された台数を考慮すると、長崎市全体の爆竹由来の放出量はおよそ19~32 kgと推定された。

謝辞

計測器の開発にご協力頂いた名古屋大学の松見豊教授およびパナソニック・ライフソリューションズ社、計測器の設置・測定にご協力頂いた住民の皆様ならびに研究室所属学生(上野彩音氏、大石雄太氏、新拓実氏)に感謝いたします。

参考文献

Nakayama, T., Matsumi, Y., Kawahito, K., Watabe, Y. (2018). Development and evaluation of a palm-sized optical PM_{2.5} sensor, *Aerosol Sci. Technol.* **52**, 2-12.

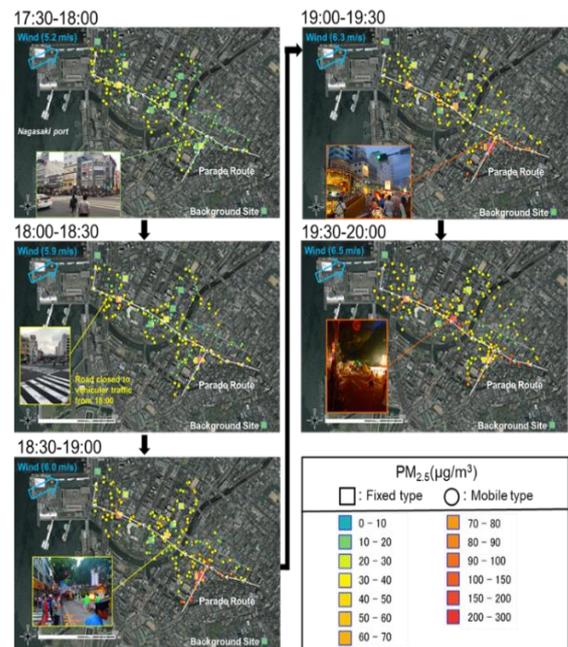


図 長崎市中心部における精霊流し期間中のPM_{2.5}の時空間的変動

再解析エアロゾルデータの精度検証に基づく インドシナ半島の光散乱/吸収AODの時空間変動

*大野健¹, 入江仁士¹, Arlindo M da Silva²

1: 千葉大学環境リモートセンシング研究センター, 2: NASAゴダード宇宙飛行センターGMAO

はじめに

エアロゾルは直接光を吸収または散乱することによる直接効果だけでなく、雲の凝結核または氷晶核として作用して雲特性を変化させる間接効果によっても地球の気候変動に影響を与える。さらに、光を散乱/吸収することによって大気質を悪化させるだけではなく、健康にも悪影響を及ぼす。バイオマスバーニング(BB)はエアロゾルの重要な発生源の一つである。しかしながら、BBから発生するエアロゾルの光学特性の理解は不十分である。大規模なBBが発生する世界有数の地域の一つにインドシナ半島(Indochina peninsula; ICP)が挙げられる。ICPでは乾季の10月—5月にBBが活発となる。さらに、ICP中央に位置するタイ・ピマイでは東アジアから人為起源エアロゾルの輸送が確認されており(鶴田ら, 2008, 2009)、BBの影響と相まって複雑となっている。したがって、ICPにおけるエアロゾルの定量的理解は挑戦的であるが、エアロゾルの包括的な理解のために必要不可欠である。

研究目的

本研究では時空間的に均質な再解析エアロゾルデータのModern-Era Retrospective analysis for Research and Applications, Version 2(MERRA-2)を活用し、BBと人為起源エアロゾルの影響を受けるICPのAOD・光吸収と散乱AODの時空間変動を定量的に解明することを目標とする。

使用データと解析方法

本研究で使用した再解析エアロゾルデータはNASAのMERRA-2である。初めに、SKYNETピマイサイト(15.184°N, 102.564°E)に設置されている地上観測機器からのデータで精度検証を行った。使用したデータは、スカイラジオメーターのAODと光吸収AOD(AAOD)、Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy(MAX-DOAS)の地上付近(0—1 km)のエアロゾルの消散係数(Aerosol Extinction Coefficient; AEC)である。期間はスカイラジオメーターとMAX-DOASで、それぞれ2009—2019年と2014—2019年の9—15時の1時間平均値で、MERRA-2のデータも観測に合わせて同様の期間と時間を使用した(ただしMERRA-2 AECは3時間毎のデータ)。なお、AODとAAOD、AECはMERRA-2の波長に合わせて、AODとAAODは550 nm、AECは532 nmに波長変換をしたデータを用いた。

時空間変動の解析は、精度検証の結果を考慮して解

析を行った。その際、MERRA-2のAODと5種類のエアロゾルAOD(BCとOC、ダスト、海塩、硫酸塩で、それらの和が全AOD)を用いた。

結果・考察

ピマイにおける精度検証では、地上観測とMERRA-2の3つの光学パラメータ(AODとAAOD, AEC)の間に正の相関が得られた($R=0.86, 0.76, 0.69$)。しかしながら、乾季のMERRA-2は過小評価しており、AODとAAOD、AECでそれぞれ-18%と-43%、-68%であった。BBが活発な乾季では、MERRA-2の全AODに対する光吸収性エアロゾルの割合が高いため、地上付近の光吸収性エアロゾル(OCやBC)が過小の原因である可能性がある。これらの精度検証の結果はBBの影響を受ける地域における再解析エアロゾルデータの再現性向上に役立つことが期待される。

次に、MERRA-2の過小評価と考えられる乾季では、①OC AODが過小、②OCとBC AODが同程度過小の2パターンでMERRA-2 AODの補正を行った。そして、MERRA-2 AAODにも同様の補正を施し、観測値との一致度を表す統計的指標を用いた評価を行った。その結果、②の補正によってAAODのバイアスが減少し、MERRA-2 AAODの過小評価が-43%から-26%へ低減した。ピマイにおける①②の補正をICPに適用させた際のAODを図1に示す。乾季はOC AODの割合が支配的なため、2パターンの補正の違いが一部地域(タイ・バンコクなど)でしか見られなかったが、補正前と補正後(①と②)では、5.3%—16.0%の差が見られた。

また本発表では、ICPの空間分布に加えて、トレンド解析についても紹介する予定である。

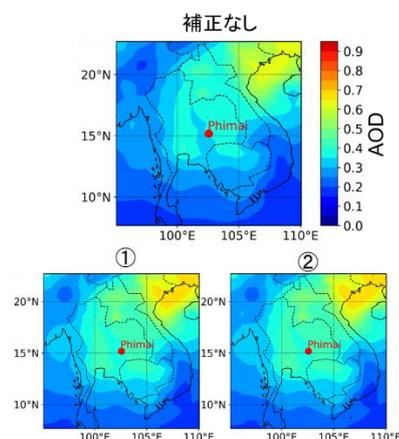


図1 ICPにおける乾季のAOD。補正前(上)、OCのみの補正(左下①)、OCとBC同程度の補正(右下②)。

都市域豪雨事例に注目した大気汚染物質が雲微物理過程および化学特性に及ぼす影響の推定

*梶川友貴^{1,2}, 梶野瑞王^{3,4}, 大河内博², 須合俊貴², 内山竜之介², 荒井豊明⁵

1:筑波大学生命地球科学研究群, 2:早稲田大学創造理工学研究科,
3:気象庁気象研究所, 4:筑波大学生命環境系, 5:トランステック株式会社

1. 背景・目的

都市における短時間かつ局地的な豪雨(以降:UHR)のメカニズムについては, 化学・安定同位体分析およびGISの活用に基づく都市型豪雨生成機構が提唱されている[1,2]. これらの報告によれば, ①UHR発生地点において直前にNO_xやSO₂濃度の減少およびO_xやPM_{2.5}濃度の上昇が確認され, ②UHR初期降水において酸性物質の湿性沈着フラックスが他の降水時に比較して高いことが確認されている. 以上の報告をまとめると, 「都市域における人為的な大気汚染物質を起源とする二次生成無機/有機化合物(SIA/SOA)がUHR初期段階において雲凝結核(CCN)として作用している可能性」が示唆されていると言える. しかし, 地上における化学的調査では時空間的な変動を有する気象現象及び大気汚染物質の生成/消失/反応等を定量的に議論することが困難である.

本研究では, 人為起源のSIAやSOAをCCNとして気象場にフィードバックすることができる気象化学モデルを用いて, 大気汚染物質がUHR事例時の大気質組成や降水組成に及ぼす影響等について検討した.

2. 方法

本研究では, 特にUHR事例の発生頻度が比較的高く, かつ先行研究[2]において降水試料の採取・各種化学分析が行われた2018年8月の東京都市圏を対象とした. なお, 各計算には, 5日間のスピンアップ期間を事前に設けた. 気象化学モデルとしてはOnline_NHM-Chemのエアロゾル5カテゴリ法を使用した[3]. 化学場については, 大陸の大気汚染の影響を考慮し, 東アジア域(45km, 137×92), 日本域(9km, 72×57), 関東域(3km, 102×102)の順にネスティングを行い, 関東域の気象場については, 初期値及び境界値にメソ客観解析値(MANAL)を与えた. また, UHR事例時の化学場における人為起源のSIA/SOAの寄与を検討するために, 国内人為起源の排出量を20%削減した感度解析(ANTH0.8)を実施し, コントロール実験(CTL)からの差分を5倍にした, ソースレセプター解析も行った. 大気汚染物質の排出量データとして, 人為起源はREASv3.1とEAGrid, バイオマス燃焼はGFEDv4, 植物起源はMEGANv2.1, 火山起源はAndres and Kasgnoc (1998), Kajino et al. (2018)を用いた. また, 化学スキームの設定はいずれも先行研究[3]と同じものを使用した.

また, モデル再現性の検証のために, 環境省大気汚

染物質広域監視システムの各濃度データと, 早稲田大学西早稲田キャンパス51号館屋上(65 m, 以下WSD地点)に設置したTSI社製DUSTTRAK™ ENVIRONMENTAL MONITOR (model 854030)によるPM_{2.5}質量濃度データ(2分値)および先行研究[2]による降水イベント毎の主要無機イオン沈着量データを使用した. また, モデルのPM_{2.5}濃度は誤差関数によって算出し, ダスト混合物および海塩粒子混合物の化学組成についてはSong and Carmichael (2001)に倣って仮定した. 尚, 降水に関する解析は東京都区部(35.5°N-35.9°N, 139.5°E-140.0°E)領域を対象とした.

3. 結果

モデルの再現性について, WSD地点においてPM_{2.5}質量濃度で検証を行った結果, CTL実験において概ねトレンドは再現されているものの過大に評価する傾向にあった(相関係数0.61, 回帰係数1.55, y切片7.96 μg/m³). この原因の1つとして, PM_{2.5}の過剰分(PM_{2.5, CTL}-PM_{2.5, Obs.})とソースレセプタ法によって求めたPM_{2.5}中NO₃濃度には非常に高い相関(0.93)が有意(p<0.05)に確認されている. また, CTL実験, ANTH0.8実験ともに15回の降水イベントが発生し, 内3回のUHR事例が得られた. 尚, 両実験間の各降水イベントにおける領域降水量と最大降水強度について有意な差は認められない(p<0.05).

本発表ではこれらUHR3事例に注目し, 上記の再現性を考慮した上で, UHR時の湿性沈着過程についても報告する予定である.

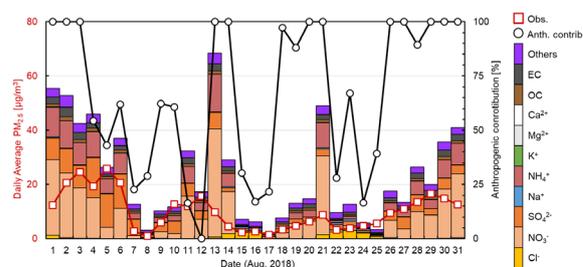


図1 日平均PM_{2.5}濃度(棒:モデル, 赤折線:観測)とその化学組成および人為起源寄与率の推定(黒折線)

主要参考文献

- [1] Uchiyama et al., 2019, *BUNSEKI KAGAKU*, **69**, 45-68. (in Japanese)
- [2] Sugo et al., 2020, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **55**, 101-115. (in Japanese)
- [3] Kajino et al., 2021, *Geosci Model Dev.*, **14**, 2235-2264.

C2クリーギー中間体が関与する大気反応過程の研究(2)

*川越博之¹, 坂本陽介^{2,3}, 猪俣敏⁴, 廣川淳⁵

1:北大環境科学院, 2:京大地球環境学堂, 3:京大院人間・環境学研究科, 4:国立環境研究所, 5:北大地球環境科学研究院

緒言

トランス-2-ブテンのオゾン分解から生成する安定化クリーギー中間体 CH_3CHOO (以下 C_2SCI) には水蒸気との反応性が高い *anti* 体および水蒸気との反応性が低い *syn* 体の 2 種類の配座異性体がある (図1)。近年, *anti* 体は H_2O だけではなく, その二量体(H_2O)₂ との反応性も高いことが減圧条件下の反応速度測定から示唆されている。

我々は, C_2SCI とギ酸, 水蒸気との相対的な反応性を対象とした実験室研究を行い, *anti* 体と(H_2O)₂ との反応を含んだ解析を通して, これらの反応の大気圧条件下における速度定数の情報を求めた。

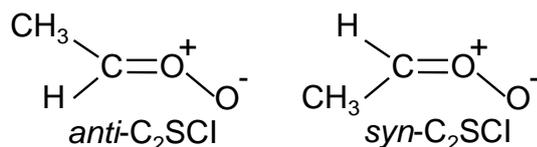


図1 C_2SCI の構造

実験

20°C, 大気圧条件で長さ 80 cm, 内径 4 cm のガラス製フローチューブ (FT) を用いて実験を行った。FT へトランス-2-ブテン, オゾン, ギ酸, 水蒸気, OH ラジカル捕捉剤としてシクロヘキサンを導入した。FT 出口からのガスの一部を化学イオン化質量分析計と紫外オゾン濃度計へ導入して分析した。 C_2SCI は, ギ酸および水蒸気 (二量体(H_2O)₂ を含む) との反応により, それぞれ Hydroperoxyethyl formate (HPEF) (図 2) および 1-Hydroxyethyl hydroperoxide (HEHP) (図 3) を生成する。

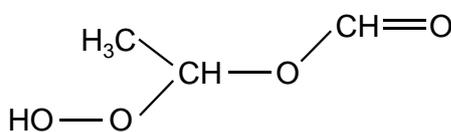


図2 HPEF の構造

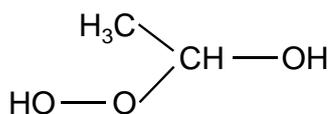
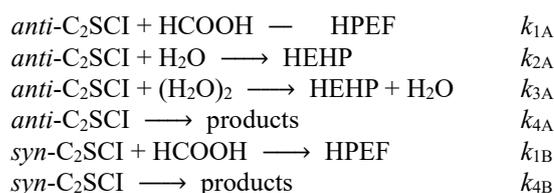


図3 HEHP の構造

syn 体と水蒸気, 水二量体との反応は無視できると仮定し, 以下の 6 つの反応に基づいて速度論的に解析した。



ここで products は単分子分解等の生成物を, k は各反応の速度定数を表す。

結果と考察

まずギ酸を導入せず, 水二量体の反応が無視できる低湿度条件 (相対湿度 $\text{RH} < 1.7\%$) で水蒸気濃度を変化させる実験を行い, k_{4A}/k_{2A} を決定した。また, 同様の低湿度条件で水蒸気濃度を固定し, ギ酸濃度を変化させる実験を行い k_{1A}/k_{2A} を決定した。次に, 水蒸気濃度を固定し, ギ酸濃度を変化させる実験を, $\text{RH} 3 \sim 62\%$ の範囲で行い, 水二量体の反応を含めた解析から k_{3A}/k_{2A} を決定した。最後に, 得られた速度定数を用いて *syn* 体の速度定数の比, k_{4B}/k_{1B} を決定した。

anti 体と H_2O , (H_2O)₂ との反応速度定数の相対値, k_{3A}/k_{2A} は本研究から $(1.2 \pm 0.1) \times 10^3$ と求められ, 我々が過去に報告した値, $(3.6 \pm 4.3) \times 10^2$ [1] よりも誤差の小さな値を決定することができた (誤差は 2σ)。

減圧条件 (500 Torr) 下, ヨウ化アルキルの光分解で生成した C_2SCI に対して, 先行研究 [2] で報告されている k_{2A} , k_{3A} からは $k_{3A}/k_{2A} = (3.4 \pm 0.7) \times 10^3$ と見積もられる。本研究で得られた値は, この先行研究から見積もられた値の約 3 分の 1 であり, これには安定化クリーギー中間体の生成方法の違いおよび実験条件の圧力の違いが影響している可能性が考えられる。

参考文献

- [1] 川越ほか, 第 24 回大気化学討論会, 蒲郡 (2018)
- [2] Lin et al., *Phys. Chem. Phys. Chem.*, **2016**, *18*, 28189-28197.

大気化学モデルを用いた 大気酸化反応系でのOH反応性予測における 準揮発性有機化合物の不均一消失の影響

*坂本陽介^{1,2}, 佐藤圭², 森野悠², 河野七瀬¹, 梶井克純^{1,2}

1:京都大学, 2:国立環境研究所,

研究背景

OHラジカル(以下OH)の反応性(消失速度)は対流圏オゾン生成および二次粒子生成速に関わる重要な因子である。大気におけるOHの反応性は、多くの場合数十%が未知OH反応性と呼ばれる測定が困難な化学種由来の反応性で占められている。この未知OH反応性の起源は、(1)一次放出される未知物質とその光酸化生成物、(2)既知物質の光酸化で生成する生成物である。大気化学モデルを用いた既知物質の大気酸化生成物の未知OH反応性への寄与の評価が期待されている。

佐藤ら(Sato et al. 2017)はスモッグチャンバーでプロペンと芳香族化合物についてOHを開始剤とした光酸化反応実験を行い、総OH反応性と各種化学成分濃度の測定値と詳細大気化学モデルであるMCM (Master Chemical Mechanism)を比較した。その結果、反応が長時間に及ぶ場合、準揮発性有機化合物(SVOCs)による二次有機粒子生成や壁面への沈着がモデルを用いたOH反応性予測にとって重要である可能性を示した。

本研究では、スモッグチャンバーを用いてSVOCs生成能の異なるイソプレン、 α ピネンおよび*m*-キシレンについて光酸化反応実験を行い、二次有機粒子生成や壁面への沈着を組み込んだMCM計算と比較することで、不均一消失過程のOH反応性予測への影響を評価した。

実験方法

実験は国立環境研究所のスモッグチャンバーを用いて大気光化学反応系(イソプレン、 α ピネンもしくは*m*-キシレン/NO/h ν)で行なった。チャンバー内に乾燥清浄空気と各種反応物(550-780 ppb), NO(200 ppb), 数ppbのメチルナイトライト(CH₃ONO)を添加し攪拌した後、キセノンランプを擬似太陽光として照射しCH₃ONOを光解離させることでOHを生成し実大気と同様の光化学反応を進行させた。チャンバー内での生成物の濃度変化は、多重反射型長光路FT-IRを用いリアルタイム測定を行った。同時にチャンバー内の大気試料を常時採取しレーザー分光法により総OH反応性を測定した。

一方で、二次有機粒子生成や壁面への沈着を組み込んだMCM計算を行い、(Morino et al. 2020)実測されたOH反応性と比較することで、不均一消失過程のOH反応性予測への影響を評価した。

結果と考察

イソプレンの結果において、不均一消失過程を考慮しない場合においても、モデルはOH反応性の実験値をよく再現した。一方で、不均一消失過程を考慮しない場合、*m*-キシレンや α ピネンでは、反応時間が長くなるにつれ実験値とモデル値が乖離した。SVOCs生成能が最も高い α ピネンにおいて、両者の差は三種類の化合物中で最大となった。この結果は、SVOCsのOH反応性予測への不均一消失過程の影響を示している。

図1に α ピネンの酸化反応で二次生成したVOCs由来のOH反応性について実験値とモデル計算との比較を示す。不均一消失過程を考慮した場合、過大評価は残るもののモデルによる実験値の再現性は向上した。SVOCsの飽和蒸気圧の見積もりを標準計算の10倍と仮定して計算した場合、実験値をよく再現した。

以上より、既知物質の大気酸化生成物の未知OH反応性への寄与の評価に大気化学モデルを用いる場合、SVOCsの不均一消失過程を考慮する必要性が示された。大気同様の低濃度条件における検証が今後必要である。また、不均一消失過程の計算におけるモデルバイアスの可能性が示唆され、今後の課題となった。

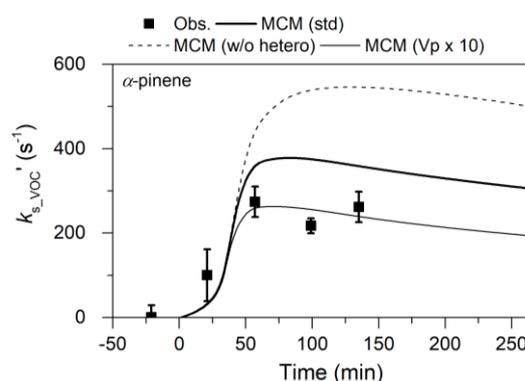


図1 α ピネンの光酸化反応における二次生成有機物由来のOH反応性の時間挙動(■:実験値, 太線:MCM(標準), 破線:MCM(粒子生成・壁沈着無し), 細線:MCM(生成物飽和蒸気圧10倍))

参考文献

Morino et al. *ACS Earth Space Chem.* 4, 1931 (2020).
Sato et al. *Atmos. Environ.* 171, 272-278 (2017).

How do missing OH reactivity and heterogeneous HO₂/RO₂ radicals loss affect ozone production during the 2020 AQUAS (Air Quality Study) Kyoto campaign?

*Li Jiaru¹, Kohno Nanase¹, Sakamoto Yosuke^{1,2}, Murano Kentaro¹, Kajii Yoshizumi^{1,2}

1:Kyoto University, 2:National Institute for Environmental Studies

Background

Tropospheric ozone is hazardous to humans, vegetation, and the ecosystem, which mainly comes from the photolysis of NO₂. The latter are oxidative products of HO_x cycling reactions with the inclusion of VOCs and NO. However, the relationship of ozone and precursors is nonlinear as the reduction of VOCs and NO_x cannot lead to mitigation of ozone in observations. In addition, there are unknown kinetic facts about the HO_x cycle, which is composed of OH, HO₂, and RO₂ radicals. Unknown reactional pathways of OH form more HO₂ and RO₂, which have provided extra sources of ozone after oxidizing NO. Moreover, peroxy radicals might lose due to the aerosols uptake. A field study in a clean city area investigates the HO_x cycle and aims to explore ozone production from the effects of missing OH reactivity and heterogeneous peroxy radical loss quantitatively. This study is the first application of RO₂ radicals loss on ambient aerosols uptake for ozone production analysis.

Methodology

A robust field observation was conducted from Sep 4 to Sep 16, 2020, in Kyoto (KU; 35°01'N, 135°46'E). Total OH reactivity (which equals the inverse of OH lifetime) was measured continuously by laser-pump and laser induced fluorescence technique (LP-LIF), together with ancillary measurements of NO_x, O₃, H₂, CO, and in total 62 VOCs by commercial instruments. Trace species concentrations and corresponding second-order rate constants with OH can be used to estimate calculated OH reactivity, as shown in Eq.1. The difference between total OH reactivity and calculated OH reactivity is named as missing OH reactivity (see Eq.2), which is a parameter for assessing the loading of unknown trace species.

$$k'_{\text{cal}} = \sum k_{i-\text{OH}}[i] \quad \text{Eq.1}$$

$$k'_{\text{miss}} = k'_{\text{total}} - k'_{\text{cal}} \quad \text{Eq.2}$$

HO₂ reactivity from gas-phase reactions and aerosols uptake procedure was detected by another set of LP-LIF, which was run jointly with a versatile aerosol concentration enrichment system (VACES) in two modes: filter-on and filter-off modes. The discrepancy between the two modes refers to the loss rate of HO₂ radicals by aerosols uptake. Isoprene-derived RO₂ reactivity was detected alternately by the same VACES-LP-LIF system as HO₂, which was configured automatically using a three-way solenoid valve.

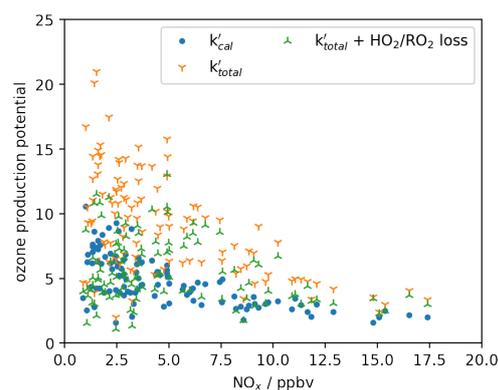
Ozone production analysis concerning ozone

production potential and ozone production regime is discussed here with the effects of k'_{miss} and aerosols uptake. The estimation methods for ozone production potential and regime can refer to ¹ and ², respectively.

Impacts of k'_{miss} and heterogeneous peroxy radicals loss on ozone production

Ozone production potential from k'_{cal} , k'_{total} , and the consideration of heterogeneous radicals loss were compared, as shown in Fig. 1. Basically, missing OH reactivity could enhance the production of ozone especially under low NO_x conditions with a factor of 1.9 on average. In addition, heterogeneous loss of peroxy radicals decreased ozone production, which also indicates larger influences in low NO_x conditions due to comparative competition between aerosols uptake and gas-phase reactions. The heterogeneous effects caused an average reduction of 39%.

Ozone production regimes in three scenarios were analyzed, as a conclusion, both missing OH reactivity and heterogeneous peroxy radicals loss can convert VOC-limited into NO_x-limited regime. The conversion of regime appeared randomly during the observation, specifically on Sep 12, the whole day was changed into NO_x-limited condition. Such alternations emphasize the role of unknown trace species and aerosols uptake effects in ozone formation.



Acknowledgement: This work was supported by the Japan Society for the Promotion of Science (JSPS) KAKENHI (grant nos. JP16H06305 and JP19H04255).

Reference:

1. Li, J. *et al.* Total hydroxyl radical reactivity measurements in a suburban area during AQUAS-Tsukuba campaign in summer 2017. *Sci. Total Environ.* **740**, 139897 (2020).
2. Sakamoto, Y. *et al.* Relative and Absolute Sensitivity Analysis on Ozone Production in Tsukuba, a City in Japan. *Environ. Sci. Technol.* **53**, 13629–13635 (2019).

地上観測データによる国内メタン濃度の経年変化

速水 洋
早稲田大学

1. はじめに

わが国ではメタン (CH₄) 濃度の 1 時間値が、全国 500 弱の大気汚染常時監視局 (以下、常監局) で測定されている。測定法は水素炎イオン化検出器付きガスクロマトグラフ法であり、15 分×4 回や 6 分×10 回の計測値から 1 時間平均濃度が算出され、10 ppbC 単位で記録されている。データは早いところで 1976 年度から蓄積されている。しかしながら、この膨大なデータを解析した事例はわずかしかない (たとえば、Kanaya et al., 2021)。著者は昨年度の討論会において、このデータの有効性について予備的な検討を行い、国内メタンインベントリ高精度化に活用可能なことを確認した (速水, 2020)。前報は各種データの揃う 2015 年の 1 年間のみ検討対象であったので、今回はこれを拡張して経年な変化を中心にさらに検討を進めた。

2. 方法

常監局データは国立環境研究所の環境数値データベース (<http://www.nies.go.jp/igreen/>) より、入稿時点で入手可能な 2009~2018 年度のデータをダウンロードした。2008 年度以前は 22 都府県のデータが申請により入手可能であるが、所管自治体への個別申請が不要な 16 都府県のみを国立環境研究所環境情報部より入手した。後者は 1976 年度からのデータを含むが、初期の頃は最小単位が 100 ppbC であったり上限値の低いものや異常値と思われるものがあり、注意を要した。常監局は居住地などに偏在することから、比較対象として気象庁による遠隔地のデータ (<http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/data/report/data>) も参照した。

水田や湿地からのメタン排出量は、陸域生態系モデル VISIT による推計値 (伊藤, 2021) を利用した。公開されているデータは緯度経度 0.5 度の月間値である。農業、廃棄物、燃焼・漏出などの人為源については EDGAR (The Emissions Database for Global Atmospheric Research; <https://edgar.jrc.ec.europa.eu>) v6.0 を使用した。EDGAR には、湿地、森林火災、シロアリなどの自然源は含まれない。空間解像度は緯度経度 0.1 度であるが、VISIT に合わせて 0.5 度に集計して使用した。

解析対象期間は 1989 年から 2018 年までの最長 30 年間から適宜選定した。経年変化などの解析は openair (Carslaw and Ropkins, 2012) を使用した。

3. 結果と考察

北海道安平町遠浅局は勇払原野の牧草地に位置し、2018 年度の年平均濃度が全局最高の 2.68 ppm であった。同局から約 13 km 離れた厚真町上厚真局の

2018 年度平均濃度は 1.97 ppm であることから、遠浅局は局所的な発生源の影響と強く受けていると考えられる。2010~2018 年の 9 年間における遠浅局の月平均日最低濃度は 0.011 ppm/yr で上昇した。これは綾里 (0.008 ppm/yr) と同程度であることから、全球的な傾向を反映したものといえる。一方で、日較差 (= 日最高濃度 - 日最低濃度) の月平均値は 0.012 ppm/yr で上昇し、局地的な影響も年々増大していた。日較差は 1 月に最大、6 月に最小となる季節変化と、未明に最大、日中に最小となる日変化がともに明瞭である。濃度が日最高となるのは静穏もしくは微風 (1 m/s 未満) 時であり、局のごく近傍に発生源があると推察される。

EDGAR によれば、遠浅局を含む緯度経度 0.5 度格子の人為排出量は上述の 9 年間で約 1 割減少しており (5.83→5.23 g/m²/yr), そのほとんどは ENF (Enteric fermentation; 家畜の腸内発酵) の減少によるものであった。VISIT では湿地の発生量は 0.14 g/m²/yr 程度と少ない。ゆえに、遠浅局の濃度上昇傾向はサブグリッドの排出量変動によると考えるのが妥当である。

千葉県習志野市鷺沼局は畑地が混在する住宅地内に位置するが、かつては南関東ガス田から天然ガスを採取していた地域である。2018 年度の平均濃度は遠浅局に次ぐ 2.30 ppm であり、周辺局 (1.94~1.95 ppm) より明らかに高い。月平均日最低濃度は 2010~2018 年の 9 年間で 0.006 ppm/yr の上昇であり、1989~2018 年の 30 年間では 2005 年ごろまでの減少傾向の影響を受けて上昇傾向は 0.005 ppm/yr と若干低い。日較差は 30 年間で 0.002 ppm/yr の低下傾向にある。同局を含む 0.5 度格子の人為排出量も概ね減少傾向にあり、経年変化の傾向は一致した。同局も静穏または北寄りの微風時に日最高濃度が出現しており、近傍発生源の影響を強く受けたと示唆された。

謝辞

海洋研究開発機構の金谷有剛博士からは貴重な情報を頂戴した。2008 年度以前の大気環境時間値データは国環研環境情報部情報整備室よりお借りした。

引用文献

- Carslaw and Ropkins, (2012) Environmental Modelling & Software. Volume 27-28, pp. 52-61.
 Crippa et al., (2021) <http://data.europa.eu/89h/97a67d67-c62e-4826-b873-9d972c4f670b>
 速水 (2021) 第 26 回大気化学討論会
 Kanaya et al. (2021) presented at JpGU.
 伊藤 (2021) 陸域生態系モデル VISIT による温室効果ガス収支および炭素循環シミュレーション出力データ ver. 2021.1, doi:10.17595/20210521.001. (参照: 2021/9/25)

CH₄ surface flux estimation using local ensemble transform Kalman filter

Jagat S. H. Bisht¹, Prabir K. Patra^{1,2}, Masayuki Takigawa¹, Takashi Sekiya¹, Yugo

Kanaya¹, and Naoko Saito²

1: Research Institute for Global Change, JAMSTEC, Yokohama, 236 0001, Japan, 2: Center for Environ. Remote Sensing, Chiba University, Chiba, 263-8522, Japan

Methane (CH₄) is an important greenhouse gas which is substantially increased during the last decade. The rise in CH₄ has been attributed to emission sources based on inverse modeling techniques, which are performed on very coarse resolution or on a limited number of predefined regions. It is essential to take the full advantage of the recent progress in satellite observations with global coverage and also prepare a roadmap for future satellite missions for estimation of CH₄ flux. Present study attempts to estimate the CH₄ fluxes using Local Ensemble Transform Kalman Filter (LETKF) data assimilation technique using Model for Interdisciplinary Research on Climate based Atmospheric Chemistry Transport Model (MIROC4-ACTM). We first test the performance and ability of our LETKF system against the known truth; hence this work performs sensitivity experiment on Observation System Simulation Experiment (OSSE) setting by updating observed changes into surface CH₄ concentration and column averaged CH₄

concentration. In this study, we use two covariance inflation methods; fixed multiplicative (FM) and relaxation to prior spread (RTPS) for CH₄ flux estimation and found that RTPS inflation outperform FM inflation method (Figure 1).

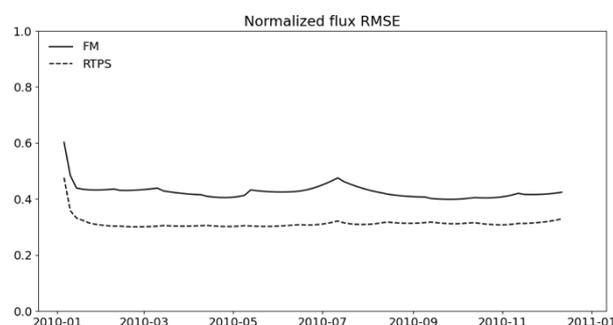


Figure 1. Time series of normalized RMS error of surface CH₄ flux analysis, for 1 year of data assimilation using fixed multiplicative (FM) inflation and relaxation to prior spread (RTPS) inflation methods over global landmass region.

衛星観測を用いた領域二酸化炭素収支推定

*眞木貴史¹, 近藤圭一¹, 中村貴²

1:気象研究所, 2:気象庁

1. はじめに

現在、様々な研究機関において、二酸化炭素放出量の推定が行われているが、用いられている観測データは現地観測が主体で衛星観測を併用している例はまだ少ない。その主な理由の一つは衛星観測データの空間的・時間的に変化するバイアスの取り扱いの難しさであり、バイアスの補正法により二酸化炭素収支バランスが大きく変化する先行研究もある。今回はこれまでに報告してきた独自解析を用いた衛星観測データのバイアス補正により、二酸化炭素収支バランスの変化を低減しつつ衛星観測と現地観測の併用により二酸化炭素放出量の解析を試みた結果を報告する。

2. 解析手法

衛星観測データは現時点で最も長期間の観測データを得ることができるGOSAT SWIR L2 XCO₂ (Ver. 2.9X)を用いた。衛星観測データのバイアスは、独立解析データ(表1)を用いて評価し、衛星観測データから得られるXCO₂と独立解析値から計算されるXCO₂の差(全期間の月平均値)を衛星観測データにおけるバイアスと見なして補正した。

この際、衛星観測データは緯度経度5°の格子点内の個々のXCO₂を積算し、独立解析値からはアベレージングカーネル情報等を用いてXCO₂を計算している。

衛星観測データと現地観測データを用いた解析も表1と基本的に同様であるが、今回は衛星観測のインパクトが現れる2009～2018年に関して紹介する。

表1:逆解析の設定

解析期間	1985-2018
逆解析手法	ベイズ統合逆解析
領域分割数	22
輸送モデル	GSAM-TM(TL95L60)
気象場	JRA-55
先験情報	CDIAC, CASA, JMA-Ocean
現地観測データ	WDCGG(約150地点)

3. 結果

全球規模の二酸化炭素収支変化を図1に示す。衛星観測データを導入することによって、陸域の二酸化炭素吸収量が年にもよるが1PgC/yr程度増大した。一方、海洋においては、同程度二酸化炭素吸収量が減少している(図略)。

次に、衛星観測データの影響が大きいと考えられる

熱帯の陸域について図2で示す。この地域は現地観測データが相対的に少なく、衛星観測データの比重が大きくなると見込まれる。この地域でも、衛星観測データの導入により、陸域の二酸化炭素吸収量が増大する傾向が見える。図において衛星観測データの導入直後より解析期間後半の方が両解析の差が大きくなるように見えるが、全観測データに占める衛星観測データ量の比率が解析期間の後半に至るほど大きくなるためと解釈できる。

解析精度の指標となる解析の不確かさについては、特に南米やアフリカなど現地観測が相対的に少ない領域で改善傾向を示した(図略)。

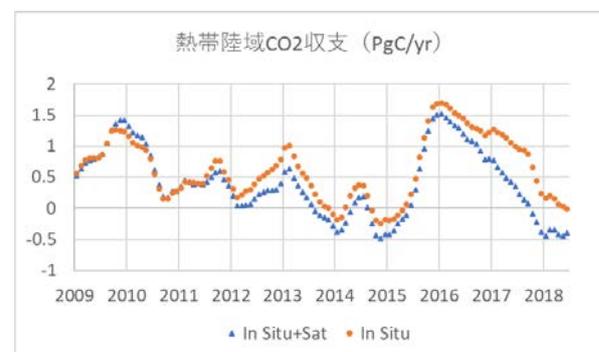
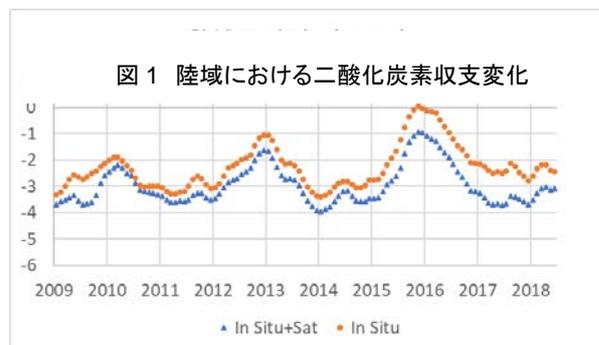


図2 熱帯陸域における二酸化炭素収支変化

4. 謝辞

本研究は環境研究総合推進費課題(SII-8-1(3))、JSPS 科研費課題(19K12312)の助成を受けた。GOSAT 観測データは、GOSAT 研究公募事務局より提供を受けた。

5. 参考文献

Maki, T., et al., 2010, Tellus B. 62, 797-809.

質量比混合法で調製された標準ガスはどこまで信頼できるのか？

*青木伸行¹,石戸谷重之¹,村山昌平¹,松本信洋¹

1:産業技術総合研究所

はじめに

二酸化炭素(CO₂)、メタン(CH₄)、一酸化二窒素(N₂O)などの大気中に微量に存在する温室効果ガスは、地球温暖化を正確に予測するためには、長期間にわたる観測を実施することが求められている。長期観測では、観測データの整合性・同等性の確保が重要で、そのために、各機関は質量比混合法で調製された標準ガスで決めた濃度スケールを細心の注意を払って維持管理している。各機関の標準ガスの調製に用いられている質量比混合法は、最も精度の良い標準ガス調製法で、成分濃度(重量値)は、原料ガスの充填質量から計算される。しかしながら、最近、米国国立標準技術研究所のMillerら(*Anal. Chem.*, 2015)やアメリカ海洋大気局のHallら(*Atmos. Meas. Tech.*, 2019)によって、CO₂標準ガスを真空のボンベに移充填するだけでCO₂濃度が0.2ppm程度変化してしまうことが報告されており、その要因として移充填過程におけるCO₂と主成分(空気)の分別(分別効果)が示唆されている。質量比混合法の場合、真空引きしたボンベに調製過程で、中間原料(高濃度CO₂標準ガス)を移充填する操作があるため、その移充填時の分別効果により、調製された標準ガスの成分濃度が実際の値からずれてしまうことが推測された。これは、これまで見落とされていた不確かさ要因であり、質量比混合法の正確さを低下させている可能性がある。そのため、我々は、分別効果が質量比混合法で調製された標準ガスの成分濃度に与える影響について調べた。

実験

本研究では、CO₂について、質量比混合法で標準ガスを調製時に高圧ガス容器内のCO₂濃度に与える容器内壁への吸着および移充填時の分別効果の影響を調べた。吸着効果については、高圧ガス容器詰めの大気濃度レベルのCO₂/Air混合ガスを11 MPaから1 MPaになるまで連続的にPicarroG2301に導入して、CO₂濃度の変化を測定した(Decanting実験)。得られた濃度データにLangmuirの吸着等温式を適用することにより、容器内壁に吸着するCO₂量を見積もった。分別効果については、"Mother容器"に充填された大気濃度レベルのCO₂/Air混合ガスを真空引きした"Daughter容器"へ移充填した際のCO₂濃度の変化から、移充填時のCO₂の分別係数を見積もった(Mother-Daughter移充填実験)。また、共通の高濃度のCO₂/Air標準ガスから大気濃度レベルの標準ガスを6本調製して、高濃度CO₂/Air標準ガス中のCO₂濃度がその消費量にともない増加した量をRayleigh modelを用いて解析することで、実際の調製過程における分別係数を見積もった。最後に、分別効果

の影響をうけない1段希釈(CO₂と精製Airを直接混合)で大気濃度レベルのCO₂標準ガスを調製する手法を開発して、その標準ガスと既存の質量比混合法で調製したCO₂標準ガスを比較した。

結果と考察

Decanting実験を10 Lアルミニウム容器で7回実施して、容器内壁への吸着量を容器内の全物質量に対するCO₂の割合で評価した結果、平均で0.029 ± 0.004 μmol/mol (ppm)と見積もられた。この結果は、CO₂濃度の重量値が、実際の値より、0.029 ± 0.004 ppm高くなることを示している。また、Mother-Daughter移充填実験から見積もられた移充填時の分別係数は、0.99968 ± 0.00010であり、高濃度CO₂標準ガス中のCO₂濃度の変化から見積もられた分別係数は、0.99976 ± 0.00004で、両者は不確かさの範囲以内で一致していた。3段希釈の質量比混合法で調製された標準ガスにおいて、これらの分別係数から計算されるCO₂濃度の変化量は、それぞれ-0.252 ± 0.082ppmおよび-0.200 ± 0.032ppmである。図1に、分別の影響がない1段希釈の標準ガスを基準にして既存の手法(3段希釈)の標準ガスを測定した結果を示す。測定値から重量値を差し引いた値は、-0.207 ± 0.060 ppmで、分別係数から計算されたCO₂濃度の変化量とそれぞれ不確かさの範囲以内で一致していた。この結果は、実際の標準ガスの調製において、CO₂とAirとの間に分別効果が起こっていることを示している。この分別効果は他の物質でも起こる可能性が高いことから、今後さらなる研究が必要である。

謝辞：本研究は環境省地球環境保全等試験研究費、JSPS 科研費(JP19K055544)等により実施された。

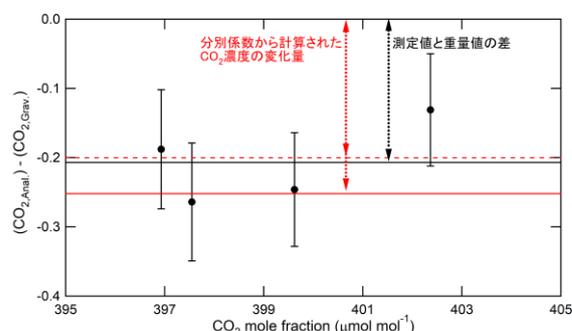


図1 分別の影響のない1段希釈の標準ガスを基準にして、既存の手法(3段希釈)の標準ガスのCO₂濃度を測定した結果と分別係数から計算されたCO₂濃度の変化量

GOSAT-GW衛星による温室効果ガス及び大気汚染物質の観測

*谷本浩志¹, 松永恒雄¹, 三枝信子¹, 杉田考史¹, 八代尚¹, 森野勇¹, 齊藤誠¹, 大山博史¹, 池田恒平¹, 染谷有¹, 藤縄環¹, MÜLLER Astrid¹, 山下陽介¹, 佐伯田鶴¹, 金谷有剛², 関谷高志², 滝川雅之², Prabir Patra², 笠井康子³, 佐藤知紘³

1: 国立環境研究所, 2: 海洋研究機構, 3: 情報通信研究機構

GOSATからGOSAT-GW衛星へ

2009年に打ち上げられた温室効果ガス観測技術衛星「いぶき」(もしくは「GOSAT」)以降、米国、中国、欧州において、主要な温室効果ガスである二酸化炭素(CO₂)やメタン(CH₄)を観測する衛星が複数運用されるとともに、今後も各国による打上げが計画されている。

我が国では、GOSATシリーズの3号機となる温室効果ガス・水循環観測技術衛星(Global Observing SATellite for Greenhouse gases and Water cycle: GOSAT-GW)計画が進められており、温室効果ガス観測センサ3型(Total Anthropogenic and Natural emissions mapping SpectrOmeter-3: TANSO-3)が搭載されてCO₂, CH₄に加え二酸化窒素(NO₂)が観測される予定である。打ち上げは2023年度が予定されており、設計寿命は7年以上となっている。衛星の軌道は、昇交点通過地方太陽時を13時30分とする昇交軌道、軌道高度は約666kmである。なお、GOSAT-GW衛星にはTANSO-3センサに加えて、水循環変動の把握と予測研究のために用いられる高性能マイクロ波放射計3(Advanced Microwave Scanning Radiometer 3: AMSR3)センサも併せて搭載される予定であるが、ここではTANSO-3センサを用いた温室効果ガス観測ミッションの概要について述べる。

TANSO-3センサには、GOSAT及びGOSAT-2で採用されているフーリエ変換分光器とは異なり、回折格子型の分光器が採用されている。これは、GOSAT及びGOSAT-2で行ってきた、全大気温室効果ガスの月別平均濃度の監視やグローバルスケールでの温室効果ガスの吸収・排出解析の継続に加え、より詳細に、国や都市の規模における排出量の解析を行うべく、空間的により詳細化した観測データを取得するためである。GOSAT及びGOSAT-2では直径10kmの点観測であったが、GOSAT-GWでは面的な観測になり、その面に含まれる点の数も細かく、かつ多くなる予定である。そのため、TANSO-3センサは、「広域モード」と「精密モード」の二つを有し、広域観測モードでは911kmの観測幅を10km分解能で面的に観測し、精密観測モードでは90kmの観測幅を3kmより高い分解能で詳細に観測する(図1)。

GOSAT-GWのミッションとしては、(1)全大気温室効果ガスの月別平均濃度の監視、(2)国別人為起源温室効果ガス排出量の検証、(3)大規模排出源等

の検知、の3つが求められており、GOSAT及びGOSAT-2に引き続いてCO₂の全大気平均濃度を監視していくこと、パリ協定に基づいて世界各国が作成・公表するCO₂及びCH₄排出量の検証において正確性・透明性および信頼性を向上させること、NO₂観測の援用により大都市や大規模固定排出源からの排出について未知の排出源の検知や推計の高精度化を行うこと、が科学的な目標となっている。

パリ協定とグローバルストックテイク

得られる成果は、パリ協定のもとで実施されるグローバルストックテイク(5年毎に世界各国が報告する温室効果ガス削減取組の実施状況の確認。2023年に第1回、2028年に第2回が予定されている)において、各国が自ら設定する排出削減目標(Nationally Determined Contributions, NDC)を適切かつ野心的に目標設定する上で必要となる「現状の排出量の正確な把握」に重要な貢献となる。また、GOSAT-GWは、同様にCO₂, CH₄とNO₂を計測するCO2Mよりも早く軌道に投入される予定で、国際的にも大きな役割が期待されている。

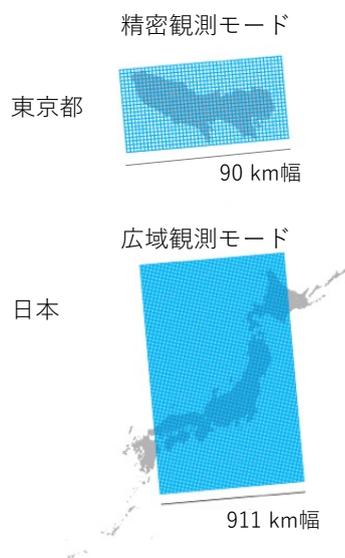


図1 GOSAT-GWによる観測のイメージ。上:精密モードで東京都を観測する場合、下:広域モードで日本を観測する場合の観測幅とデータの空間分解能。

GOSAT-GW衛星観測をサポートするための輸送モデル開発状況

*山下陽介¹, 谷本 浩志¹

1:国立環境研究所

1 はじめに

パリ協定下では、定められた目標（世界の平均気温上昇を産業革命以前に比べて2℃より十分低く保つとともに、1.5℃に抑える努力を追求する）の達成に向けて、国際社会全体のNDC（Nationally Determined Contribution, 自国が決定する貢献）達成度を5年ごとに評価するグローバルストックテイク（Global Stocktake : GST, 世界全体としての実施状況の検討）が行われる。参加各国は、GSTの評価結果を受けてNDCをより野心的に更新・強化することが求められており、世界の化石燃料燃焼起源のCO₂排出量の約4分の3を占める都市域の削減ポテンシャルを最大限に活用して各国の排出量を削減することは、パリ協定の目標達成に向けて大きな鍵となる。排出削減の実効性を担保するためには、都市やその周辺における排出量の推定が必須であり、科学コミュニティがGSTに果たせる役割の一つとして、そうした都市域の排出インベントリを衛星観測と輸送モデルを組み合わせた排出推定により改良していくことが求められている。

今後打ち上げが予定されている温室効果ガス・水循環観測技術衛星（Global Observing Satellite for Greenhouse gases and Water cycle : GOSAT-GW）では、CO₂、CH₄に加えNO₂の高解像度観測（精密観測モードで1~3 km）が予定されており、化石燃料燃焼起源で放出されるCO₂と同じく燃焼起源であるものの生物起源の影響を受けないNO₂を同時観測することによりCO₂排出シグナルの検出性能向上が期待されている。こうした性能を生かして都市域の排出推定を進めるためには、輸送モデルと組み合わせる必要があり、CO₂輸送を扱う炭素循環モデルとNO₂等の化学反応を扱うモデルとの統合が求められる。

2 輸送モデルの概要と実験設定

本研究では、国内で開発が行われてきた非静力学正20面体大気モデル（Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model: NICAM, Tomita and Satoh, 2004; Satoh et al., 2008; 2014）を用いた。NICAMは近年、エアロゾル・炭素循環・大気化学へも拡張されており（Suzuki et al., 2008; Goto et al., 2015; Niwa et al., 2011）、これらを統合利用することでCO₂とNO₂を同時に扱うことにした。化学モデルには対流圏オゾンに関係した反応計算が導入され、NO₂とCO濃度等が計算可能で、炭素循環モデルではCO₂濃度が導出される。化学モデルにはEDGAR-HTAP、炭素循環モデルには

CDIACを入力した。モデルの水平解像度は約110km、鉛直方向には78層で、対流圏下層の解像度は約100~200m、対流圏中層から圏界面付近は約400mである。10年間のフリーランを行なった。

3 衛星観測データ

モデルで得られた結果と比較するため、1つのオーバースペースの観測から都市域と周辺域を面的に捉えることのできるTROPOMIの衛星観測データを利用した（研究開始時点で取得できた2019年8月から2021年5月の期間）。TROPOMIではNO₂が観測されているもののCO₂は観測されていないため、化石燃料燃焼起源のCO₂プロキシとしてTROPOMIで観測されているCOデータを用了。

4 都市域の濃度

世界の8つのメガシティ（東京、リヤド、ダッカ、ムンバイ、ニューデリー、ニューヨーク、北京、上海）について、周辺のバックランド域と都市域との濃度差を求めた。バックランド域はあらかじめ候補を決めておき、JRA-55客観解析から算出した日々の都市周辺域の風向風速データを用いて都市の下流側を除外した。なおモデルには濃度バイアスがあるため、モデルと衛星観測を比較する際にはバックランド域の濃度で除して、都市域の相対的な濃度増大率とした。

モデルの濃度増大率は、リヤド、ダッカ、ムンバイではNO₂、COともに概ね衛星観測と一致していたが、他の都市では特にCOについて過大評価がみられた。CO濃度増大率は、季節的には冬~春に過大評価が小さく夏~秋に大きい。

5 まとめと今後の課題

GOSAT-GW衛星観測をサポートするための輸送モデル開発状況について報告した。モデルには濃度バイアスがあるものの、都市域での濃度増大率は一部のメガシティで衛星観測と一致していた。他の都市域については、夏~秋に過大評価が大きくなっており、要因分析を進めて改善していく必要がある。なおTROPOMIではCO₂は観測されていないため、モデルのCO₂濃度の検証のためにOCO-2、3などのCO₂濃度との比較を進めていきたい。

三酸素同位体組成 ($\Delta^{17}\text{O}$) を用いた 化学輸送モデル内の硫酸エアロゾル生成過程の検証と改良

*板橋秀一¹, 服部祥平², 伊藤彰記³, 定永靖宗⁴, 吉田尚弘^{2,5,6}, 松木篤⁷

1:電力中央研究所, 2:東京工業大学 物質理工学院, 3:海洋研究開発機構, 4:大阪府立大学, 5:東京工業大学 地球生命研究所, 6:情報通信研究機構, 7:金沢大学

はじめに

大気汚染物質の排出・輸送・反応・沈着の一連の過程を計算可能な化学輸送モデルはPM_{2.5}等の動態解析に有用な手法であるが, 例えばPM_{2.5}の主要成分である硫酸塩(SO₄²⁻)を冬季に過小評価するなどの問題がある(Yamaji et al., 2020). この問題点を解決するには, 現状のモデルで考慮できていない化学反応過程の導入などが必要となる(Itahashi et al., 2019; 2021). しかし, 多くのモデル研究は濃度のみの検証であり, SO₄²⁻生成過程そのものの検証はされていない. SO₄²⁻の三酸素同位体組成($\Delta^{17}\text{O} = \delta^{17}\text{O} - 0.52 \times \delta^{18}\text{O}$)は, SO₂からSO₄²⁻が生成される化学反応の寄与率を反映し変動する. $\Delta^{17}\text{O}$ の分析はこれまで南極大気やグリーンランドアイスコアに応用された例はあるが(Ishino et al., 2021; Hattori et al., 2021), 国内での観測例はない. そこで, 能登半島珠洲に位置する金沢大学能登スーパーサイト(37.46°N, 137.36°E)において $\Delta^{17}\text{O}$ 値を観測し, モデル内のSO₄²⁻生成過程を考慮し計算された $\Delta^{17}\text{O}$ 値のモデル値を比較・検証した.

手法

能登スーパーサイトにおいて2015年2月より1-2週間間隔で継続的に採取された微小粒径(PM_{2.5})のエアロゾル試料を用い, 東工大においてSO₄²⁻の $\Delta^{17}\text{O}$ 値を硫酸銀熱分解法によって分析した. モデルには米国環境保護庁がオープンソースとして公開しているCMAQ version 5.3.1 (EPA, 2019)を用いた. CMAQでは, SO₄²⁻生成過程として気相反応におけるOHラジカル, 液相反応におけるH₂O₂等との5種の酸化過程が考慮されている. これらに加え, NO₂による液相酸化を導入し(Itahashi et al., 2021), 人為起源排出量インベントリにREAS version 3.2等を用いて, 2015年通年の計算を実施した. SO₄²⁻の $\Delta^{17}\text{O}$ 値はOHによる気相酸化では0.0‰であるが, 液相酸化の場合には, O₃, H₂O₂, O₂の順に6.4±0.3‰, 0.8±0.1‰, -0.1‰の値をとる(e.g., Ishino et al., 2021). このため, モデル計算において各酸化過程を出力し, その上で各生成過程別の計算濃度に各生成過程の $\Delta^{17}\text{O}$ 値のエンドメンバーをそれぞれ乗じ, モデル内の $\Delta^{17}\text{O}$ 値を求めた.

結果と考察

モデル計算結果(図1中の灰色)を見ると, 春季から夏季にかけて高くなり, 秋以降に低濃度となる観測されたSO₄²⁻濃度そのものはよく捉えられていた.

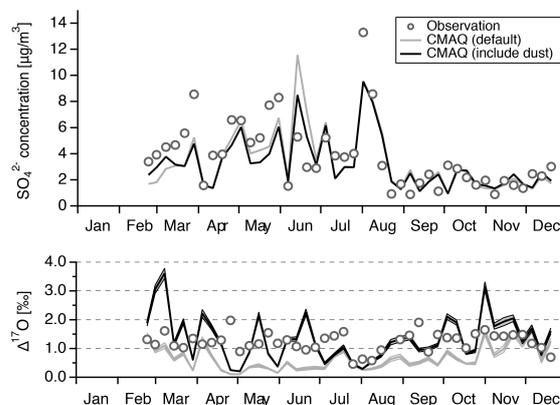


図1 能登スーパーサイトにおける(上)SO₄²⁻濃度, (下) $\Delta^{17}\text{O}$ 値の時系列. モデル結果はアジア域ダスト計算のなし(灰色)とあり(黒色)で示す.

しかし, $\Delta^{17}\text{O}$ 値は観測では1‰前後であるのに対して, モデル計算では4月から9月まで0‰に近い低い値をとった. このことはモデル計算において気相反応由来が過大となっていることが示唆した. アジア域では, 大陸由来のダスト成分によってFe・Mnの供給や雲水中のpH上昇などが液相反応の促進をもたらしている可能性がある. このため, アジア域ダスト計算を含めたモデルに計算も実施し, 同様に解析した(図1中の黒色). SO₄²⁻濃度については傾向がほぼ変わらなかったが, $\Delta^{17}\text{O}$ は上昇し, 冬季の過大評価を除いて, 春から秋にかけての観測との一致性が高まる結果を得た.

おわりに

ダストの導入により $\Delta^{17}\text{O}$ 値の改善が得られたが, 冬季には一転し過大傾向となった. この点については, 人為起源とダスト起源のFe・Mnの溶解度に対して感度実験を行い, 遷移金属触媒によるO₂酸化の寄与の改良を進めている. これらを含め発表を行いたい.

参考文献

- EPA (2019). <https://doi.org/10.5281/zenodo.3585898>
Hattori, S. et al. (2021) Sci. Adv., 7 (19), eabd4610.
Ishino, S. et al. (2021) JGR: Atmos., 2020JD033583.
Itahashi, S. et al. (2019) Atmosphere, 10, 544.
Itahashi, S. et al. (2021) Atmos. Env.: X, 12, 100123.
Yamaji, K. et al. (2020) Atmosphere, 11, 222.

Examining air quality change during COVID-19 lockdown period in Delhi

*Joseph Ching¹, Mizuo Kajino^{1,2}, Sachiko Hayashida³

¹Meteorological Research Institute, 1-1 Nagamine, Tsukuba, Ibaraki, 305-0052, Japan.

² Faculty of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki, 305-8572, Japan.

³ Faculty of Science, Nara Women's University, Kitauoya-Higashimachi, Nara, 630-8506, Japan

Abstract

Since 2020 the world has been fighting against the pandemic of COVID-19. Reduced emissions of NO_x and $\text{PM}_{2.5}$ and improvement in air quality have been reported in many countries during lockdown. In this study, we examine the air quality in Delhi, India from Mar 1 to May 31, 2020 which includes the lockdown period (Mar 25 to May 31), from both ground-based observations and regional model simulations. Ground-based observations in Delhi demonstrated that the concentrations of NO_x , $\text{PM}_{2.5}$ and Ozone in 2020 were statistically different from those in 2016-2019 ($p < 0.05$). Comparing before and during lockdown, NO_2 and $\text{PM}_{2.5}$ decreased by about 48% and 26% respectively, while Ozone increased by 48%. Regional meteorology-chemistry model, NHM-Chem, simulation prescribed with reduced emissions of NO_2 (denoted by 2020R) agree with observations ($R = 0.62$, $\text{NRMSE} = 0.48$) significantly better than the one without reduced emissions ($R = 0.29$, $\text{NRMSE} = 0.88$). While the simulation 2020R captures well the diurnal variation and evolution of NO_2 and O_3 , mean model biases with respect to observations are $-1.72 \mu\text{g m}^{-3}$ and $+32 \mu\text{g m}^{-3}$ respectively. The model bias of $\text{PM}_{2.5}$ is about $-27 \mu\text{g m}^{-3}$ over the whole Spring 2020. The change in the concentrations of NO_2 , O_3 and $\text{PM}_{2.5}$ is principally attributed to the reduced emissions, however meteorology impact is shown to play a role. Further study is required to understand how Ozone concentration responded to the emission changes during lockdown period, and this can be accomplished by model simulations with up-to-date emission inventory for 2020 in future. Lockdown period provides an opportunity for understanding the air quality specific to a city or a region, and insights on construction of an effective and location-specific air quality policy.

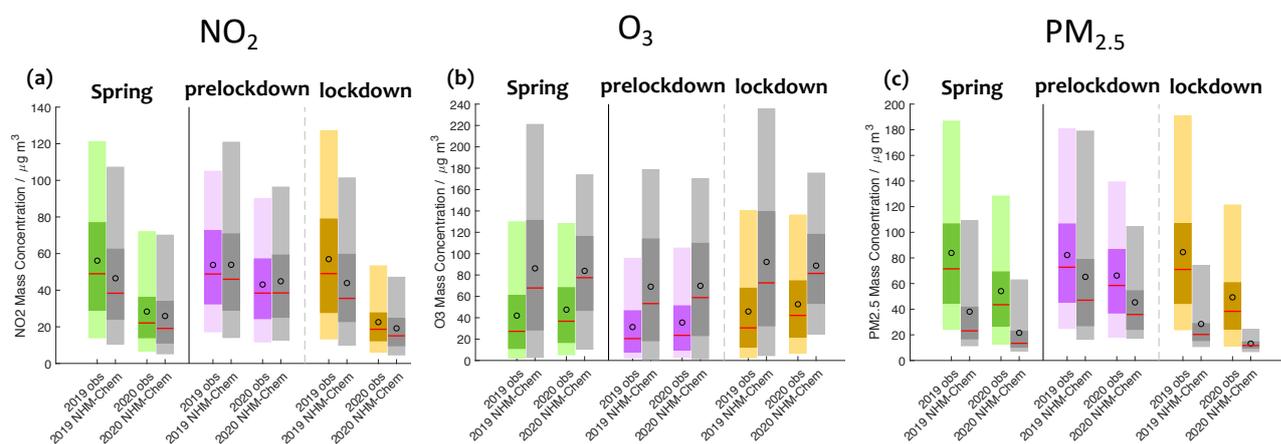


Figure 1 Concentrations of NO_2 , O_3 and $\text{PM}_{2.5}$, during Spring (1st March to 31st May, 2020), prelockdown (1st March to 24th to May, 2020) and lockdown (25th March to 31st May, 2020) periods. Observations are shown in colors and NHM-Chem, regional meteorology-chemistry model simulation results are shown in grey. The shading of each bar depicts the 10th, 25th, 75th and 90th percentiles. Red line and circle on each bar represent median and mean respectively.

新型コロナウイルス蔓延期間における全球NO_x・SO₂排出量減少が二次生成無機エアロゾル分布に与えた影響

* 関谷 高志¹, 宮崎 和幸^{2,1}, Henk Eskes³, 須藤 健悟^{4,1}, 滝川 雅之¹, 金谷 有剛¹

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

はじめに

新型コロナウイルス(COVID-19)の蔓延中には、感染拡大を抑制する目的でロックダウンが多くの国で実施されており、人間活動に急激な変化をもたらした。蔓延期間中に多くの国で報告された大気汚染の急激な変化は、人間活動と大気汚染を結びつけるメカニズムを理解する上で貴重な情報となることが期待できる。主要な大気汚染物質である、対流圏オゾンやPM2.5について、衛星観測や数値モデルによる広域的な変化を評価する研究が行われてきた(e.g., Miyazaki et al., 2021; Hammer et al., 2021)。しかしながら、エアロゾルの各成分の変化については、全球規模の影響評価が行われていない。そこで本研究では、人為起源エアロゾルの主要成分である二次的に化学生成される無機エアロゾル成分(硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩)に着目し、COVID-19の感染拡大を遅らせるために施された世界的なロックダウンが、地球全体の無機エアロゾル前駆体排出削減と無機エアロゾルへおよぼす影響を調査した。

データ・手法

本研究では水平0.56度解像度の全球化学輸送モデルCHASER(Sekiya et al., 2018)と局所アンサンブル変換カルマンフィルタ(Hunt et al., 2007)に基づくデータ同化システム(Sekiya et al., 2021など)を用いた。同化に用いた観測データは、2019/2020年1~4月のTROPOMI

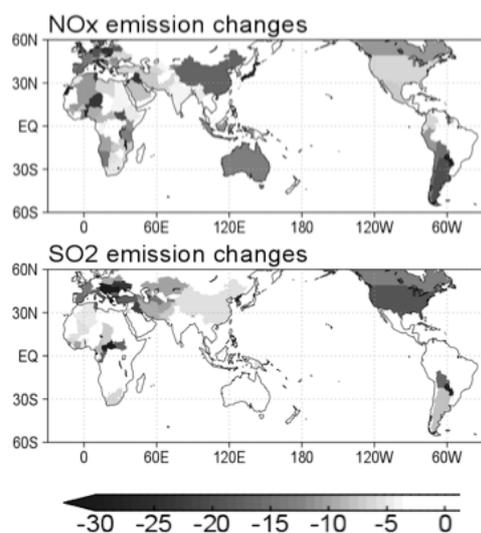


図1 2020年4月におけるNO_x(上図)、SO₂(下図)の国別平均排出量の変化(%)。

NO₂ ver. 1.2 リトリーバル、SO₂ ver1.1 リトリーバル(Copernicus Sentinel-5P, 2018)、MLS O₃/HNO₃ ver 4.2 (Livesey et al., 2011)である。NO_x、SO₂排出量は、アンサンブル予報計算から得られた誤差共分散中のNO_x、SO₂排出量とNO₂、SO₂濃度の関係をそれぞれ用いて、対流圏NO₂・SO₂カラム量観測から推定した。

新型コロナウイルス蔓延期間における排出量減少

まず、2020年のロックダウンに伴う排出量減少について解析した(図1)。2020年のロックダウンが無い場合の排出量シナリオ(Business-As-Usual; BAU)については、ロックダウン期間前の2020年の排出量と同時期の2019年の排出量が一致する様に、2019年1~4月の排出量をスケールリングすることで構築した。

COVID-19感染拡大に伴うロックダウンが世界的に行われていた2020年4月には、BAUシナリオと比較してNO_x排出量が減少し、東アジア・ヨーロッパで16%、北アメリカで8%に達した。また、SO₂排出量については、ほとんどの地域において、NO_x排出量よりも相対的な減少量が小さい傾向にあった。しかし、東ヨーロッパやアメリカでは特にSO₂排出量の減少が大きかった。

二次生成無機エアロゾルへの影響

さらに、2020年の排出量推定、作成したBAUシナリオを用いたモデル計算を行った(それぞれCOVID、BAUとする)。それらを比較した結果、ロックダウンにより主要汚染領域の地表付近において硫酸塩については最大6.6%、硝酸塩については最大15.9%、アンモニウム塩エアロゾルが最大7%減少していた(表1)。発表では、硫酸塩、硝酸塩それぞれの前駆気体の排出量だけでなく、NO_x、SO₂排出量の同時減少による化学反応を介したフィードバックの影響についても議論する。

このような二次エアロゾルと排出量減少の関係を各領域で定量化することにより、将来の大気汚染政策で排出量が減少した場合の世界的な大気汚染の変化について、有用な知見を得ることが期待される。

表1 2020年4月の排出量減少による地表付近の硫酸塩・硝酸塩・アンモニウム塩エアロゾルの領域平均濃度の変化(%)

	硫酸塩	硝酸塩	アンモニウム
東アジア	-0.4	-15.9	-5.9
北アメリカ	-6.6	-5.6	-3.7
ヨーロッパ	-6.2	-12.8	-7.0

ポスター発表 要旨

ISS搭載の超高感度リモ放射サウンダSMILESによる中間圏放電現象化学の観測

*山田崇貴¹, Holger Winkler², 足立透³, 中野幸夫⁴, 笠井康子¹

1:情報通信研究機構, 2:ブレーメン大学, 3:気象研究所, 4:東京学芸大学

はじめに

スプライトとは高度40 – 80 kmにおいて発光する高高度放電発光現象である。1990年に初めて報告されて以来、雷（対地放電）に追従し、雲から上空へ向かう様々な様相の放電現象が確認されてきた。スプライトは中でも規模が大きく発生頻度は1分当たり1–3イベントと推定されており、上空大気化学への影響がモデル計算にて議論されてきた[e.g. Arnone et al., 2014]。

Yamada et al. (2020)では初めてのスプライトによる大気組成の変動を観測をし、スプライト撮像衛星 (ISUAL) のスプライト発生とサブミリ波リモ放射サウンダ (SMILES) のHO₂ラジカルの増大を報告した。HO₂の増大量は10²⁵moleculesオーダーであった。この報告では、両測器の観測場所はスプライトが発生した雷雲の大きさのスケールで一致していたことから、単発のスプライトとHO₂増大は一対一対応しているのではなく、スプライトのカンケード的な発生による増大を示唆した。その後のWinkler et al., 2021による詳細な化学モデル調査ではそれを支持するものであった。

HO₂ラジカルの増大は、大気の酸化能の決定や、HO_xサイクルの理解において重要であると共に、温暖化により雷イベント数の増大や温室効果ガス放出による高層大気の水蒸気量の増大に影響を受けることから今後もより詳細な解析が必要である。

本発表ではYamada et al., 2020におけるスプライト放電後のSMILES観測結果 (3 ケース) について紹介するとともに、スプライト放電化学(Winkler et al., 2021)や、統計的な観測解析の現状や展望について議論する。

主要な結果

SMILESのHO₂観測(約19万点)とISUALのスプライト発生観測(127件)の時空間的コインシエンスを取得した結果、緯度経度それぞれ1.5, 3度、時間5時間以内で3件抽出された。図のように全てのケースにおいてHO₂が局所的に有意に増大していた。SMILESスペクトル解析により、どのケースでもHO₂の増大量は10²⁵molecules程であった。発表では詳細な手法及び結果について説明・議論を行う。

SMILES観測のイベント時の抽出において、全球雷放電検出ネットワーク(WWLLN)[e.g. Abarca et al., 2010]を用いた時空間的一致を現在検討中である。ス

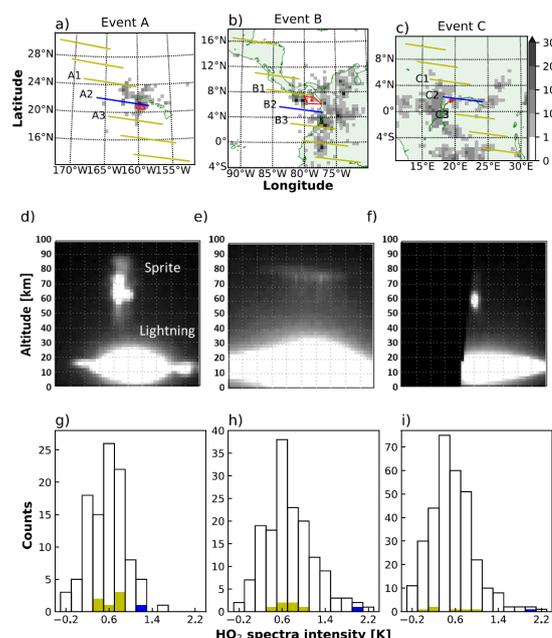


図 1 SMILES と ISUAL のコインシデンス観測結果 [Figure 1 in Yamada et al., 2020]。

プライトとの直接的なコインシデンスではなく、発生要因である雷イベントとの間接的な相関の調査であり、詳細な手法及び結果について議論予定である。

参考文献

1. Arnone, E., Smith, A. K., Enell, C.-F., Kero, A., & Dinelli, B. M. (2014). WACCM climate chemistry sensitivity to sprite perturbations. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119, 6958–6970. <https://doi.org/10.1002/2013JD020825>.
2. Yamada, T., Sato, T. O., Adachi, T., Winkler, H., Kuribayashi, K., Larsson, R., et al. (2020). HO₂ generation above sprite-producing thunderstorms derived from low-noise SMILES observation spectra. *Geophysical Research Letters*, 47, e60090. <https://doi.org/10.1029/2019GL085529>.
3. Winkler, H., Yamada, T., Kasai, Y., Berger, U., and Notholt, J. (2021). Model simulations of chemical effects of sprites in relation with observed HO₂ enhancements over sprite-producing thunderstorms, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 7579–7596, <https://doi.org/10.5194/acp-21-7579-2021>, 2021.

GOSAT/TANSO-FTSによる成層圏オゾン濃度観測可能性の評価 —2011年北極オゾン減少—

*関英人¹, 齋藤尚子¹,

1: 千葉大学環境リモートセンシング研究センター

1. 目的

GOSAT (Greenhouse Gases Observing SATellite) に搭載された TANSO (Thermal and Near-infrared Sensor for Carbon Observation) -FTS (Fourier Transform Spectrometer) の熱赤外 (TIR) バンドで観測されたスペクトルから、二酸化炭素の Version 1 (V1) プロダクトのバイプロダクトとしてオゾンの鉛直濃度プロファイルが導出されている [Saitoh et al., 2016]。本研究では、大規模なオゾン減少が起こった 2011 年の北極に着目して、TANSO-FTS の成層圏オゾン濃度データに見られる特徴を解析し、さらに他のセンサーのオゾン濃度データと比較に基づいて TANSO-FTS のオゾン濃度データの検証を行った。

2. 使用データ

GOSAT/TANSO-FTS の V1 オゾン観測データは、地上から 0.1 hPa までを 28 の気圧レベルに分けて濃度が導出されている。本研究では、2009 年から 2014 年のデータを使用した。TANSO-FTS の V1 オゾンデータと比較するデータとして、高い高度分解能を持つ太陽掩蔽法センサーである SciSat-1/ACE (Atmospheric Chemistry Experiment) -FTS のオゾン観測データ (V3.0) を使用した。また、参照データとして、Aura/OMI (Ozone Monitoring Instrument) のオゾンカラムデータを使用した。

3. 結果と考察

まず、2009 年から 2014 年について、極域のデータとして緯度 70°N ~ 80°N の TANSO-FTS のオゾン濃度データを抽出し、一か月を 10 日ごとに 3 つに分けて、オゾン濃度の帯状平均値の変動を調べた。北極で大規模なオゾン破壊が起こった 2011 年の 2、3 月の下部成層圏 (35~29 hPa) において、2011 年の TANSO-FTS のオゾン濃度がリトリーバル処理の先験値 [McPeters et al., 2007] より有意に低く、他の年と比べても低くなっていることがわかった。

次に、2011 年の北半球高緯度について、経度 15°ごとに数日単位で TANSO-FTS のオゾン濃度データの平均値を計算し、顕著なオゾン減少が起こっている領域と起こっていない領域に分けて解析を行った。ここでは、OMI のオゾンカラムデータをもとにオゾン減少が起こっていると思われる領域を判断し、低濃度のオゾンが継続的に観測されている 2011 年 3 月 26 日 ~ 31 日の経度 0 ~ 30°E をオゾン減少が起こっている領域とみなした。

OMI のオゾン濃度が減少している領域では、下部成

層圏で TANSO-FTS のオゾン濃度が先験値より大幅に濃度が低くなっており、OMI のオゾン濃度に顕著な減少が見られない領域では、TANSO-FTS のオゾン濃度が先験値により近い濃度となっていた。さらに、2011 年の北半球高緯度 (60°N ~ 70°N) の TANSO-FTS のオゾン濃度データと ACE-FTS のオゾン濃度データを比較した。比較の結果、オゾン減少が起こっている領域では、下部成層圏 (60~20 hPa 付近) において、TANSO-FTS のオゾン濃度が先験値と比べて ACE-FTS のオゾン濃度により近い値を取っていることがわかった。また、経度 30°ごとに TANSO-FTS の成層圏オゾン濃度と OMI のカラムオゾン濃度の時系列を解析したところ、2011 年 3 月で両者のオゾン濃度が同じ経度帯・時期に低くなっている様子が見られた。

さらに、等温位面上で極渦の位置と気温とオゾン濃度の関係を調べた。図 1 に、2011 年 1 月 26 日 ~ 31 日の 550 K 等温位面上での TANSO-FTS のオゾン濃度と気温を示す。ここで、気温は TANSO-FTS の V1 オゾン濃度データと同時に導出された気温データを示している。図から、他の経度帯より低温になっている経度 150°E 付近において、TANSO-FTS のオゾン濃度が同緯度帯の他の経度のオゾン濃度より低くなっている様子が見られ、TANSO-FTS の観測が極渦内の低温域における化学的オゾン減少を捉えている可能性が示唆された。

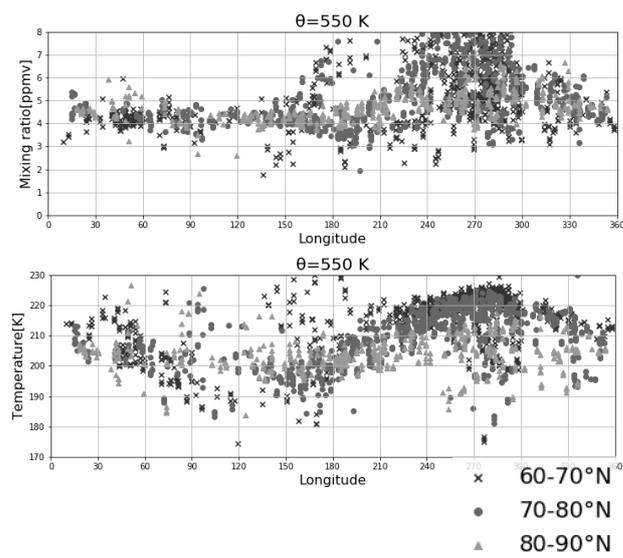


図 1 2011 年 1 月 26~31 日の緯度 60°N 以北、温位 550 K 面における GOSAT/TANSO-FTS の V1 プロダクトのオゾン濃度と気温。上:オゾン濃度、下:気温。

大気ポテンシャル酸素の季節変動に対する 南北半球間大気輸送の影響

*石戸谷重之¹, 丹羽洋介², 坪井一寛³, 森本真司⁴, 遠嶋康徳², 後藤大輔⁵, 青木周司⁴
村山昌平¹, 青木伸行¹, 石島健太郎³, 亀崎和輝¹, 松枝秀和³

1:産総研, 2:国環研, 3:気象研, 4:東北大, 5:極地研

はじめに

大気中二酸化炭素(CO₂)濃度の季節変動は主に陸上生物活動に由来するため北半球中高緯度の地表で最大であり、半球間大気輸送による南半球への伝播によって、南半球中緯度では上部対流圏の季節変動が対流圏下層より大きくなるのが知られている(e.g. Nakazawa et al., 1991)。一方、大気中酸素(O₂)濃度と二酸化炭素(CO₂)濃度から求められる大気ポテンシャル酸素(APO=O₂+1.1xCO₂)は、陸上生物活動に対する保存量であり、その季節変動は主に大気海洋間のO₂ fluxを反映して変動する。また、南北両半球の同等緯度での大気海洋間O₂ fluxは季節的に逆位相かつ量的には同程度である(Garcia & Keeling, 2001)。そのため、CO₂の場合に南半球への季節変動の伝搬をもたらした半球間大気輸送が、APOでは両半球で逆位相の季節変動を相殺するように働くと考えられる。本報告では北半球の低緯度から高緯度、地表から上部対流圏におけるAPOとCO₂季節変動の観測結果を、大気輸送モデルによるシミュレーション結果と比較することで、モデルの半球間大気輸送過程の評価に応用する。

観測とモデル

本研究では神奈川県綾瀬市～南鳥島間上空の高度約6km、および仙台～福岡(大阪、札幌)間上空の高度8km以上における航空機観測と、北極ニューオルスン、北海道落石岬、岩手県三陸町綾里、茨城県つくば市、岐阜県高山市、沖縄県波照間島及び東京都南鳥島での地上観測を実施し、フラスコサンプリングもしくは現場連続観測によりδ(O₂/N₂)とCO₂濃度データを取得した(e.g. Ishidoya et al., 2012a,b, 2014, 2017; Tohjima et al., 2012)。3次元大気輸送モデルはNICAM-TM(e.g. Niwa et al., 2017)を使用し、Takahashi et al. (2009)による大気海洋間CO₂ flux、CDIAC統計データによる化石燃料CO₂ flux、及び季節変動についての気候値であるTransComの大気海洋間O₂及びN₂ fluxを使用した(control run)。また、南北半球間大気輸送によるAPO季節変動への影響を調べるため、TransCom fluxについては南半球のfluxをゼロにした計算も行ない(w/o SH flux run) control runによる結果と比較した。

結果と考察

APOとCO₂の季節変動は、両者とも北半球中高緯度で大きく、低緯度に向かうとともに、また高度の上昇とともに振幅が小さくなる傾向を示した。しかしながら、高度

上昇に伴うAPOの季節振幅の減衰率はCO₂に比して非常に大きく、また上空で低緯度に向かう振幅の減衰もAPOの場合に顕著であった。NICAM-TMのcontrol runは、地上、上空ともにAPOとCO₂の季節変動を概ね再現した。一方、w/o SH runでは、上空におけるAPO振幅の緯度変化を大幅に過小評価する一方、APO振幅の高度変化は比較的よく再現した(図1: Ishidoya et al., submitted)。このことは、自由対流圏のAPO季節変動の緯度分布が半球間大気輸送の変動に高感度で応答し、モデルの輸送過程の評価に有用であることを示唆している。またcontrol runとw/o SH runの差から評価した、南半球の大気海洋間O₂及びN₂ fluxに起因するAPO季節振幅は、中上部対流圏で6～9 per meg、地上では高緯度から低緯度まで4～6 per megの大きさであり、観測される季節振幅が30 per meg程度の波照間や南鳥島のような地上サイトでも、季節変動パターンへの影響が無視できないことも明らかになった。今回の結果はNICAM-TMによる自由対流圏の輸送過程の表現が妥当であることを支持しており、今後、本研究の3次元的観測データを束縛条件としたNICAM-TMによる逆解析から、大気海洋間O₂ fluxの改良が期待できる。

謝辞：本研究は環境省地球環境保全等試験研究費、JSPS 科研費 JP19H01975 等により実施された。観測にご協力頂いた気象庁地球環境・海洋部、地球・人間環境フォーラムの皆様にご礼申し上げます。

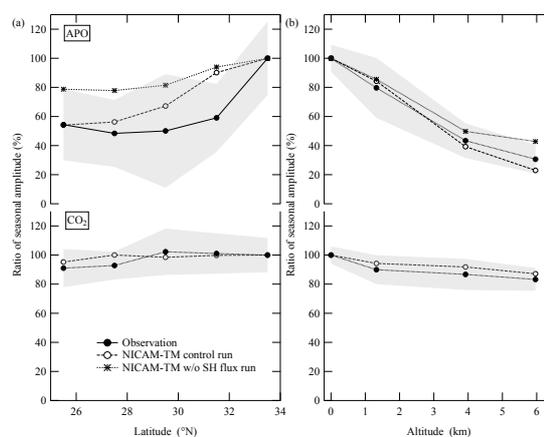


図 1(a)神奈川～南鳥島間の高度約 6km における APO 及び CO₂ 季節変動振幅の緯度分布。33.5°N の値を基準とした百分率として観測(●)、NICAM-TM control run (○)及び w/o SH run(*)の結果を示す。(b) (a)と同様、ただし地上を基準とした南鳥島上空の高度分布である。

与那国島で観測されたCO₂は COVID-19の影響を捉えることができたか？

*遠嶋康徳¹, 丹羽洋介¹, 坪井一寛², 齋藤和幸³

1:国立環境研究所, 2:気象研究所, 3:気象庁

COVID-19の大気への影響

2019年12月に中国武漢で最初に確認された新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) は、瞬く間に中国全土に拡大した。中国政府は感染拡大阻止のため、2020年2月には全土で都市封鎖を実施するに至った。こうした対応は社会経済活動を著しく低下させると同時に、大気汚染物質や二酸化炭素 (CO₂) の排出量を減少させたと予想された。実際に、衛星や地上観測からNO_x等の大気汚染物質の濃度低下が報告された。しかし、こうした大気汚染物質と比べてCO₂の大気中の寿命は長いと、濃度変化は相対的に小さくなり、その検出は容易でない。衛星によるカラムCO₂濃度 (XCO₂) の解析からは中国の都市封鎖に伴うCO₂濃度の減少を明確に捉えるには至っていない。

波照間島での観測結果と本研究の目的

Tohjima et al. (2020)は波照間島 (24°N, 124°E; HAT) において1~3月に観測されたCO₂とメタン (CH₄) の変動比 ($\Delta\text{CO}_2/\Delta\text{CH}_4$) の時間変化を解析し、2020年2月に変動比が著しく低下したことを明らかにした。さらに、過去の研究や大気輸送モデルを用いた解析から、上記の変動比の低下がCOVID-19による都市封鎖の影響を捉えたものと結論した。しかし、その変化は極めて微弱なものであり、こうした変化をサポートする独立した観測結果の存在が期待された。

波照間島の西約100kmに位置する与那国島 (24°N, 123°E; YON) では1990年代後半から気象庁によってCO₂およびCH₄の現場連続観測が実施されている。YONとHATの大陸との地理的な位置関係はほぼ一致していることから、本研究ではYONでもCOVID-19の影響を検出できるかどうかを解析した。

与那国島の観測と解析方法

図1に2020年1~2月にYONおよびHATで観測されたCO₂およびCH₄濃度の時系列を示す。両サイトの濃度変

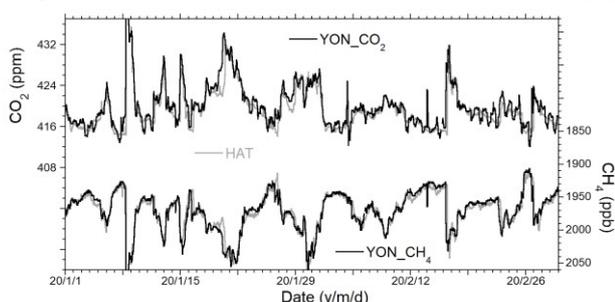


図1 2020年1~2月のYONにおけるCO₂およびCH₄の濃度変動。比較のためHATの結果 (灰色) もプロットした。

化は、YONで1時間程度位相が早いことを除いて、非常によく一致していることが分かる。

変動比の解析にはTohjima et al. (2020)と同様の手法を用いた。ある時間窓 (TW) を設定し、その時間窓内のデータについてCO₂とCH₄の相関プロットの傾き ($=\Delta\text{CO}_2/\Delta\text{CH}_4$)、相関係数 (R)、CO₂の標準偏差 (σ_{CO_2}) を求める。時間窓を1時間ずつ動かしながら全データに対して同様の計算を行い、 $R>0.7$ および $>0.1\text{ppm}$ の条件を満たす傾きについて月平均値や移動平均を求めた。

結果と考察

まず、Tohjima et al. (2020)と同様にTW=24時間とした場合、YONのデータから求められた1~3月の変動比の月平均値はHATより約34%大きいことが分かった (図2)。さらに、HATで見られたような2020年2月の顕著な減少はYONのデータでは見られなかった。

CO₂の日変動を詳しく調べると、両サイトとも日中に濃度が低下し、変動量はYONの方が2倍以上大きいことが分かった。日中の濃度低下は島の植物によるCO₂の吸収に起因するものと推定され、YONで影響が大きいのは島の面積がHATより大きいことや、観測地点がより内陸に位置すること等が理由として考えられた。また、短期的な変動量は日中の方が大きいことから、夜間 (20時~6時) のデータのみを用いて変動比を求めると、変動比のずれは半減した。さらに、シノプティックスケールの変動が数日規模の周期を持つことから、時間窓の長さを変化させたところ、TW=84時間の時にHATとの差が最小となり、2020年2月の顕著な減少も再現されることが分かった (図2)。

HATと同様の変化がYONでも観測されたことから、変動比が大陸の放出量変化に鋭敏であることが確認された。また、本結果はYONとHATという2地点での観測継続の重要性を示すものと考えられた。

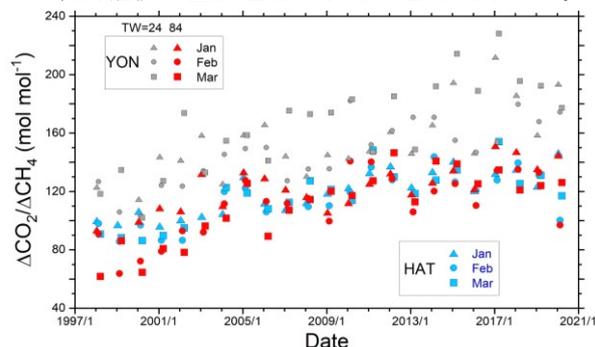


図2 1998-2020年1~3月の $\Delta\text{CO}_2/\Delta\text{CH}_4$ 比月平均値の時間変化。灰色 (TW=24) 赤 (TW=84) はYON, 青はHATの結果。

連続観測で得られた南鳥島における大気中二酸化炭素濃度およびその安定同位体比の変動

*村山昌平¹, 坪井一寛², 石戸谷重之¹, 石島健太郎², 松枝秀和², 森本真司³, 青木伸行¹, 吉田雅司⁴, 幸田笹佳⁴, 雪田一弥⁴, 佐藤祥平⁴, 池田諒⁴, 藤原昂⁴, 岩城昌志⁴

1:産業技術総合研究所, 2:気象研究所, 3:東北大学, 4:気象庁大気海洋部

1. はじめに

南鳥島(MNM:24°18'N, 153°58'E)は、国内で唯一バックグラウンド大気の観測が可能であり、同緯度帯を代表する大気組成の変動を捉えるのに適した場所である。大気中二酸化炭素(CO₂)濃度の変動要因を調べるために、気象庁の協力の下、2011年よりフラスコサンプリング法(F法)によるCO₂の安定同位体比($\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$)の観測を実施してきている。2018年からは、F法では困難な短時間スケールの変動を捉えるために、レーザー分光法による連続観測を開始した。本発表ではこれまでに得られた観測結果と主に連続観測で得られた数日スケール等の変動要因について考察した結果を紹介する。

2. 観測方法

F法による観測は、概ね週に1回の頻度で大気試料を採取し、研究室に持ち帰ってCO₂濃度と安定同位体比を分析した。連続観測は、現地に設置した同位体連続分析計(Model CCIA-48, LGR製)により行われた。得られたCO₂の各同位体濃度データより全CO₂濃度および $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ を算出した。連続観測データはばらつきが大きいので日平均値を求めて解析を行った。同位体比データについて連続観測とF法で系統的な違いが見られたため、F法値に合うように連続観測の $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ データにそれぞれ一定値を補正した。分析計の不調のため連続観測は2019年5月～2021年3月に中断した。

3. 結果と考察

図1に連続観測開始後のF法と連続観測のデータを示す。また、Nakazawa et al. (1997)の手法によるデータへのフィッティングカーブおよび長期トレンドも示す。補正後の連続観測値はF法値と良く一致している。濃度と各同位体比は明瞭な季節変動とともに数日スケールの変動を示している。CO₂濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の季節変動は明瞭な負の相関を示しており、両者を比較解析したところ、主に陸上生物活動の季節変動の影響を受けた気塊の輸送に依ることが分かった。一方、CO₂濃度と $\delta^{18}\text{O}$ の季節変動については、位相にずれがあって明瞭な相関が見られず、 $\delta^{18}\text{O}$ の季節変動は、CO₂交換だけでなく水循環の影響を受けていることが示唆された。図2に数日スケールの変動を詳細に調べるためにフィッティングカーブからの偏差の変動を比較したものを示す。数日スケールの変動においてもCO₂濃度と $\delta^{13}\text{C}$ は負の相関を示した。CO₂濃度と $\delta^{18}\text{O}$ については、ほとんどの期間、負の

相関が見られたが、夏季～初秋には正の相関が見られた。発表では、これら数日スケールの変動要因について、MNMにおいて実施されているラドン等の大気成分濃度の連続観測や後方流跡線解析との比較による考察結果等も紹介する予定である。

謝辞 観測にご協力いただいた気象庁の方々、産総研スタッフに謝意を表したい。本研究は環境省地球環境保全等試験研究費等により実施されたものである。

参考文献 Nakazawa et al. (1997) *EnvironMetrics* 8, 889.

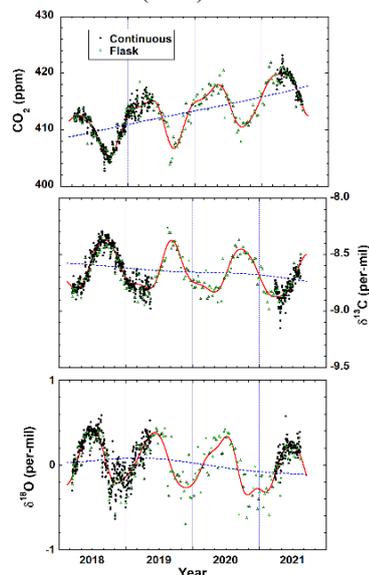


図 1. F 法及び連続観測で得られた CO₂ 濃度(上)、 $\delta^{13}\text{C}$ (中)及び $\delta^{18}\text{O}$ (下)の変動。データへのフィッティングカーブおよび長期トレンドも示す。

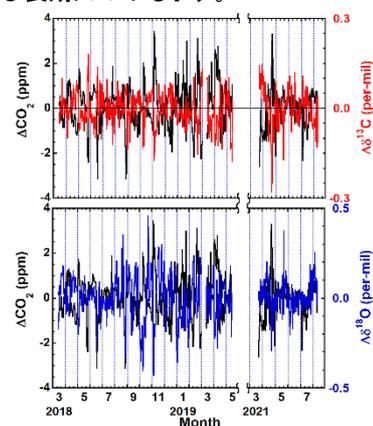


図 2. フィッティングカーブからの偏差の変動。CO₂ 濃度と $\delta^{13}\text{C}$ (上)及び $\delta^{18}\text{O}$ (下)の比較。

WRF/Chemを用いた”full-chemistry”モデルの開発： VPRMモデルによる森林起源CO₂エミッションの検証

*滝川雅之¹, Prabir K. Patra^{2,1}, 小林秀樹¹

1:海洋研究開発機構 地球環境部門 北極環境変動総合研究センター

2: 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

1. はじめに

領域化学輸送モデルを用いた大気化学シミュレーションとしては、オゾン等の短寿命気候汚染物質の大気中動態把握やCO₂等長寿命気体を対象としたWRF-VPRMによる計算等が行われてきている。筆者らはこれらを統合的に取り扱うことができるモデルを開発しつつあり、気候変動およびそれに伴う森林火災発生量の変動等の影響を大きく受けていると思われる北方森林域や、関東域等メガシティとその周辺域における植生起源エミッションの影響把握への適用を計画している。本発表ではアラスカ域を対象にCO₂エミッションの評価等について概要を報告する。

2. モデル設定および検証用データ

モデル設定については表1に概要を示す。WRF/Chemにおける化学モジュールについてはRACM-GOCARTにおいても長寿命気体を取り扱えるようKPPおよびVPRM周りを改変し、新たにchem_opt=302として設定した。森林起源エミッションについては二酸化炭素等についてはVPRMを、それ以外についてはMEGANを使用するよう設定している。

計算領域としては複数の植生域において稠密なフラックス観測を行なっているアラスカ域を対象とし、Ameriflux (<https://ameriflux.lbl.gov>) よりフラックスデータ等を取得した。使用したサイトの位置および周辺域の土地利用区分については図1に示す。

3. 結果とまとめ

表 1 モデル設定

使用モデル	WRF version 4.2.1
水平解像度	9km (230x240 格子)
鉛直層数	50 層
気象場	ERA5 にナッジング
計算期間	2020 年
エミッション	EDGARv5 (人為起源)
	FINN v1.5 (森林火災)
	Patra and Naveen (海洋)
VPRM 入力	MOD09A1 (EVI, LSWI)
	MCD12Q1 (土地利用)

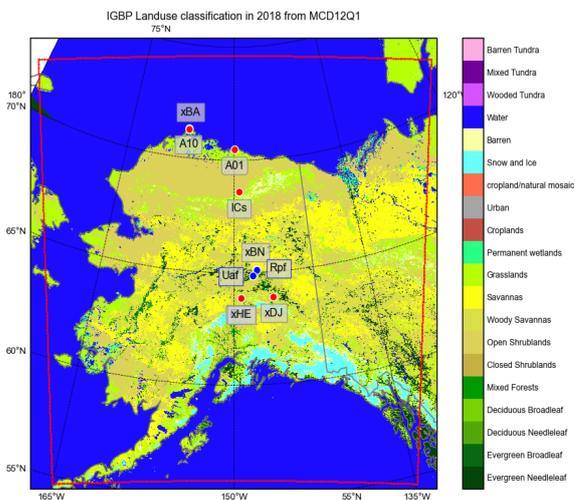


図 1 計算対象領域。検証に用いた Ameriflux サイトおよび植生起源 CO₂フラックス計算に用いた植生区分についても併せて示す。

ERA5再解析データを初期値および側面境界とし、Google Earth Engineを用いて取得したEVI, LSWIおよび土地利用区分を用いて計算したところ、植生域によってはWRF-VPRMの初期値パラメータでは再現性がよくない地域が見られた。結果の一例として、ポーカーフラットサイトにおける生態系呼吸量の時系列を図2に示す。線形回帰によって呼吸量の温度依存性等を最適化することにより、生態系呼吸量の季節変化および日変化を比較的良好に再現できることを確認した。

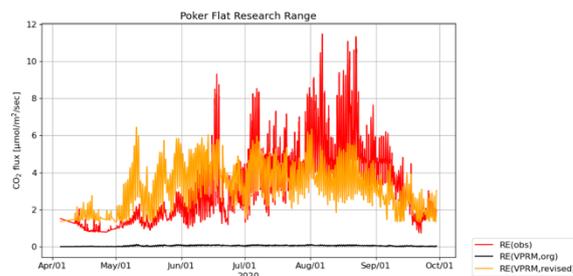


図 2 ポーカーフラットサイトにおける RE(生態系呼吸量)。観測(赤)、デフォルトパラメータによるモデル計算(黒)、最適化パラメータによるモデル計算(橙)をそれぞれ示す。

NISMON-CO₂の逆解析における任意緯度経度格子での最適化

*丹羽洋介^{1,2}, 石島健太郎²

1:国立環境研究所, 2:気象庁気象研究所

NISMON-CO₂

逆解析システム NISMON-CO₂ (NICAM-based Inversion System for Monitoring CO₂) は大気CO₂の濃度観測データから地表面のCO₂フラックス時空間変動を推定するツールとして、長期の解析 (Friedlingstein et al., 2020) や森林火災をターゲットとした事例解析に用いられている (Niwa et al., 2021)。近年、パリ協定の1.5/2度目標達成にむけて排出量削減の機運が世界的に高まる中、インベントリとは独立の観測データから推定する逆解析のデータ利用が注目されている。しかしながら、計算資源の制限により、逆解析で用いる大気輸送モデルの空間解像度は国別の排出(または吸収)量を推定するのに十分ではない。一方で、逆解析の先験情報として用いるインベントリや陸域植生モデルなどのデータは、通常、大気輸送モデルの解像度よりも細かいが、大気輸送モデルの格子への変換でその詳細な空間情報は失われてしまっていた。さらにNISMONでは、大気輸送モデルとして用いるNICAM-TMの格子形状が六角形(場所によっては五角形)になっており、この格子データからインベントリと比較しやすい緯度経度格子に変換する際にも誤差が生じてしまうという問題があった。

本研究の目的

そこで本研究では、大気輸送モデルと先験データの格子間での変換に伴う誤差を解消し、また、先験データが持つ空間情報を維持するため、大気輸送モデルの格子上でではなく任意の緯度経度格子上でフラックスの最適化計算を行うスキームを開発した。

緯度経度格子から正二十面体格子への変換

まず本研究では、緯度経度格子から正二十面体格子へのフラックスのデータ変換について新たなアルゴリズムを導入した。ここでは、図1に示すように、元の緯度経度格子(濃い縦横の格子)をより細かい格子(薄い縦横の格子)で区切り、その区切られた個々のデータがどの正二十面体格子に属するかを判断してデータを分配する。これにより、正二十面体格子のフラックスデータは

$$f'_i = \sum_{j=1}^{N_i} a_{i,j} f_j / A_i$$

と計算される。ここで、 f_j は j 番目の緯度経度格子のフラックス値を示し、 $a_{i,j}$ は細分化された緯度経度格子によって計算される j 番目の緯度経度格子と i 番目の正二十面体格子が重なる面積(図1で色が塗られた面積)を表す。 N_i は i 番目の正二十面体格子と重なる元の緯度経度格子の数を表す(図1では $N_i = 9$)。 A_i は i 番目の正二十面体格子の面積を示し、 f'_i は変換された正二十面体格子のフラックス値を表す。この変換では、フラックスの全球

積分値が変換前後で保存され、尚且つ線形であるという特徴がある。この変換と対応するアジョイントコードを4次元変分法の最適化計算に導入し、任意の緯度経度格子上で最適化計算を行うことを可能とした。

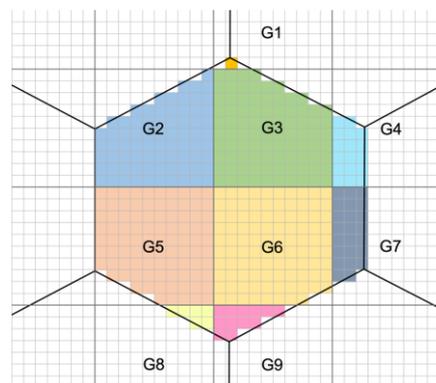


図1 緯度経度格子データから正二十面体格子データへ変換する際のデータ分配の模式図

結果

図2にNISMON-CO₂の擬似観測実験で最適化されたCO₂フラックスの分布の例(7月)を示す。この図から、正二十面体格子上で最適化されたものと緯度経度格子上で最適化されたものが、大まかには分布が一致していることが分かる。しかしながら、緯度経度格子上で最適化した場合には、黒海沿岸や東アジア、北米南部で放出を示しており、これらの分布は擬似観測データの作成に用いた真のフラックスと近くなっている。このことから、今回導入したスキームが単純に細かい緯度経度格子のフラックスを導出するだけでなく、その確度も向上させることが示された。

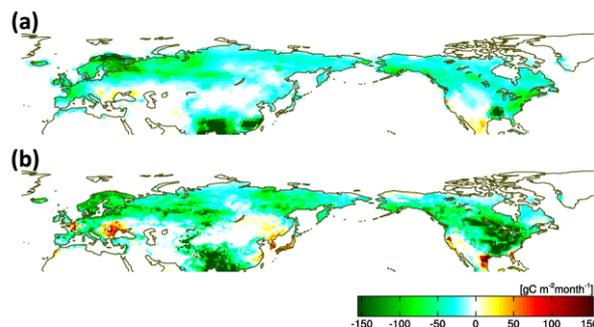


図2 NISMON-CO₂により最適化された7月のCO₂フラックスの分布(化石燃料起源は除く)。(a)正二十面体格子(~223km)上で最適化した結果。(b)緯度経度格子(1°×1°)上で最適化した結果。正が放出、負が吸収を示す。

全球メタン濃度の2020年の急増加の原因を探る —NIES観測ネットワークによるメタン濃度の時空間変動の解析—

*梅澤拓¹, 遠嶋康徳¹, 野村渉平¹, 西橋政秀¹, 寺尾有希夫¹, 向井人史¹, 中岡慎一郎¹, 笹川基樹¹, 町田敏暢¹, Astrid Müller¹, 奈良英樹¹, 杉田考史¹, 谷本浩志¹, 丹羽洋介¹, 伊藤昭彦¹, 大山博史¹, 森野勇¹, 佐伯田鶴¹, 野田響¹, 齊藤誠¹, 松永恒雄¹

1:国立環境研究所

はじめに

重要な温室効果気体であるメタン(CH₄)の系統的な大気観測は1980年頃に開始されたが、以来、全球スケールのCH₄濃度は説明の難しい複雑な変動を繰り返してきた。1980年代には10 ppb/yr以上の高濃度増加率を示していたが、1990年代には増加率が低下し、2000年代前半の濃度増加率はほぼゼロだった。ところが2007年からCH₄濃度は再増加を示し、さらに2014年に増加率が上昇し、1980年代以来初めて、増加率が10 ppb/yrを超えた。このようなCH₄濃度の全球スケールでの変動には、人為起源の排出量の増減が影響しているほか、気温や降水量の年々変動にตอบสนองする湿地やバイオマス燃焼からの放出の増減、水酸化ラジカル(OH)との反応の増減など、様々な観点から説明が試みられている。

2020年は新型コロナウイルスの感染拡大による経済活動の制限により、CO₂やNO_xなどの排出量が減少したとの研究が報告されている。これらの微量気体の一部の排出源はCH₄とも共通するものである。ところが、全球スケールでのCH₄濃度は、2020年に観測開始以来最大の増加率を示したことが、米国大気海洋庁(NOAA)の全球観測ネットワークによって報告された。この原因についてはまだほとんど研究報告がない。本研究では、主に国立環境研究所(NIES)が展開する独自の観測ネットワークの観測データを用いて、2020年のCH₄濃度の時空間変動の詳細を解析する。さらに、陸域生態系モデルVISITによって2020年の湿地からのメタン放出を計算し、さらにその放出分布をもとに大気輸送モデルでの計算を行うことで、観測データに見られるCH₄濃度の増加が説明できるかを考察する。

研究手法

NIESでは、地上ステーション、航空機、船舶など複数の観測プラットフォームを活用し、現場測定およびフラスコ採取によるCH₄濃度の観測を展開している。測定手法には、水素炎イオン化型検出器を備えたガスクロマトグラフ測定(GC-FID)とキャピティリングダウン分析計(CRDS)を用いているが、いずれの測定データもNIES 94スケールに統一されている。また、全量炭素カラム観測ネットワーク(TCCON)や、温室効果ガス観測技術衛

星GOSATのCH₄カラム平均濃度(XCH₄)データも合わせて解析した。

VISITでは、二つの湿地メタン計算スキームを用いて、全球での湿地からのCH₄放出量を計算した。また、大気輸送モデルNICAM-TMを用いて、VISITの放出量変動に対応したCH₄濃度の計算を実施した。NICAM-TMでは、2017年のフラックスを基本フラックスとして計算した場合(CTL)と、VISITによるそれ以降の年々変動を考慮した場合(IAV)を計算した。

結果

NIESの二つの地上ステーション(波照間島・落石岬)では、海外の全球ネットワークと同様、2014年以降は10 ppb/yrを超える濃度増加率が続いていたが、2020年には特に落石岬で15 ppb/yrを上回る濃度増加が観測された。また、海洋地球研究船「みらい」による北極圏航海の観測データでは、特に50°N以北において、2019年と2020年で20 ppb以上の濃度差が観測された。西太平洋の貨物船航路でも、継続的なCH₄濃度の増加が観測されているが、2020年に濃度増加率に特異な緯度分布は見られなかった。シベリア上空の航空機観測では、2020年の夏季に顕著な高濃度データが時折出現している。GOSATのXCH₄データは全球で約15 ppb/yrの濃度増加率を示した。

VISITによる湿地からのCH₄放出量では、2020年の4月から6月にシベリア域で、6月から8月に北米で放出が強まったと推定された。したがって、2020年のCH₄濃度の増加要因の一つとして、高緯度域の湿地からの放出の増加が考えられる。発表においては、VISITの放出量の変動を考慮したNICAM-TMによる計算結果と観測データの比較も示し、実際の観測結果の変動要因について考察する。

タグ付きトレーサーモデルを用いた東アジアにおける人為起源メタン排出量の検証

*池田恒平¹, 谷本浩志¹, 遠嶋康德¹

1: 国立環境研究所 地球システム領域

はじめに

メタン(CH₄)は二酸化炭素に次ぐ放射強制力を持つ温室効果ガスであり、パリ協定の2°C/1.5°C目標の達成には人間活動によるCH₄排出量の削減が不可欠であると考えられている。東アジアはCH₄の主要な発生源域の一つであり、東アジア域の排出量を正確に推計することはCH₄の収支や気候変動への影響を理解する上で重要である。本研究では、化学輸送モデルや気候モデルで用いられる4種類のボトムアップ型の人為起源排出インベントリを対象に、タグ付きトレーサーモデルによるシミュレーションとアジア大陸からの影響を受ける地上観測を比較して、東アジア域のCH₄排出量の検証を行った。

モデルと観測

本研究では、全球大気化学輸送モデルGEOS-Chem v12-8にCH₄のタグ付きトレーサー法を導入し、発生源の種類及び地域ごとにトレーサーを区別するタグCH₄計算をできるように独自の改良を行った。トレーサーの分類は表1に示すように、発生源の種類については、「化石燃料(エネルギー)」、「廃棄物・農業・その他の人為起源」、「バイオマス燃焼」、「湿地」、「その他の自然起源」の5種類に分けた。発生源の地域については、化石燃料と廃棄物・農業等の部門については、中国北部、中国南部、朝鮮半島、日本、それ以外の地域の5領域に分けた。

モデル計算に利用した人為起源排出インベントリは、REASv2.1、CEDs、ECLIPSEv5a、EDGARv4.3.2の4種類である。領域インベントリであるREASv2.1の計算については、アジア以外の領域にはCEDsの排出量を用いた。バイオマス燃焼の排出インベントリにはQFED2を

使用した。モデルの解像度は、水平方向2°×2.5°、鉛直方向は47層である。気象場にはNASA/GMAOの再解析データMERRA-2を使用した。モデル計算は、20年間スピニングアップした後、2009-2011年の3年を対象に行った。CH₄の観測値には沖縄県波照間島のモニタリングステーション(123.8°E, 24.1°N)のデータを使用し、モデル計算の結果と比較した。

結果と考察

東アジア域からの排出量を検証するために、ベースライン濃度からの増加分(ΔCH₄)に着目して解析を行った。ベースライン濃度はまず、97時間の時間範囲で20パーセンタイル値以下を平均し、さらにそれを48時間移動平均して算出した(Tohjima et al., 2020)。ΔCH₄濃度は元のCH₄濃度からベースライン濃度を引くことによって求められる。モデル計算の結果に対しても同様にしてΔCH₄濃度を算出した。

図1に波照間島における2010年1-3月の観測と4種類の人為起源インベントリを用いたモデル計算のΔCH₄の1時間濃度の時間変化を示した。モデルは観測されたCH₄の短周期的な増加イベントを概ねよく再現しており、相関係数は0.74-0.76と算出された。中国からの排出量を検証するために、全ΔCH₄濃度に対する中国起源のΔCH₄寄与が80%以上である期間のデータを選択した。データ選択後の観測と各モデル計算のΔCH₄1時間値の散布図に対して、Reduced major axis(RMA)法による回帰分析を行ない、回帰直線の傾きを算出した。回帰直線の傾きは、ECLIPSEv5aは0.97、EDGARv4.3.2は1.16、CEDsは1.17、REASv2.1は1.36と算出された。REAS以外の3つのインベントリは概ね1に近い値を示すが、REASv2.1の中国からの排出量(79 Tg/年)についてはやや過大評価していることが示唆された。

表 1 タグ CH₄トレーサー計算における発生源種類と領域分けの定義

発生源の種類	領域
化石燃料(エネルギー)	中国北部, 中国南部, 朝鮮半島, 日本, その他
廃棄物+農業+その他人為起源(家庭、輸送など)	中国北部, 中国南部, 朝鮮半島, 日本, その他
湿地	中国、その他の地域
バイオマス燃焼	全球
その他の自然起源(湖沼、シロアリなど)	全球

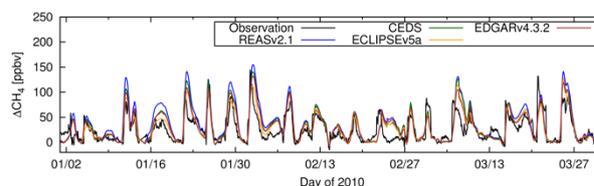


図 1 観測とモデル計算による ΔCH₄ 濃度の時間変化

引用文献

Tohjima Y. et al., Polar Science, (2020).

大気境界層の水蒸気観測を利用した 局地数値予報モデルの精度評価

*亀井敬介¹, 入江仁士¹, 清水慎吾²

1: 千葉大学環境リモートセンシング研究センター, 2: 防災科学技術研究所

研究背景

日本では、線状降水帯の発生予測の向上が急務とされている。主な発生要因の一つに、高度500 m以下の地上付近における大量の水蒸気流入があげられ、現業の予測モデルの格子解像度は線状降水帯の予測に十分でないことが知られている[Kato, 2020]。地上付近の水蒸気は、線状降水帯の根本的な原因となるにもかかわらず、その観測は非常に限られている。そのため、発生要因に直結した予測モデルの精度評価が難しいという課題がある。

研究目的

本研究は、地上観測機器の水蒸気データを用いて、大気境界層に着目した局地数値予報モデルの精度評価を行うことを目標とする。まず、後述のMAX-DOASの水蒸気データを精度評価することから始まり、今回はこの結果について述べる。

観測機器と使用データ

地上付近の水蒸気データは、MAX-DOAS(Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy) [Irie et al., 2011]による観測データを主に利用する。国内に設置された観測地点は4地点あり、千葉(35.625°N, 140.104°E)・つくば(36.114°N, 140.096°E)・春日(33.524°N, 130.475°E)・福江島(32.752°N, 128.682°E)である。使用したデータは、波長506 nmにおける鉛直カラム量と、高度の体積混合比である。MAX-DOASの水蒸気データは、CINDI campaignにより推定誤差が求められており、トータル誤差は18%であると報告されている[Irie et al., 2011]。

また、MAX-DOASの水蒸気データを比較する対象として、千葉大学の小型ウェザーステーションMaxiMet(GMX600)、気象庁アメダス、ラジオゾンデ、GPS可降水量、マイクロ波放射計を用いる。

解析方法

MAX-DOASの水蒸気データを相対湿度で比較検証した。地上で観測した相対湿度と、MAX-DOASの体積混合比データから算出した高度500 mの相対湿度を比較した。高度500 mの気圧とMAX-DOASの体積混合比データから水蒸気分圧を求め、飽和水蒸気圧 [Jacobson, 2005]との比をとることにより、MAX-DOASの相対湿度を算出した。

比較を行ったのは、千葉・つくば・福岡の3地点であり、MaxiMetとアメダスの観測値を利用した。

また、MAX-DOASの水蒸気データを可降水量で比較検証を行った。MAX-DOASの鉛直カラム量データから可降水量を算出し、GPS可降水量[森ら, 2006]とマイクロ波放射計[清水, 防災科研]と比較した。

結果と考察

図1は、Chiba Campaign(2021/07/26-08/08)における、前述のMAX-DOASの相対湿度と、MaxiMetで観測した地上の相対湿度の比較である。外れ値も見られるが、全体的に差異が10%以内にとどまっている。

2020年におけるMAX-DOASの相対湿度と、アメダスで観測した地上の相対湿度の比較を行い、結果を表1に示した。千葉・つくば・福岡それぞれの、相関係数Rと二乗平均平方根誤差RMSE、平均絶対誤差MAEを表している。相関係数は0.8以上、RMSEとMAEは15未満であり、3地点で似た結果が見られた。

この比較は、高度500 mと地上付近の相対湿度を比較しており、高度によって水蒸気の分布が異なる時や、水蒸気の鉛直方向の移動が激しい時は差異が生じる。そのため、高度ごとの検証が必要となる。

今後の研究では、ラジオゾンデ観測との比較を行うことにより、高度ごとにMAX-DOASの精度評価を行う。加えて、可降水量や気象条件、他地点での結果と総合的に比較検証し、MAX-DOASの水蒸気データの使用条件を確定する。

表1 2020年におけるMAX-DOASとアメダスの相対湿度の比較

地点	R	RMSE	MAE
千葉	0.81	13	10
つくば	0.88	10	7.5
福岡	0.83	9.2	7.1

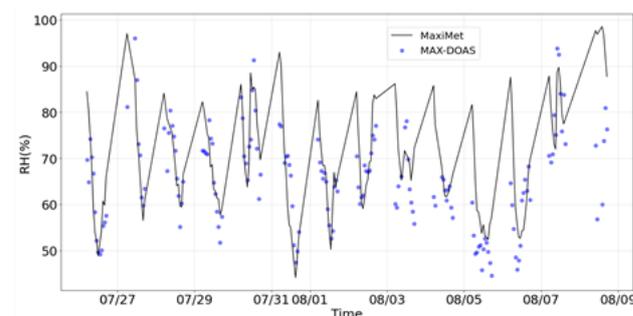


図1 Chiba Campaign期間における、MAX-DOASから算出した相対湿度とMaxiMetで観測した相対湿度の比較

大気モニタリングに向けたVOCの測定及び校正システムの開発

* 齊藤拓也¹, Stephen Andrews²

1:国立環境研究所, 2:University of York

大気中の揮発性有機化合物 (VOC) は、対流圏オゾンなどの前駆体として働くことで大気質や気候変動に関わっている。東アジアはVOCの大きな発生源域と考えられており、大陸で排出されるVOCの組成や風下地域への輸送中におけるVOCの変質過程の理解が大気質などの現象解明のキーになると考えられている。しかし、化学的に多様な性質を持つVOCを成分別かつ連続的に測定する手法が確立されていないため、長期的な大気観測例が限られている。本研究では、大気モニタリングによるVOC排出・変質実態の把握を目的としたプロジェクトの一環として、含酸素成分を含む広範なVOCの連続測定手法を開発することを目的とした。

大気中のVOCは、一般にパーマピュアドライヤーなどの透湿性の半透膜を用いて試料を除湿した後に加熱脱着過程を経てガスクロマトグラフに送られ、質量分析計 (MSD) や水素炎イオン化検出器 (FID) で検出される。また、装置の校正には大気濃度レベルに調整された標準ガ

スが用いられる。しかし、プロモホルムやDMS、モノテルペンのように大気中で短寿命なVOCは標準ガス容器内での安定な保存が困難なことに加え、アルコールやアルデヒド、ケトンなどの含酸素VOCは透湿性半透膜でも変質が起こるため、こうした方法を用いることができない。

そこで本研究では、低温トラップによる除湿機構と標準ガスの希釈機構を備えたVOC測定システムを開発した。VOC測定システムはスターリング型冷凍機を核とする大気濃縮装置 Unigoat¹⁾、外気を使って高濃度標準ガスを現場で大気濃度レベルに調整する希釈装置 Cerberus、極性の異なる複数のキャピラリーカラム、それぞれ定量、定性に優れたFIDとMSDから構成される。当日は本システムの開発状況を述べると共に本装置を沖縄県・波照間島に設置して大気を観測した結果について報告する。

Ref

1) 齊藤、アンドリュース、特許第 6935116 号

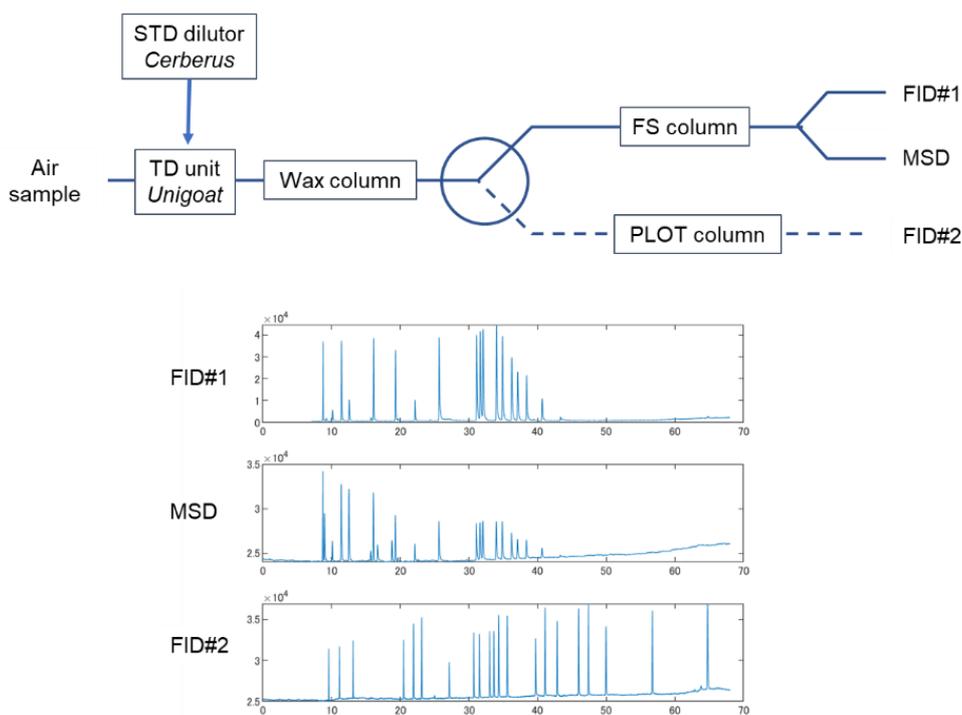


図1 VOC測定・校正システムの概略(上段)と標準ガスの分析におけるクロマトグラムの一例(下段)

地上高分解能FTIRによる太陽光吸収スペクトルからのイソプレン カラム量解析手法の研究

*長濱智生¹, 森野 勇², 村田 功³

1:名古屋大学宇宙地球環境研究所, 2:国立環境研究所, 3:東北大学大学院環境科学研究科

背景

大気中の炭化水素は、多くが揮発性有機化合物 (VOCs) として排出され、その約1/3がイソプレンである。日中、炭化水素は窒素酸化物 (NOx) との化学反応過程により、大気汚染物質の中でもっとも代表的な対流圏オゾンを生産する。そのため大気質の保全の観点からは、炭化水素等のオゾン関連物質の抑制と大気中への排出管理が重要である。

大気中の炭化水素の主な源であるイソプレンの年間放出量は、全球で約500 TgC/yrと推定され、ほとんどが熱帯広葉樹や低木等の植物から放出される。イソプレンはOHとの反応等により、その多くはホルムアルデヒドとなり、また高いNOx濃度環境では対流圏オゾンの生成に寄与する。また、一部はエアロゾルの形成過程に関与するなど、イソプレンは大気汚染の原因物質の一つである。しかしながら、大気中のイソプレンの動態に関する我々の知見は未だ十分ではない。様々なNOx濃度環境における、境界層から自由対流圏までを含む大気中のイソプレンの動態は様々な地域での大気汚染の理解に不可欠であり、またその長期的変動に関しては、継続したモニタリング観測が不可欠である。

大気中のイソプレンの観測は、多くが分析化学手法による地表付近でのサンプリング観測であり、境界層から自由対流圏までカバーした上空のイソプレンのモニタリング観測は行われていない。可視分光法による衛星観測で得られたホルムアルデヒドの分布からインバージョン解析によりイソプレン濃度を間接推定することが行われてきたが、イソプレンに関連した物理量を直接測定したものではないため、多くの不確実性が存在すると指摘されている。

高分解能FTIRによる太陽光吸収スペクトルからのイソプレンカラム量解析

このような背景のもと、我々のグループではイソプレン自身による吸収スペクトルの分光観測によるカラム量導出に取り組んでいる。イソプレンは熱赤外領域(波長10 μm 前後)にも吸収を持ち、その吸収断面積が測定されている。さらに近年、NASA/JPLグループにより温度依存性や圧力広がり等の情報を含む疑似分光パラメータも公開され、赤外分光スペクトルからイソプレンカラム量を定量解析する環境が整ってきた。

我々は1995年以降、北海道陸別町で国立環境研究

所とともに運用している地上高分解能フーリエ変換型赤外分光器(現在は、Bruker社IFS120HR/5)による太陽光吸収スペクトルのモニタリング観測を行っている。太陽光吸収スペクトルは 0.0035 cm^{-1} の波数分解能で3~15 μm の帯域で取得されている。得られたスペクトルから高度分布解析ソフトSFIT4を用いて、オゾンやメタンなど10種類以上の大気微量分子の高度分布及びカラム量を導出し、それらのデータを広く公開している。

今回初期的な解析として、イソプレンに関しても同様の手法を適用してカラム量を求めることを試みた。波数領域900-910 cm^{-1} のスペクトルを用い、CO₂と水蒸気の高度分布を事前に解析したのちに、CFC-11, CFC-12, HCFC-142b, NH₃, HNO₃と同時にイソプレンの高度分布を求め、それを積分してカラム量を得た。イソプレン高度分布の初期推定値としてWACCMによる1980年から2040年までのシミュレーションの陸別上空における平均高度分布(図1)を用い、分光パラメータはNASA/JPLグループによる疑似分光パラメータを用いた。気温・気圧の高度分布は観測日当日のNCEP Reanalysis日平均データを用いた。2019-2020年に取得されたデータを解析した結果、平均で $1 \times 10^{15}\text{ cm}^{-2}$ 程度のカラム量を得たが、ばらつきが大きく、現時点では非常に大きな不定性が残っていることがわかった。

発表では、解析手法の詳細と今後の見通しについて報告する。

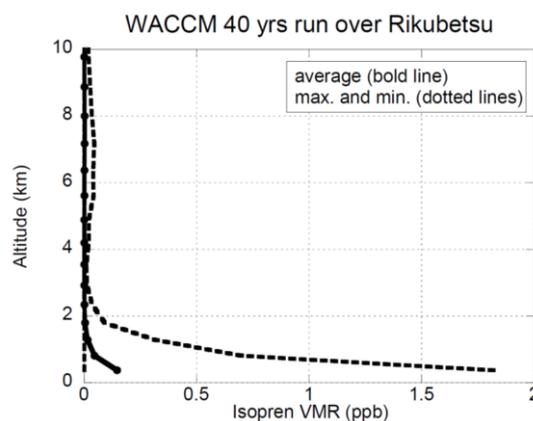


図1 WACCMによる陸別上空でのイソプレン高度分布。1980-2040年の期間の平均値(太線)と最大・最小(点線)を示す。

モノテルペンのオゾン分解からの二次有機エアロゾル生成機構の研究

*山本慎尋¹, 廣川淳², 猪俣敏³

1:北大環境科学院 2:北大地球環境科学研究所 3:国立環境研究所

緒言

モノテルペン(C₁₀H₁₆)類は、地球大気中の二次有機エアロゾル(SOA)の主要な発生源であると考えられている。最も多く排出されるモノテルペン類である α -ピネンのオゾン分解反応は、酸化度の高い有機分子(HOM)の生成を通して、新粒子生成(NPF)過程を含むSOA生成に関与することが指摘されているが¹, その化学機構にはいまだ不明な点が多い。

本研究では、SOA生成に至る化学機構の解明を目的として、 α -ピネンのオゾン分解反応から生成するSOAとHOMに対して、水蒸気およびOH捕捉剤の添加が及ぼす影響を実験的に調べた。

実験操作

実験は、体積約500 Lのテフロン製ガスバッグを用いて行った。乾燥条件の実験では、純空気(N₂, O₂)と α -ピネンの混合気体をバッグ内に調製し、そこに低圧水銀ランプからの真空紫外光を純空気に照射して発生させたオゾンを導入することで、オゾン分解反応を開始した。加湿条件の実験は、水蒸気もあらかじめ加えて同様に行った。また、オゾン分解反応で生成するOHラジカルの影響を除去するため、OH捕捉剤としてノルマルヘキサンを添加した実験も行った。

反応に伴うオゾン濃度と気相生成物濃度の時間変化を、紫外吸収型オゾン濃度計とSO₂Cl₂を試薬イオンとした化学イオン化質量分析計(CIMS)でそれぞれ測定した。また、粒径9.82-414.2 nmまでの範囲で生成した粒子の粒径分布をSMPS(Scanning mobility particle sizer)で2.5分おきに測定し、そこから粒子の総個数濃度C_n(cm⁻³)、総体積濃度C_v(nm³ cm⁻³)、平均粒径(nm)を求めた。

反応開始時の α -ピネンおよびオゾンの体積混合比はそれぞれ450-600 ppbv および800-900 ppbvであった。加湿条件の実験での相対湿度は約30%であった。OH捕捉剤を加えた実験において、反応開始時のノルマルヘキサンの混合比は600 ppmvと見積もられた。シード粒子は加えなかった。

結果と考察

図1に各条件での総粒子個数濃度C_nの時間変化を示す。C_nは、OH捕捉剤なし・乾燥条件(●)で最も高く、次いでOH捕捉剤なし・加湿条件(▲)、OH捕捉剤あり・乾燥条件(×)の順となった。加湿条件では、オゾン分解で生成するクリーギー中間体の一部が捕捉されることから、この結果は、 α -ピネンからのNPFに、OH酸化反応とオゾン分解反応の両方が関与していることを示

唆しており、 α -ピネンからのNPF機構として、OH酸化生成物のオゾン分解反応が関与することを提案しているInomata²と整合する。一方、対応する総体積濃度C_vの時間変化を図2に示す。C_vも、OH捕捉剤なし・乾燥条件で最も高くなったが、OH捕捉剤なし・加湿条件とOH捕捉剤あり・乾燥条件でほぼ等しくなった。

発表では、CIMSで検出された気相生成物濃度の結果も含めて、 α -ピネンからのNPFおよびSOA成長の化学機構を議論する。

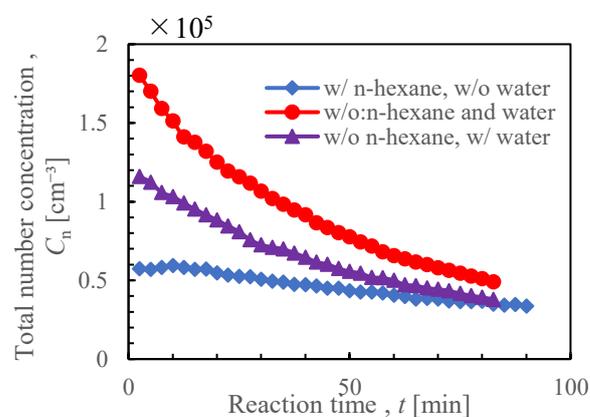


図1 総粒子個数濃度の時間変化

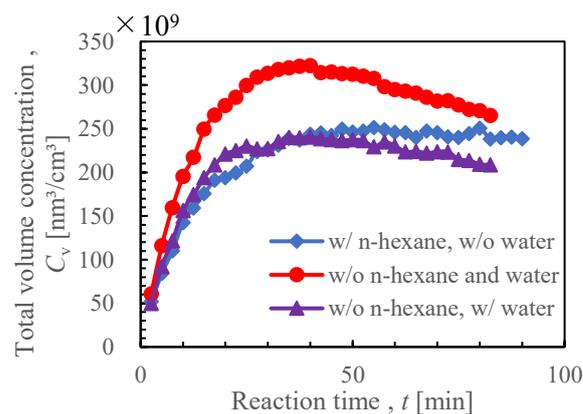


図2 総体積濃度の時間変化

参考文献

- (1) Ehn, M. et al., A large source of low-volatility secondary organic aerosol. *Nature*, **2014**, 506, 476–479.
- (2) Inomata, S., New particle formation promoted by OH reactions during α -pinene ozonolysis. *ACS Earth Space Chem.*, **2021**, 5, 1929–1933.

trans-3-hexeneのオゾン反応におけるsCI捕獲剤の添加効果

*内田里沙¹, 今村隆史²

1:日本自動車研究所, 2:国立環境研究所

はじめに

アルケンのオゾン酸化反応の初期過程では、クリーギー中間体(CI)と呼ばれる反応中間体が生成することが知られている。CIは、過剰な内部エネルギーを蓄えているため、単分子分解するか、他のガス分子と衝突緩和してエネルギー的に安定化したCI(sCI)を形成する。量子化学計算により、CIおよびsCIには幾何異性体(syn体とanti体)が存在することや、CIおよびsCIを経由して、OHラジカルが生成することが報告されている。

我々はこれまでに、OHラジカルが主にsyn-CIから生成されるのに対し、アルカンがanti-CIから特異的に生成される点に着目して、O₃+アルケン反応からのanti/syn-CIの生成分岐比を推定する方法を提案してきた。今回は、trans-3-hexeneのオゾン酸化反応系にsCI捕獲剤である酢酸を添加することで、CIおよびsCIからのアルカンおよびOHラジカルの生成に与える影響を実験的に調査したので報告する。

実験方法

実験は、国立環境研究所の6 m³の光化学スモッグチャンバーを用いて行った。チャンバー内に精製空気を充填したのち、オゾン、OHTレーサー(1,3,5-トリメチルベンゼン; TMB)、sCI捕獲剤(酢酸)、そしてアルケン(trans-3-hexene)の順にサンプルを導入して、反応を開始させた。反応物および生成物の濃度は、FT-IR分光光度計(光路長221.5 m)により測定した。

sCIの生成量の違いによる影響を調査するために、sCI捕獲剤の添加量や、異なる圧力条件で実験を行った。実験条件を表1にまとめる。

結果と考察

1. アルカンの生成収率測定

trans-3-hexeneのオゾン反応からはエタン(C₂H₆)の生成が確認された。exp.1~exp.4において、C₂H₆生成収率は、sCI捕獲剤の添加量に関わらず、ほぼ同じ収率を示し、その平均値は0.082±0.010であった。exp.5とexp.6の低圧(0.1 atm)条件下では、1気圧条件下で得られた生成収率よりも高かったものの、1気圧条件下と同様に、sCI捕獲剤の添加による生成収率の変化は見られなかった。これは、アルカンが衝突緩和を受ける前のCIから生成していることを示し、我々のこれまでの考えと相違ない。

2. OHラジカルの生成収率測定

sCI捕獲剤の添加量の異なるexp.1~exp.4において、sCI捕獲剤の添加量が増加するにしたがって、OH生成収率が低下する傾向が見られた。これは、OHラジカルが衝突緩和を受ける前のCIおよび衝突緩和を受けた後のsCIからも生成していることを示しており、Hakara and Donahue(J. Phys. Chem. A 2018, 122, 9426-9434)の結果と整合的であった。

sCI捕獲剤を添加しない1気圧条件(exp.1)、sCI捕獲剤を添加した低圧(0.1 atm)条件(exp.6)、1気圧条件(exp.4)において、OHラジカルの生成収率は、それぞれ0.67、0.57および0.26となった。これより、OHラジカルは、低圧(0.1 atm)条件では、大半が衝突緩和を受ける前のCIから生成していること、1気圧条件では、sCIから約40%(0.26/0.67)生成されることが示唆された。

表1 実験条件と結果

exp.No	Initial conditions					Results	
	Pressure [atm]	trans-3-hexene [ppm]	O ₃ [ppm]	TMB [ppm]	acetic acid [ppm]	C ₂ H ₆ yield	OH yield
exp.1	1	2.5	0.45	0.49	-	0.094	0.67
exp.2	1	2.5	0.45	0.49	0.79	0.082	0.37
exp.3	1	2.5	0.44	0.50	1.7	0.072	0.31
exp.4	1	2.5	0.46	0.48	3.1	0.089	0.26
exp.5	0.1	2.5	0.44	0.42	-	0.143	0.74
exp.6	0.1	2.5	0.45	0.50	3.0	0.143	0.57

二酸化炭素分離・回収技術に使用される エタノールアミンとオゾンの水溶液中での反応速度

高原優¹, 上田哲也¹, 山田秀尚², 江波進一³, 原田明¹, *藪下彰啓¹

1:九州大学, 2:金沢大学, 3:国立環境研究所

1. はじめに

地球温暖化対策として、火力発電所や製鉄所等から排出される二酸化炭素(CO₂)を分離・回収し、利用あるいは地中に圧入する CO₂ 回収・利用・貯留 (CCUS: Carbon Capture Utilization and Storage) 技術が注目されている。回収技術の種類としては化学吸収法(吸収液に溶解させる)、膜分離法(CO₂のみが透過する膜で選分けする)、吸着法(吸着剤に吸着させる)、物理吸収法(吸収液に高圧の CO₂ を物理的に吸収させる)、深冷分離法(極低温で液化後に沸点の差を利用して分離する)等が存在する。化学吸収法では排ガスに含まれる CO₂ をアルカリ性溶液に吸収させることで、他の成分と分離させる。CO₂ の吸収液の有力な候補のひとつは有機アミンである。

微生物による発酵・腐敗生成物等に由来するアミンは従来の大気化学でも取り扱われてきたが、近年、上述の CO₂ 回収技術を背景として、研究の重要性が高まっている。アミンの大気化学反応は、光分解と NO₃ ラジカル、OH ラジカルや O₃ 等の酸化剤との反応によるものが主であり、気相と水相(大気中の水を含むエアロゾル粒子、雲等の液滴)の両方で起こる。本研究では、水相におけるエタノールアミンと O₃ の反応速度定数、活性化エネルギーと頻度因子を求めた。

2. 実験

(1)2-(Dimethyl)aminoethanol(DMAE) 、 (2)N-Methyldiethanolamine(MDEA) 、 (3)2-(Methylamino)ethanol(MAE) 、 (4)2-Aminoethanol(AE) の4種類のエタノールアミンについて実験を行った。O₃ との反応速度はダブルビーム式紫外可視分光光度計(SHIMADZU/UV-2600)を用いて測定した。参照側のセルに O₃ を含んだリン酸緩衝液 3.5 mL に *tert*-Butanol 含リン酸緩衝液をピペットで 100 μL 滴下し、同様に試料側には O₃ を含んだリン酸緩衝液 3.5 mL にエタノールアミン類を含む *tert*-Butanol 含リン酸緩衝液を 100 μL 滴下し、両側のセルをそれぞれ1回振ってからセルホルダーにセットした。反応は溶融石英セル内で進行させた。O₃ の吸収ピーク波長である 260 nm に固定して、[O₃]の時間変化を測定した。5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40 °Cでそれぞれ 300 秒間測定を行った。

初期 O₃ 濃度は 10~60 μM とした。エタノールアミン類の濃度は、主に(1)DMAE 4 mM、(2)MDEA 1 mM、

(3)MAE 2 mM、(4)AE 15 mM で測定を行った。また、それぞれに *tert*-Butanol 1 mM を添加した。その理由は、O₃ と有機物の反応過程において生成する OH ラジカルとエタノールアミン類との反応を抑制するためである。*tert*-Butanol と O₃ の反応速度定数は ~ 0.003 M⁻¹s⁻¹ と小さく、一方 OH との速度定数は 4.8 × 10⁸ M⁻¹s⁻¹ と大きな値をとる。また、溶液中で O₃ は OH⁻によって分解されるため、全ての実験溶媒はリン酸緩衝液(pH=2.15)を用いた。

3. 結果

(1)DMAE、(2)MDEA、(3)MAE、(4)AE の 25°Cでの反応速度定数を Table 1 に示す。各々の条件下で3回以上測定した。(1)DMAE、(2)MDEA、(3)MAE は [O₃] と [エタノールアミン] に依存する 2 次反応、(4)AE は [O₃] と [AE]² に依存する 3 次反応を仮定して解析すると [エタノールアミン] に依存しない速度定数が得られた。理由は考察中である。酸性条件下では、(置換)アミノ基の N はプロトン化されているため O₃ とはほとんど反応しないので、ヒドロキシ基(OH)を有するアルコールが O₃ と反応していると考えられる。そのため、ヒドロキシ基の電子密度が高くなるほど O₃ との反応速度定数が高くなっていると考えている。

15, 20, 25, 30, 35 °Cでのアレニウスプロットから得られた活性化エネルギー(E_a)と頻度因子(A)を Table 1 に示す。

表 1 (1)DMAE、(2)MDEA、(3)MAE、(4)AE の二次反応速度定数と活性化エネルギーと頻度因子

	k (25°C)	E_a	A
(1)DMAE	$0.58 \pm 0.04 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$	75±2 kJ	$8.6 \times 10^{12} \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$
(2)MDEA	$2.3 \pm 0.2 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$	73±2 kJ	$1.3 \times 10^{13} \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$
(3)MAE	$0.21 \pm 0.01 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$	81±2 kJ	$3.6 \times 10^{13} \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$
(4)AE	$4.3 \pm 0.6 \text{ M}^{-2}\text{s}^{-1}$	54±4 kJ	$1.6 \times 10^{10} \text{ M}^{-2}\text{s}^{-1}$

4. 結論

実験方法を確立することができた。CCUS で使用されているエタノールアミン類と O₃ の水相における反応速度定数、活性化エネルギー、頻度因子を実験的に求めることができた。

5. 参考論文

H. Yamada, *Polym. J.*, **53**, 93–102 (2021)

気体NO₂と凍結したKI水溶液の不均一反応

* 上田 哲也¹, 江波 進一², 中野 幸夫³, 原田 明¹, 薮下 彰啓¹

1:九州大学大学院総合理工学府, 2:国立環境研究所, 3:東京学芸大学教育学部

1. はじめに

ヨウ素化合物は大気中において、対流圏オゾンの触媒的分解や水銀の酸化反応などによって大気環境に影響を及ぼす。Atkinsonらによるウェッデル海上での観測結果によると、IOの分布と海氷面に顕著な相関があり、海表面がヨウ素のソースとなっている可能性が示唆されている¹⁾。しかし、海氷からのヨウ素放出の原因やメカニズムについては、よくわかっていない。従来の研究では、無機的な放出源として、光やオゾンによるI₂生成が確認されている²⁾。その他の可能性として本研究ではNO₂に着目した。NO₂(g)は、固体のヨウ化カリウム(KI)との不均一反応によりI₂(g)を生成することが報告されている³⁾が、ヨウ化物イオンを含む氷との反応については研究が行われていない。そのため、Iを含んだ氷とNO₂(g)との反応によるI₂生成について研究を行った。I濃度とI₂発生との関係、反応後に生成した成分と定式化したI₂(g)放出速度について報告する。

2. 実験

濃度調整したKI水溶液(0.0050~1.0 mM)を263 Kのガラスセル内で冷却し、厚み1.2 mmの氷を作製した後、253 Kまで温度を下げた。窒素ガスをパージシキャビティリングダウン分光法(CRDS)により532.874 nm~532.920 nmのベースラインを測定した。窒素ガスを濃度3.5 × 10¹³ molecules/cm³のNO₂(g)に切り替え、圧力760 Torr、流量155 sccmで流すことにより反応を開始した。反応開始から20分までは二波長(532.885 nm, 532.914 nm)を30秒ごとに入れ替え吸収を測定し、20分以降は5分ごとに、スペクトル測定しI₂(g)濃度を算出した。このI₂(g)濃度が一定となるまでNO₂(g)を流した。反応終了後は氷を溶かし、溶液を吸光光度計により吸収スペクトル(200~400 nm)を測定しNO₃⁻、I⁻濃度を算出した。また、ナフチルエチレンジアミン吸光光度法により、反応後溶液のNO₂⁻濃度を測定した。実験は[KI(aq)] = 0.10 mMでは3回、その他の濃度では1回ずつ行なった。

3. 結果・考察

今回、CRDSの測定範囲であるセル内にはI₂(g)の他にもNO₂(g)が存在する。また、I₂(g)以外の気体が生成する可能性もある。そのため、既報の吸収断面積と測定した吸収スペクトルを用いて[I₂(g)]、[NO₂(g)]算出した後、その濃度から計算される吸収スペクトルと実際のスペクトルを比較することで、他に吸収に影響する気体がないことを確認した。

図1にKI濃度とI₂(g)放出速度の関係を示す。このI₂(g)放出速度は、一定となったI₂(g)濃度とNO₂(g)流量、氷

の表面積から算出した。図1に示すように、[KI(aq)] ≤ 0.05 mMではKI濃度とI₂(g)放出速度は比例関係にある。この結果から、[KI(aq)] ≤ 0.05 mMでは、I₂(g)放出に対するIの反応次数は1であることが推測される。また、[KI(aq)] ≥ 0.10 mMではI₂(g)放出速度の相関関係は変わり、0.50 mMでは低下した。要因の一つとして、I₂(aq)+I⁻(aq) ⇌ I₃⁻(aq)の平衡はI₃⁻(aq)生成反応が優位であるため、I₂が気相へ放出されないことが考えられる。[KI(aq)] ≥ 0.50 mMでは、反応後溶液にI₃⁻の吸収スペクトルが確認され、この推測を裏付ける結果となった。

図2にそれぞれのKI濃度における反応後溶液のNO₂⁻(aq)濃度、NO₃⁻(aq)濃度、消費されたI⁻濃度を示す。[KI(aq)]上昇に伴い消費I⁻濃度が増えた。また、NO₂⁻(aq)濃度は[KI(aq)] ≤ 0.050 mMで消費I⁻濃度と等しかった。一方、[KI(aq)] ≥ 0.10 mMでは、NO₂⁻(aq)濃度と消費I⁻濃度に差が生じ、NO₃⁻(aq)濃度が上昇した。この一因として、[KI(aq)]が高い場合、氷表面に析出したKI(s)とNO₂(g)との反応によりKNO₂(s)が生成し、式(1)の反応³⁾によってKNO₂(s)が消費され、KNO₃(s)が生成したと考えられる。

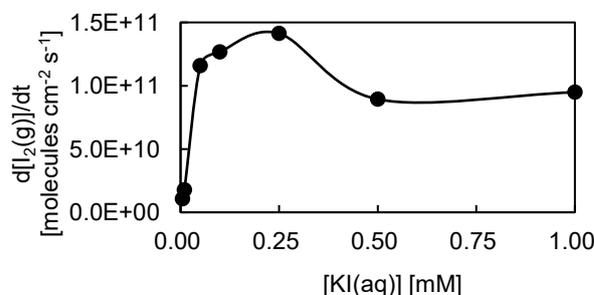
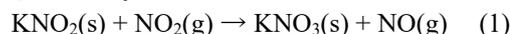


図1 反応前KI濃度とI₂(g)放出速度の関係

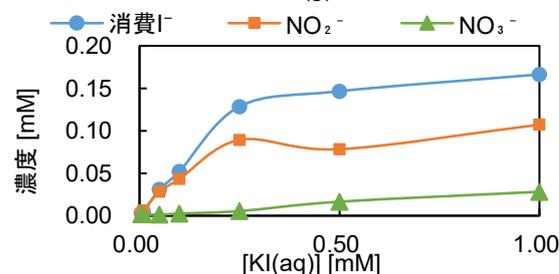


図2 反応前KI濃度と反応後の消費I⁻、NO₂⁻、NO₃⁻濃度の関係

4. 文献

- 1) H. M. Atkinson, et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 2012, 12, 11229
- 2) J. W. Halfacre, et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 2019, 19, 4917
- 3) E. O'Neill and R. Z. Hinrichs, *J. Geophys. Res.*, 2011, 116, 1

衛星データを用いた船舶NO₂の検出

*中村綾乃¹, 吉川真由子^{2,1}, 佐藤知紘¹, 笠井康子¹

1:情報通信研究機構, 2:株式会社ウェザーニューズ

はじめに

海上を航行する船舶は、温室効果ガスや大気汚染物質の排出源の一つであるが、近年、その影響が深刻であることから、国際海事機関(IMO)では、NO_xやSO_xなどの大気汚染物質の規制をそれぞれ2016年、2020年から強化している[1,2]。現在、船舶から排出される大気汚染物質のモニタリングは、地上や海上等におけるサンプル測定が中心であり、船舶排出量の監視のためには時間的連続性や空間的な広域性が課題となっている。

本研究では、広域性を実現するために宇宙からの衛星データを用いた船舶NO₂の検出を試みた。衛星データはサンプル測定に対して感度が低いこと、船舶一艘を捉える空間分解能がないことから、これまで排出ガスの検出は困難とされていたが、雲がなく風も穏やかであった2018年7月2日の地中海を運行する船舶を対象に初めて検証された例が存在する[3]。本研究の目的は、イベント的にNO₂が増加していると思われる2021年3月にスエズ運河で発生した大規模な座礁事故を対象に、宇宙からの船舶NO₂排出モニタリングの可能性をさらに検証するものである。

使用データ

衛星データはTROPOMI/Sentinel-5pで測定された高分解能モードNO₂全量データ(5.5km x 3.5km)を使用した。船舶位置と種類は、船舶自動識別装置(AIS)からの船舶位置情報などにより取得した。ここでは、NO₂排出量が多い大型の貨物船とタンカーのみを選別した。

解析方法・結果・考察

対象域はスエズ運河周辺の東経32度~38度、北緯22度~28度の海域とした。

図1に、スエズ運河における座礁事故後に運河が開通した3/30から4/5の7日間の大型船の航路とNO₂量の広域マップを示す。船舶の航路に沿ったNO₂量の増大が見られる。図2に週単位で事故発生前後のNO₂量の推移を示す。

事故前及び事故期間中の3/1~3/29の週単位のNO₂平均カラム量は $6.2\sim 6.3\times 10^{-5}$ [mol/m²]程度、事故後3/30~4/20の週単位の平均カラム量は、 7.4×10^{-5} [mol/m²]であり、2割程度の増加がみられた。事故により停泊していた多くの船舶が、開通とともに運航を再開したと示唆される。

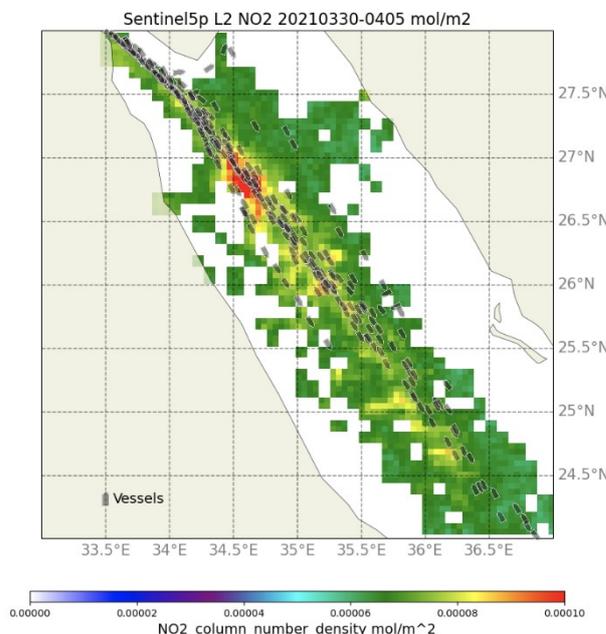


図1 スエズ運河開通後の周辺海域のNO₂濃度分布

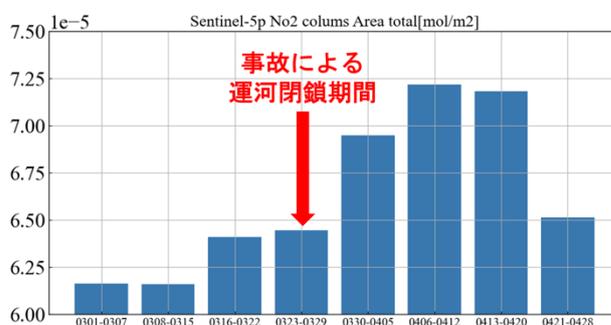


図2 スエズ運河周辺海域のNO₂濃度の時間推移

おわりに

衛星データと船舶データの両者を用いることにより、2021年3月にスエズ運河で発生した座礁事故後、船舶量の増加によるNO₂量が2割程度増大していたことが分かった。

参考文献

- [1] IMO: Nitrogen Oxides (NO_x)-Regulation13
- [2] IMO: Sulphur Oxides (SO_x) and Particulate Matter (PM)-Regulation14
- [3] A. K. Georgoulas et al: Detection of NO₂ pollution plumes from individual ships with the TROPOMI/S5P satellite sensor, Environ. Res. Lett. 15 124037, 2020.

富士山での火山性ガス監視システムの構築

*加藤俊吾¹, 高橋智樹¹, 中村まりあ¹, 矢田茂久¹, 辰巳紘奨¹, 三浦和彦^{2,5},
大河内博³, 鴨川仁⁴, 土器屋由紀子⁵

1:東京都立大学, 2:東京理科大学, 3:早稲田大学, 4:静岡県立大学, 5:富士山環境研究センター

1. 緒言

富士山頂は高度 3776m の自由対流圏にあり, 遠方から長距離輸送される汚染大気を捉えるのに適している。そのため, これまで夏季の富士山頂において, SO₂ などの大気汚染物質の観測を行ってきたが, 石炭燃焼由来ではなく桜島などの火山活動により放出される火山性ガスが検出される事例がみられた。また, 富士山自体も最後の宝永噴火から 300 年以上経過し, いつ噴火が起きてもおかしくない。そのため, 富士山において火山性ガスのモニタリングは防災に役立てることができる。商用電源の利用ができない, そもそも冬季は行くことすらできない地点もあるため, 本研究では, 電力消費の少ない SO₂ および H₂S ガスセンサーを用いて富士山頂でのリアルタイム通年観測(越冬観測), 山小屋などに夏期だけ設置することを念頭においた小型の計測システムの開発, 登山道などを移動しながら観測を行い, 富士山の火山ガス監視をすることを目指している。

2. SO₂, H₂S ガスセンサー

SO₂, H₂S の測定は, Alphasense 社のガスセンサー(SO₂-B4, H₂S-B4)を用いた。SO₂ センサーは, 実験室内で標準ガスを用いて応答をみると, 濃度に直線的にตอบสนองし数 ppb までの低濃度の SO₂ の検出が可能であった。しかし, 実際の大气の観測をすると温度などの影響を大きく受けて SO₂ センサーの出力値が数十 ppb の変動をしてしまい低濃度の測定は難しいことが分かった。

3. 大涌谷での測定

実際の大气で噴火時に出るような高濃度の火山性ガスを検出できるか確認するため, 箱根大涌谷において大気観測テストをおこなった。乾電池で SO₂ センサーやデータロガーを動作させるようにした。大涌谷の火山性ガスの影響を受ける地点では 1000ppb ほどのシグナルが観測された。実大气でもこのセンサーにより近傍から発生する高濃度の火山性ガスを捉えられることが確認できた。

4. 富士山頂での越冬観測システム

防災の用途には, ガスセンサーによる観測値をリアルタイムで把握できる必要がある。そのため, 低消費電力でかつ長距離通信が可能な ELTRES(ソニーセミコンダクタソリューションズ開発)という無線データ転送機器を利用した。富士山頂にガスセンサーと ELTRES を寒冷地用バッテリーにより駆動させるシステムを設置し, 2019 年 8 月から火山性ガス測定結果をリアルタイムで配信する越冬観測に成功した。2020 年 7 月に, センサーは明

らかなノイズが出るようになった。水分等が, 電極内に入りこみ故障したことが考えられる。データ転送機器(ELTRES)に関しては, 富士山頂で作業が可能になった 2021 年 7 月まで約 2 年にわたり無人の観測地点でデータを転送しつづけることができた。

5. 小型システムでの観測

富士山の噴火は山頂ではなく別の場所で起こる可能性が高い。そのため, 多地点で測定を行いたい, 登山客の多い夏期だけでも山小屋などに設置を依頼する場合にはなるべくコンパクトにする必要がある。ELTRES とガスセンサーを乾電池で駆動させ野外設置用に防水対策を施したシステムを富士山麓の太郎坊に設置し, テスト観測を行った。乾電池での測定でも 2 週間ほど駆動ができたため, 乾電池の並列化などにより夏期の登山期間(約 2 か月)を動作させることができることになる。

6. 登山道をもちあるいての観測

登山道を乾電池駆動の ELTRES とガスセンサーを持ち運びながら計測すると, より多くの地点で測定をおこなえる。富士山には主に 4 つの登山ルートがある。富士吉田ルートで計測した例を図に示す。リアルタイムで多地点の測定結果を統合した「火山ガス濃度マップ」を作成できることを将来的な目標としている。

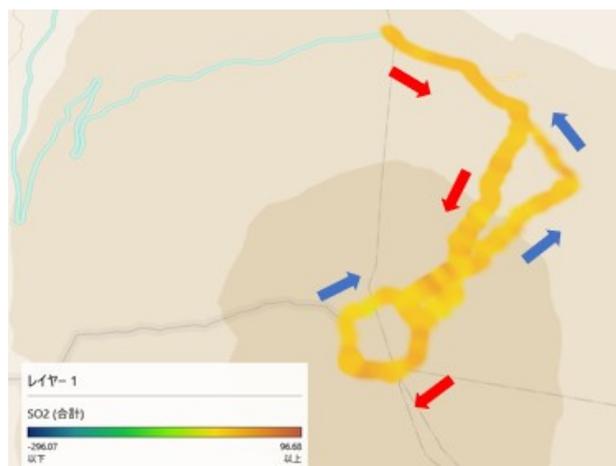


図 富士山登山道をガスセンサーで計測した SO₂ 濃度マップ(濃度は補正前の値)(2021/8/6)

謝辞: この研究は新技術振興渡辺記念会の補助, NPO 富士山測候所を活用する会の協力を受けて行われた。ELTRES の利用でソニーセミコンダクタソリューションズのご協力に感謝いたします。

夏の所沢における PANs 全量とオゾンの連続観測と相関解析

*松本淳¹, 定永靖宗², 加藤俊吾³, 谷本浩志⁴, 猪俣敏⁴

1:早稲田大学, 2:大阪府立大学, 3:東京都立大学, 4:国立環境研究所

1. はじめに

オゾン O₃ を主成分とする光化学オキシダントの問題は依然重要である。地上オゾン濃度を正しく予測できるモデルの確立には、観測に基づく現状把握と解析が必要であり、特に窒素酸化物に関する化学過程の検証が急務である[1]。光化学反応で O₃ とともに生成するパーオキシアシルナイトレート類 PANs (RC(O)O₂NO₂) は、NO_x (NO, NO₂) の貯留成分として重要である。高温下では、PANs は短時間で熱分解し NO₂ を生じるため、局所的な O₃ 濃度に影響する可能性がある。環境研究総合推進費の課題 5-2106 では、窒素酸化物を中心とするオゾン関連成分の観測に基づく都市大気における反応過程の診断を目指す。本研究ではその一環として、既存装置を活用して夏の都市郊外において O₃ と PANs 全量の連続観測を実施し、PANs と O₃ の相関について初歩的な解析を試みた。

2. 方法

PANs 全量は、熱分解/キャビティ減衰位相シフト法 TD/CAPS によって測定した[2,3]。試料を熱分解装置 TD に通して PANs を熱分解し、生じる NO₂ を CAPS-NO₂ (汀線科学研究所)により定量した。この際、試料に共存する NO₂ も検出されるが、TD を通さない別の CAPS-NO₂ により NO₂ 濃度変動を常時把握し、TD/CAPS 測定値から差し引くことで、PANs 全量を算出した。CAPS を 2 台用いて 1 秒値にて同時連続測定することで、秒スケールで変動する NO₂ の干渉を低減できる。O₃ 濃度と NO 濃度はそれぞれ、紫外吸光法オゾン計 (Model 1100, ダイレック) と化学発光法 NO_x 計 (Model 42iQTL, ThermoScientific) を用いて 1 分値にて測定した。観測は、早稲田大学所沢キャンパス (埼玉県所沢市) において 2021/06/09 夜から開始した (2021/09/15 現在、継続中)。本研究では、気温の高い夏季を含む光化学過程に関する事例研究として、2021/08/09 迄の日中 (07:00~18:59) の結果を報告する。観測地点周辺の状況を補完するデータとして、観測地点の東 4 km に位置する「所沢北野」における環境省大気汚染物質広域監視システム・そらまめくん (<https://soramame.env.go.jp/>) の公開データ (気温と NMHC 濃度の速報値) を用いた。

3. 結果と考察

機器の安定待ち、落雷による停電、校正作業、による欠測分を除き、PANs, O₃, NO₂ の測定値がすべて揃った日中のデータとして、702 点の 1 時間値を得た。夏の所沢における PANs と O₃ の関連を調べるために、

相関解析を試みた。ただし都市や郊外では、局所的な NO 発生源による影響を受けると、O₃ は NO とすばやく反応して減少するため、O₃ 測定値をそのまま用いると光化学生成オゾンの過小評価につながる。本研究ではポテンシャルオゾン PO (=O₃+NO₂) を用いることで、局所的な NO の影響を受けない光化学生成オゾン評価を実施した。日中の 1 時間値についてプロットした PANs と PO の相関関係を図 1 に示す。全体として、PANs と PO の間には正の相関関係が見られ ($R = +0.82$)、PANs と PO が光化学反応生成物の指標である点で共通することを反映した。また、気温 (マーカーの色・濃淡) が高いほど PANs と PO が高濃度となりうる傾向が見られたのは、高温時ほど (日射が強く) 光化学反応活性が高くなりうるためと考えられた。さらに、NO_x/NMHC 比 (マーカーの大小) で分類したところ、比が小さい (NO_x が低濃度で NMHC が高濃度) の場合に高濃度の PO が見られた。夏の所沢におけるオゾン高濃度事象は、オゾン生成レジームが NO_x 律速寄りの際に見られ、PANs も同時に高濃度となることが示唆された。一方、日中の PANs と PO の相関を日ごとに解析し、(横軸を PANs, 縦軸を PO としたときの) 回帰直線の傾きと切片を算出してその関係を調べたところ、傾きと切片の間には負の相関関係が見られた ($R = -0.55$)。また、気温が高いほど、NO_x/NMHC 比が小さいほど、回帰直線の傾きが大きい傾向が示された。観測と初歩的解析の結果、NO_x 律速寄りの状況で高温ほど、PANs より PO が大きく増加する傾向が示された。今後は、PO, PANs 観測と解析の事例を蓄積し、高濃度オゾン事象の特性把握を進めることが有意義である。

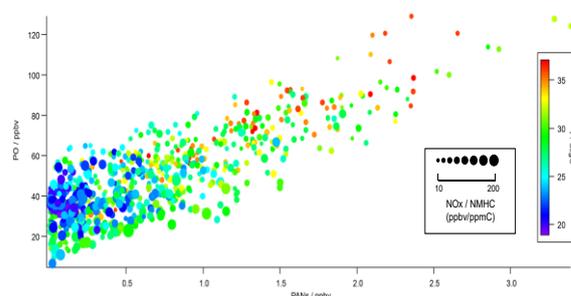


図 1 日中の PANs と PO の相関 (1 時間値)。点の色は気温、大きさは NO_x/NMHC 比を反映。

謝辞 本研究は、環境研究総合推進費 5-2106 の助成を受けて実施された。

参考文献 [1] Akimoto et al., ACP 603 (2019); [2] 松本, 大気環境学会誌 1 (2018); [3] Sadanaga et al., Rev. Sci. Instrum. 074102 (2016).

東京における光化学オキシダント生成過程の把握に向けた集中観測の計画

*猪俣 敏¹, 谷本浩志¹, 松本 淳², 定永靖宗³, 加藤俊吾⁴, 金谷有剛⁵

1:国立環境研究所, 2:早稲田大学, 3:大阪府立大学, 4:東京都立大学,
5:海洋研究開発機構

背景

大気汚染は世界的に人の健康にとって最大の環境リスク要因である。日本では自動車排ガス規制対策等により光化学オキシダント(Ox)注意報の発令延日数は漸減してきた。しかしながら、ここ数年は、原因物質の窒素酸化物や非メタン炭化水素の濃度は減少傾向になるにもかかわらず、Ox濃度の長期的な改善傾向や注意報の発令延日数は横ばい状態にある[1]。地上オゾン濃度の化学輸送モデル開発が試みられているが、都市部での再現・予報にはまだ課題が多い。その一つに、オゾン生成に関与する窒素酸化物の化学過程の知見不足があり、最新の国際モデル相互比較実験からは、窒素酸化物のリザーバーのHNO₃等からNO_xへの変換過程の不足が示唆されている[2]。オゾン生成に関わる窒素酸化物の総合的観測研究は近年なく、最新の計測手法による現状把握と解析が必要である。そこで我々のグループは、環境研究総合推進費5-2106課題「光化学オキシダント生成に関わる反応性窒素酸化物の動態と化学過程の総合的解明」において、東京都内での光化学オキシダント生成過程の把握に向けた集中観測を2022、2023年度に計画している。本発表では、研究体制及び担当する観測項目と、集中観測に向けた準備状況を紹介する。

研究体制と観測項目

本5-2106課題は、3つのサブテーマで構成される。

- ① 化学イオン化質量分析法によるパーオキシシルナイトレートの個別計測手法の開発と観測(国環研)
(観測項目) (手法)

PANs個別成分 / HNO ₃ / H ₂ O ₂ / HONO / HO ₂ NO ₂ / RONO ₂ / RC(O)OH	I-CIMS
NO / NO _y	NO _y 計
アルデヒド類	DNPH捕集+LC
すす	SP2
PM1エアロゾル成分	AMS

- ② 熱分解-NO₂検出による有機硝酸全量の計測手法の開発と連続観測(早大・大阪府大)

NO ₂ / ΣPANs / ΣONs	熱分解-CAPS NO ₂ 計
HONO	CAPS HONO計

- ③ 揮発性有機化合物の種類別計測による有機窒素化合物との関係性の解明(都立大)

NMHCs	キャニスター捕集-GC-FID
VOCs	SIFT-MS
O ₃	O ₃ 計

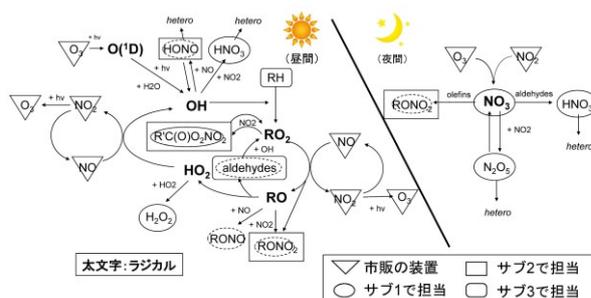


図1 光化学オキシダント生成に関わる光化学過程

図1に示すように、ラジカルを除き、光化学オキシダント生成に関わるほぼすべてのものを高時間分解能で測定することを計画しており、得られたデータは現行モデルの化学スキームの診断に用いる。

東京の過去20年のオゾンと前駆物質のデータの見直し

東京都の常時監視測定局のオゾンと前駆物質の非メタン炭化水素(NMHC)、一酸化窒素(NO)、窒素酸化物(NO_x)の過去20年のデータを見直した。その解析の結果を踏まえ、どういふところをポイントに集中観測を行うかについて報告する。

すす表面でのHNO₃、NO₂の不均一反応実験

国際モデル相互比較実験において、CMAQでは東京、北京の特にオゾンを通大評価し、NOを通小評価することが報告されている[2]。しかし、中国が開発したNAQMというモデルでは、オゾン、NOともによく再現できている。NAQMには、すす表面でのHNO₃、NO₂の不均一反応過程が入っていることが違いの原因と考えられている。そこで、提案されている不均一反応過程をテフロンバッグ実験で調べた結果について報告する。

謝辞

国立環境研究所環境データベース大気環境時間値データファイル(2019、2020は速報値)を使用した。本研究は、環境研究総合推進費5-2106により、上野広之博士(東京都環境科学研究所)、菅田誠治博士(国立環境研究所)、秋元肇博士(国立環境研究所)の助言を頂きながら進めている。

参考文献

- [1] 令和3年版 環境・循環型社会・生物多様性白書
[2] Akimoto et al., Atmos. Chem. Phys. 19, 603 (2019).

Light absorbing organic aerosols at Fukue Island: comparison of filter observation and remote sensing

*Chunmao Zhu¹, Takuma Miyakawa¹, Hitoshi Irie², Yongjoo Choi¹,
Fumikazu Taketani¹, Yugo Kanaya¹

1 Japan Agency for Marine–Earth Science and Technology

2 Chiba University

1. Introduction

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

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

2. Methods

2.1 Filter-based observations

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

2.2 Ground remote sensing observations

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

3. Results and discussions

We found that filter-based estimation of light absorption coefficient co-varied with BC ($r_s=0.61$, $p < 0.0001$). Such results indicated that BrC is mainly from fossil fuel combustion and biomass burning in the source region. Filter-based AAE showed a linear correlation ($r_s = 0.77$, $p < 0.1$) with those derived from SKYNET observation but 33% higher values, suggesting that BrC based on the SKYNET observations should be upward corrected. Further investigations are needed toward the effects of aerosol vertical profile, size distribution, and humidity conditions on the correlations.

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

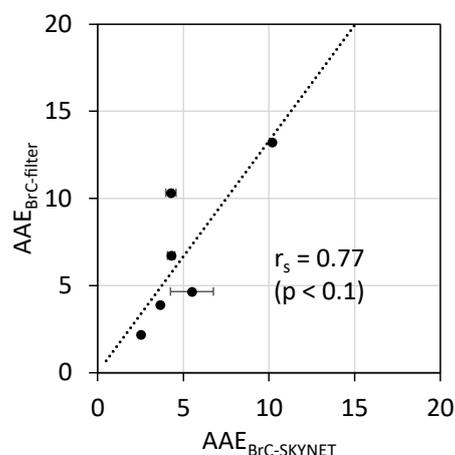


Figure 1. Comparison of AAE of BrC derived from filter-based observation and ground remote sensing.

ICP-MS/MSを用いた大気試料の測定

*岩山直樹¹, 宝輪勲¹, 望月健志郎¹, 三國武尊¹, 向島雅之¹, 成岡智信¹, 星野健太郎¹

1: (株) 静環検査センター 大気環境イノベーションセンター

1. 背景

今日、PM_{2.5}などの大気汚染は、年々改善され、無機元素の測定では、より高感度の測定が求められている。従来の無機元素の測定は、蛍光X線や誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)が用いられているが、硫黄(S)、リン(P)、ケイ素(Si)などの元素は高感度分析が困難である。近年開発された誘導結合プラズマタンデム質量分析計(ICP-MS/MS)は、ICP-MSの課題である干渉作用を二つの質量分離部で分けることができるため、高感度の測定が可能である。

本研究では、既報告*で検討した一斉分析法により、大気試料中(PM_{2.5}、雨水)に含まれる70元素の濃度を確認したので、これを報告する。

2. 試料・方法

試料は、静環検査センター大気環境イノベーションセンターの屋上(35° 29' 54" N, 139° 26' 00" E, 地上 30 m)で採取した。

PM_{2.5}は、柴田科学製のLV-250Rを用いてPTFEフィルタ上に採取した。採取後のフィルタは、その1/4枚を分析に供し、マイクロウェーブ分解装置を用いて酸-高圧分解処理を行って検液を調製した。

雨水は、酸洗浄したPP製の容器で採取した。採取後の雨水は、孔径0.20 μmメンブレンフィルタ(ADVANTEC製、DISMIC-13HP)でろ過し、そのろ液を水溶性試料とした。また、雨水をろ過せずに硝酸とフッ化水素酸を加えたものを雨水全試料とした。なお、雨水全試料の測定値から水溶性試料の測定値を差し引いた値を非水溶性試料の結果とした。

各試料は、予め標準液で測定条件を最適化したICP-MS/MSへ導入し、内標準法によって70元素を定量した。

3. 結果

2021年9月17~18日の期間で神奈川県大和市の工業地域で採取した雨水試料において本検討成分を分析した結果、38~43成分が検出下限値以上で検出された。ICP-MSでは高感度測定が困難なSやPなどにおいても検出値が得られ、ICP-MS/MSの有用性が示された。

発表時は、PM_{2.5}試料の結果や、雨水の水溶性試料と非水溶性試料の考察を行う。

4. 参考文献

岩山直樹(2021), ICP-MS/MSによるPM_{2.5}中の無機元素70成分の分析検討, 第62回大気環境学会年会講演要旨集

表. 分析精度及び大気試料(雨水, PM2.5)の結果

元素名	検量線範囲 [μg/L]	検出下限値		PM2.5		
		雨水1	雨水2	検出下限値	PM2.5	
1 Li	0.1 - 100	0.07	N.D.	N.D.	0.20	0.33
2 Be	0.01 - 10	0.006	N.D.	N.D.	0.017	N.D.
3 B	0.1 - 100	0.03	3.7	8.9	0.18	* 7.2
4 Na	0.5 - 100	0.4	2802	7088	6.4	* 708
5 Mg	0.1 - 100	0.02	146	365	1.08	* 83
6 Al	0.5 - 100	0.2	6	10	7.4	* 186
7 Si	5 - 100	3	53	121	18	* 292
8 P	1 - 100	0.20	1.0	3.2	0.86	* 5.0
9 S	5 - 100	1.8	216	475	9.5	* 1314
10 K	0.5 - 100	0.2	46	118	3.6	* 307
11 Ca	1 - 100	0.1	51	136	7.0	* 134
12 Sc	0.005 - 10	0.006	N.D.	N.D.	0.019	0.020
13 Ti	0.05 - 100	0.01	0.40	0.64	0.98	* 9.4
14 V	0.001 - 50	0.002	0.047	0.056	0.015	* 0.59
15 Cr	0.05 - 50	0.02	0.039	0.053	0.22	* 1.0
16 Mn	0.01 - 50	0.004	0.21	0.58	0.126	* 9.9
17 Fe	0.5 - 100	0.1	8.3	13	6.6	* 154
18 Co	0.005 - 100	0.004	N.D.	0.0071	0.010	0.060
19 Ni	0.05 - 100	0.016	0.82	2.0	0.092	* 0.67
20 Cu	0.5 - 100	0.05	1.1	1.1	0.22	* 3.8
21 Zn	0.5 - 100	0.1	151	631	2.4	* 21
22 Ga	0.005 - 100	0.015	N.D.	N.D.	0.042	0.17
23 Ge	0.05 - 100	0.06	N.D.	N.D.	0.16	N.D.
24 As	0.05 - 100	0.014	0.023	0.059	0.050	* 0.92
25 Se	0.1 - 100	0.05	0.13	0.13	0.14	2.0
26 Rb	0.05 - 50	0.010	0.032	0.074	0.030	0.51
27 Sr	0.01 - 50	0.020	1.11	2.8	0.058	2.4
28 Y	0.005 - 5	0.0017	0.0026	0.013	0.0055	* 0.13
29 Zr	0.005 - 100	0.003	0.0081	N.D.	0.029	* 1.7
30 Nb	0.001 - 100	0.001	0.0012	0.0017	0.022	* 0.026
31 Mo	0.01 - 10	0.009	0.043	0.13	0.039	* 0.45
32 Ru	0.005 - 10	0.003	N.D.	N.D.	0.009	N.D.
33 Rh	0.005 - 10	0.003	N.D.	N.D.	0.062	* N.D.
34 Pd	0.01 - 10	0.004	N.D.	N.D.	0.012	N.D.
35 Ag	0.01 - 50	0.04	N.D.	N.D.	0.15	* N.D.
36 Cd	0.01 - 10	0.008	0.032	0.23	0.024	0.25
37 In	0.005 - 10	0.0013	N.D.	0.0078	0.0082	* 0.17
38 Sn	0.05 - 10	0.010	0.012	0.070	0.063	* 1.2
39 Sb	0.005 - 10	0.004	0.019	0.060	0.011	0.92
40 Te	0.1 - 10	0.14	N.D.	N.D.	0.40	N.D.
41 Cs	0.01 - 10	0.004	N.D.	N.D.	0.012	0.064
42 Ba	0.01 - 10	0.002	0.18	0.88	0.195	* 7.9
43 La	0.005 - 10	0.0002	0.011	0.010	0.0028	* 0.18
44 Ce	0.001 - 10	0.0007	0.005	0.010	0.0075	* 0.35
45 Pr	0.005 - 10	0.0013	N.D.	0.0015	0.0039	0.037
46 Nd	0.005 - 10	0.0015	0.0035	0.0049	0.0047	* 0.10
47 Sm	0.005 - 10	0.0029	N.D.	0.0013	0.0083	0.015
48 Eu	0.001 - 10	0.0011	N.D.	N.D.	0.0033	N.D.
49 Gd	0.001 - 10	0.0025	N.D.	0.0033	0.0071	0.014
50 Tb	0.001 - 10	0.0011	N.D.	N.D.	0.0031	N.D.
51 Dy	0.001 - 10	0.0014	N.D.	N.D.	0.0040	N.D.
52 Ho	0.001 - 10	0.0011	N.D.	N.D.	0.0032	N.D.
53 Er	0.001 - 10	0.0010	N.D.	N.D.	0.0029	N.D.
54 Tm	0.001 - 10	0.0005	N.D.	N.D.	0.0015	N.D.
55 Yb	0.001 - 10	0.0018	N.D.	N.D.	0.0053	0.0054
56 Lu	0.001 - 10	0.0019	N.D.	N.D.	0.0054	N.D.
57 Hf	0.001 - 10	0.0019	N.D.	N.D.	0.0056	0.047
58 Ta	0.001 - 10	0.0007	N.D.	N.D.	0.0021	N.D.
59 W	0.001 - 10	0.0020	0.0037	0.011	0.0059	2.8
60 Re	0.005 - 10	0.0019	N.D.	N.D.	0.0084	* N.D.
61 Os	0.005 - 10	0.04	N.D.	N.D.	0.20	* N.D.
62 Ir	0.005 - 10	0.01	N.D.	N.D.	0.41	* N.D.
63 Pt	0.005 - 10	0.003	0.0093	0.010	0.012	* N.D.
64 Au	1 - 10	0.5	N.D.	N.D.	1.4	N.D.
65 Hg	0.5 - 50	0.07	0.29	0.32	0.20	N.D.
66 Tl	0.005 - 5	0.0017	0.0019	0.0062	0.0053	* 0.10
67 Pb	0.005 - 10	0.001	0.80	3.2	0.056	* 8.16
68 Bi	0.005 - 10	0.0009	0.0041	0.016	0.0027	0.84
69 Th	0.001 - 10	0.0011	N.D.	N.D.	0.0032	0.021
70 U	0.001 - 10	0.0009	N.D.	0.0036	0.0026	0.011

*印は操作ブランク、無印は検量線最低濃度の繰り返し測定から算出

SPES法に基づく非水溶性エアロゾルのオフライン分析法の評価

*川中子ひかる¹, 大畑祥^{1,2,3}, 茂木信宏⁴, 當房豊^{5,6}, 持田陸宏^{1,2}

1:名大院環境, 2:名大宇宙地球環境研, 3:名大高等研究院, 4:東大院理, 5:国立極地研,
6:総合研究大学院大学

1. はじめに

非水溶性エアロゾルである鉱物ダストや生物起源一次粒子(バイオエアロゾル)は、氷晶核として重要な働きをされると考えられている。しかし、これらを分離して粒径別数濃度を測定する確立された手法はなく、動態の理解は不十分である。

近年、Single-Particle Extinction and Scattering (SPES) 法に基づき液中に分散した個別粒子の複素前方散乱振幅(S_{22})を光学的に測定する機器が開発された(Moteki, 2020)。 S_{22} は粒子の体積・複素屈折率・形状に依存する複素数であり、SPES装置により異なる複素屈折率を持つブラックカーボン・鉱物ダスト・バイオエアロゾルと考えられる各粒子群の分離測定が可能である。

本研究では、ポリカーボネートフィルタに採取したエアロゾルを純水に分散させ、非水溶性粒子をSPES装置で測定するオフライン分析法の評価を行った。この手法を確立することにより、様々な大気環境下で採取したエアロゾル試料の分析への応用が期待できる。

2. 評価実験

Polystyrene latex (PSL) 球の標準粒子や、名古屋で採取したエアロゾル試料を用いて、下記の項目を評価する実験を行った。

- ① SPES装置の粒子検出効率の評価
- ② フィルタから純水への粒子の分散効率の評価
- ③ 操作ブランクの評価
- ④ フィルタ分割操作による測定誤差の評価
- ⑤ 水試料の室温保管による測定への影響の評価

3. 結果と考察

① 別の手法で粒子数濃度を測定したPSL分散液を用いてSPES装置による粒子測定を行い、その粒子検出効率を粒径0.51–0.90 μm に対して $0.0149 \pm 0.0007\%$ (平均 $\pm 1\sigma$)と算出した。(図1)。この粒子検出効率は、装置内で水試料が導入されるフローセル内部の、全体の体積流量に対する粒子検出が行われる部分の流量の比に相当すると考えられる。本研究の実験条件下では粒径0.30 μm のPSL粒子は検出下限に近く、また粒径 1.1 μm では検出信号の飽和が起るため、検出効率が低下した。

② 実験室でエアロゾル化したPSL粒子をフィルタに捕集し、3周波の超音波洗浄機を用いて9分間純水に分散させた場合の粒子分散効率は、粒径0.51–0.90 μm のPSL粒子に対して $68.4 \pm 16.5\%$ であった。

③ 大気観測と同じ測定条件で行った操作ブランク試料の測定により検出されたフィルタ1枚当たりの粒子数は、名古屋で採取した13の試料(1試料あたり平均14.2 m^3 の空気を採取)で検出された平均粒子数に対して、BC: 0.5 %, 鉱物ダスト: 1.2 %, バイオエアロゾル: 3.7 %であった。特にバイオエアロゾルは大気中の数濃度が低く、ブランク試料との差が小さい試料も存在したことから、解釈に注意が必要である。

④ 直径47 mmのフィルタ試料を4分割し、各フィルタ片の重量を測定することにより、分割比を推定した。そして、分割したそれぞれのフィルタ試料から粒子を純水に分散させSPES装置で測定した結果、分割比で補正したフィルタ面積当たりの粒子数濃度の、測定値の平均に対する標準偏差は18 %であった。これにより、フィルタ試料を分割して一部を別の分析に使用できることを確認した。

⑤ 名古屋で採取したフィルタ上の粒子を純水に分散させて得られた水試料について、分散直後に測定した場合の検出粒子数と、室温で3時間保管した後の検出粒子数を比較した。BCやダストは検出粒子数濃度が室温保管後15 %以内の増加で安定しているのに対し、バイオエアロゾルと推定された 検出粒子の数濃度は25 %増加した。保管中に生物が繁殖した可能性が示唆され、粒子分散後は速やかに分析する必要があると考えられる。

引用文献

N. Moteki, Capability and limitations of single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 243, 106811, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2019.106811>, 2020.

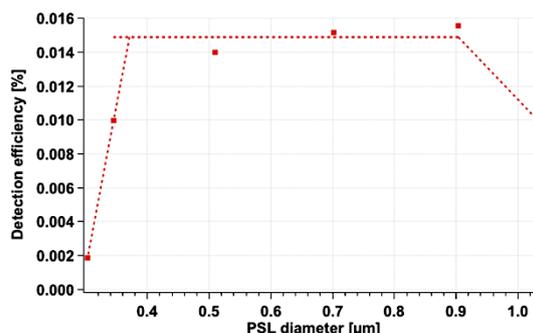


図 1. SPES 装置の粒子検出効率の PSL 粒径依存性

福江島と名古屋の大気エアロゾルの化学組成と 活性酸素産生能力

*小野 詩織¹, 大塚 北斗¹, 大畑 祥¹, Dhananjay K. Deshmukh², Bhagawati Kunwar²,
藤谷 雄二³, 西田 千春⁴, 吉野 彩子³, 高見 昭憲³, 河村 公隆², 小池 真⁵, 持田 陸
宏¹

1:名古屋大学, 2:中部大学, 3:国立環境研究所, 4:福岡大学, 5:東京大学

1. はじめに

大気エアロゾルは、循環器や呼吸器の疾患、アレルギー疾患などを引き起こし、ヒトの健康を害する大気汚染物質として注目されている。この健康影響を引き起こす仕組みの1つに、エアロゾル中の酸化還元活性物質が、体内で酸化還元サイクルを介して活性酸素の産生を助長し、これが過剰に産生されることで生体に対して酸化ストレスを引き起こすことが指摘されている。

現在、酸化ストレスを誘発するエアロゾルの活性酸素産生能力(以降は酸化能とよぶ)の測定法として、ジチオトレイトール(DL-dithiothreitol: DTT)アッセイが広く使用されている。これは、還元物質のDTT消費速度がエアロゾルの触媒活性を反映することを利用した評価方法である。今日までDTTアッセイを用いた研究が多数行われているが、どのようなタイプの的大気エアロゾルが酸化能に大きく寄与するのかは十分に分かっていない。

そこで本研究では、大陸由来のエアロゾルの受容域である長崎県五島市福江島と、都市部である愛知県名古屋市において大気エアロゾルを採取し、化学成分の測定とDTTアッセイによる酸化能の定量を行った。これら2地点における酸化能寄与について解析した結果を報告する。

2. 方法

2019年4月に福江島で、同年8~10月に名古屋でカスケードインパクタを取り付けたハイボリュウムエアサンプリングを用いてPM_{0.95}(粒径0.95μm未満のエアロゾル)の大気試料を採取した。フィルタに採取した大気試料について、元素炭素(EC)および有機炭素(OC)、水溶性有機炭素(WSOC)、無機イオンを分析した。EC及びOCは、フィルタから切り取った直径16 mmのフィルタ片を用いて炭素分析計によりIMPROVE_A.par.プロトコルを用いて定量した。WSOCの測定では、直径34 mmのフィルタ片を約10°Cで30分間、超純水20 mlによって超音波抽出し、フィルタに通した濾液を試料とした。この試料を全有機炭素計を用いて分析した。無機イオンの測定では、直径20mmのフィルタ片を超純水10mlで30分間超音波抽出し、フィルタに通した濾液を試料とした。この試料をイオンクロマトグラフに導入し、陽イオンと陰イオンを定量した。

DTTアッセイでは、直径34mmのフィルタ片を超純水

10mlで超音波抽出し、フィルタに通した濾液を試料とした。この試料にDTTを添加し、37°Cの恒温器内で15分間(一部30分間)反応させた。反応後、試料に5,5'-ジチオビス(2-ニトロ安息香酸)(DTNB)を加えて反応を停止し、マイクロプレートリーダーで波長412 nmの吸光度を測定し、試料中に残ったDTTを定量して酸化能を求めた。

3. 結果と考察

大気エアロゾル試料の採取時を対象とする後方流跡線解析により、福江島ではユーラシア大陸由来の空気塊の影響を強く受けていることが示された。故に福江島で採取したエアロゾルは、大気輸送中の二次的なエアロゾル生成や化学的変質の寄与を比較的に強く受けていることが考えられる。一方、名古屋では太平洋からの大気の流入が見られ、観測地点付近で放出された一次生成物の寄与をより強く受けていることが推測される。

福江島と名古屋のエアロゾル試料から得た水溶性成分のDTT消費速度の平均値は、それぞれ0.64±0.26, 0.88±0.28 nmol min⁻¹ m⁻³であった(反応時間は恒温器外の作業時間を含めず計算)。PM_{0.95}の質量当たりのDTT消費速度(比酸化能)は、福江島と名古屋でそれぞれ0.08±0.04, 0.10±0.03 nmol min⁻¹ μg⁻¹であり、名古屋が福江島よりも約1.3倍高い結果となったが、平均値の差に対するウェルチの検定ではp値が0.13となり、有意な差は認められなかった。

一方、両地点ともDTT消費速度とPM_{0.95}質量濃度の間には高い正の相関が認められた(相関係数:福江島で0.74, 名古屋で0.86)。PM質量濃度は酸化能を強く規定する因子であると言え、地点間の比酸化能が大きくは違わなかった結果とともに、PM質量濃度に基づく環境基準設定の妥当性を支持している。また、DTT消費速度とPM_{0.95}化学成分濃度(EC, OC, WSOC, TN, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺)の間では、特にECの場合に正の相関が強い(相関係数:福江島で0.77, 名古屋で0.88)ことが示された。燃焼過程により発生する成分、もしくはそれらと類似の発生域を持つ成分がエアロゾルの酸化能に強く影響している可能性が考えられる。

謝辞: 井原昌代氏には、DTTアッセイの実験方法について説明をいただき、魏辰然氏には、化学分析用のフィルタ片の作成に協力いただいた。

ヘリコプターを利用した富山県上空の過酸化水素およびホルムアルデヒド濃度の測定

*渡辺幸一¹, 楊柳¹, 中村賢¹, 大谷卓也¹, 長村遥¹, 増田竜之¹, 千村勘二¹,
森藤孝太郎¹, 中澤暦¹

¹ 富山県立大学

1. はじめに

大気中の H_2O_2 は、 O_3 を介した光化学反応などによって生成され、 SO_2 の液相での酸化剤として働くことなど重要な役割を果たしている。 HCHO は、化石燃料の不完全燃焼などにより一次排出される他に、 CH_4 などの酸化過程において二次生成される。 HCHO は、 H_2O_2 が不足している状況下において SO_2 との液相反応によりヒドロキシメタン sulfonate 酸塩を生成させる。そのため、 SO_2 と共に両者の同時測定が重要となるが、国内での同時測定事例は非常に少なく、特に東アジア域上空での H_2O_2 と HCHO の観測は（演者らの計測の他には）ほとんどなされていない。本研究では、富山県の地上およびヘリコプターを利用した上空大気中の H_2O_2 と HCHO 濃度の測定を SO_2 、 O_3 濃度、粒子個数濃度計測と共にを行い、 SO_2 の液相酸化能力やエアロゾル粒子生成への影響について考察した

2. 方法

本研究では、（有）アドバンスドエアー社 (<https://www.addair.jp/>) 保有の R44 型 4 人乗りヘリコプターを利用して富山県射水市上空の大気観測を行った。目的高度（4000 ft (1200 m) および 8000 ft (2400 m)）において 10 分間旋回水平飛行し、ミストチャンバー法により大気中の過酸化水素やアルデヒド類を採取した。各高度での試料採取終了後、直ちに富山県立大学（富山県射水市）構内へ下降し、捕集液を入れたポリ瓶を超低空で投下させ実験室へ運び、速やかに HPLC・ポストカラム・蛍光法により分析を行った。学内へサンプルを輸送した後、次の高度へ上昇し、再び試料採取およびサンプル輸送、分析を行った。また、ヘリコプターの後部座席に O_3 、 SO_2 測定器およびパーティクルカウンター（OPC）を設置し、自動計測を行った。

上空大気中の H_2O_2 と HCHO の同時測定は、2016 年 11 月 30 日、2017 年 3 月 17 日、2018 年 3 月 28 日、2019 年 12 月 25 日、2020 年 8 月 5 日、2021 年 3 月 17 日および 2021 年 9 月 23 日に実施した。なお、2021 年 9 月の観測ではガス状水銀の測定も同時に行った。

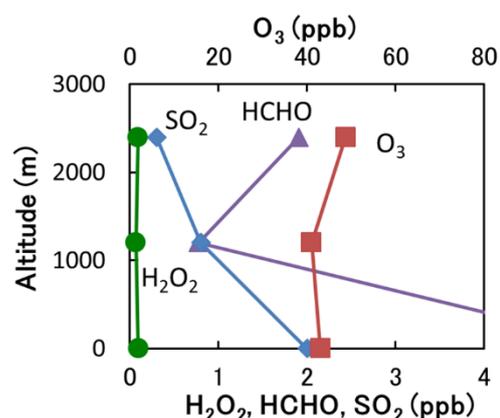
3. 結果と考察

H_2O_2 は地上よりも上空で高くなる傾向がみられ、高度 8000 ft（約 2400m）で最も高かった。一方で

HCHO および SO_2 は通常地上で高く上空で低かった。寒候期においては、 SO_2 よりも H_2O_2 濃度が低く、 SO_2 の硫酸への液相酸化が抑えられていたものと考えられる。また、 H_2O_2 よりも HCHO 濃度の方が高く、ヒドロキシメタン sulfonate 酸塩生成が硫酸塩生成よりも卓越しやすい条件であったと考えられる。

2020 年 8 月上旬は、西之島の噴火活動の影響が北陸地方まで達しており、観測日当日（8 月 5 日）は $\text{PM}_{2.5}$ や SO_2 が高濃度であった。計測した粒子個数濃度は地上および高度 1200 m で非常に高かったが上空 8000 ft では大きく低下した。 H_2O_2 濃度は夏季としては非常に低濃度であり、（エアロゾル表面などの） SO_2 酸化のため消費されていたと考えられる（Watanabe et al., 2021, SOLA）。

図 1 に、2021 年 3 月 17 日の観測結果を示す。2021 年 3 月 17 日の観測日は比較的規模の大きな黄砂現象が観測され、高度 1200 m 以下で粗大粒子個数濃度が非常に高かったが、微小粒子個数濃度は比較的 low だった。 H_2O_2 濃度は非常に低く、黄砂粒子による



分解の影響を受けていた可能性も考えられる。2021 年 9 月に実施した観測では、 SO_2 より H_2O_2 の方が高濃度であり、 SO_2 の液相での酸化能力が十分であるといえる。

図 1 2020 年 3 月 17 日の富山県射水市上空における H_2O_2 、 HCHO 、 O_3 および SO_2 濃度(ppb)の鉛直プロファイル

COVID-19による東京近郊の大気汚染への影響評価

*藤縄環¹, 谷本浩志¹

¹:国立環境研究所

緒言

2020年初頭から世界中にひろまった、新型コロナウイルス感染症 (COVID-19) 流行による各国の行動制限の影響により、窒素酸化物 (NO_x) や二酸化炭素 (CO₂), 人為起源エアロゾルの排出量はかつてない減少を見せた。[Miyazaki et al., 2021 など] 一方, 都市封鎖などの厳しい行動制限措置ができない日本国内の都市においては, COVID-19拡大阻止のための行動制限による大気汚染物質の減少傾向についての報告は少ない。また, 都市ロックダウンなどが施行された国外の都市と比較して, 日本国内では人々の行動制限による影響を評価しにくい。そこで, 本研究では衛星データ等を用いて, 東京近郊におけるCOVID-19拡大に伴う人々の行動変容による, 大気組成への定量的な影響評価を行うことを目的とした。

方法

本研究ではNO₂やO₃などの大気汚染物質についてCOVID-19の感染拡大が始まった2019年12月からの衛星データを用いて, その空間分布や時系列トレンドなどを解析した。衛星観測データとして欧州のOMI (Ozone Monitoring Instrument) や TROPOMI (Tropospheric Monitoring Instrument) を使用して, 東京近郊の都市域上空の大気汚染物質のカラム量月平均値を導出した。また, 衛星データとの比較のため, 環境省の大気環境測定局による体積混合比 (VMR) の月平均値を導出した。COVID-19による大気組成への影響を評価するた

めに, 感染拡大前の期間である2019年の同月月平均値との比較を行なった。

結果・考察

TROPOMI衛星によるNO₂鉛直カラム量 (VCD) の2019年3月と2020年3月の月平均値 (molec cm⁻²) の, 0.05°x0.07°メッシュでの格子状プロットを図1に示す。どちらの年についても, 東京湾沿岸部でのNO₂ VCD値の局所的な増加が見られ, 工場や主要幹線道路からの排出と考えられる。また, NO₂の増加が見られた地域について, 両年で比較すると, COVID-19の流行後の2020年では2019年比で約30%のNO₂ VCD値の減少が見られた。2020年3月時点では, 都内での緊急事態宣言発令は行われていなかったものの, 世界の感染者数が10万人を超えており, 都内への人出が同年1月の月平均値から約25%減少していることから, 経済活動の減退や人々の行動変容がNO₂排出の減少につながったと考えられる。この結果は, Kellerら (2021) による報告の東・東南アジアでの約20%減や, Miyazakiら (2021) による報告の欧州・北米での18-25%減と整合的であった。

まとめ

国外と比較して厳しい外出制限のない日本国内においても, 都内における経済活動や人出の減少 (約25%) が見られ, 国外におけるロックダウンの効果と同程度の大気汚染物質の排出量減少 (約30%) が見られた。発表では, この結果に加え, 他ガス種および他衛星観測との包括的な比較結果を示す。

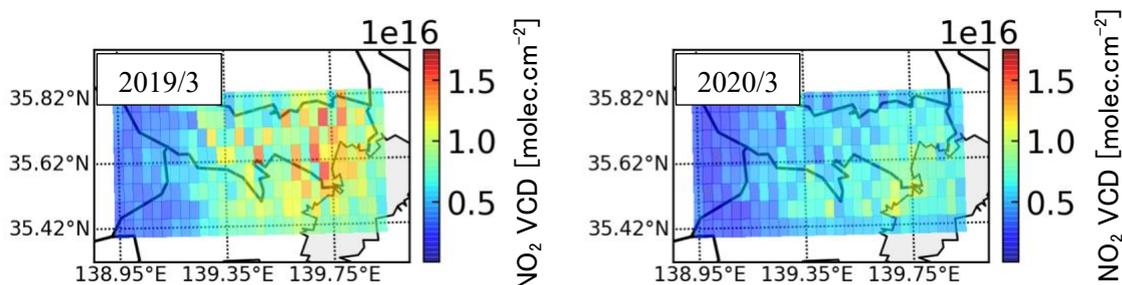


図1 TROPOMI衛星により観測された2019年3月(左)と2020年3月(右)のNO₂鉛直カラム量月平均値分布

参考文献

- ・Miyazaki, K., et al., Global tropospheric ozone responses to reduced NO_x emissions linked to the COVID-19 worldwide lockdowns. *Science Advances*, 7, eabf7460, 2021.
- ・Keller, C. A., et al., Global impact of COVID-19 restrictions on the surface concentrations of nitrogen dioxide and ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 3555–3592, <https://doi.org/10.5194/acp-21-3555-2021>, 2021.

日本4地点における地上リモートセンシングで得られたエアロゾル光学特性による地表付近PM_{2.5}、BC濃度の変動解析

*海塚収英¹，入江仁士¹，高村民雄¹，中山智喜²，竹村俊彦³，弓本桂也³，山本浩万⁴

1:千葉大学環境リモートセンシング研究センター，2:長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科，3:九州大学応用力学研究所，4:産業技術総合研究所

背景と目的

PM_{2.5}に代表されるエアロゾル粒子は、気候変動評価に大きな不確実性をもたらす要因の一つである。不確実性低減のため人工衛星から高時空間分解能のエアロゾル情報が必要になるが、総量の約50%を占める地表付近のエアロゾル粒子を衛星から高精度で観測することはチャレンジングな課題となっている。将来的に衛星による地表付近のエアロゾル粒子の濃度推定を行うためには、地上近辺に高い感度を持つ地上リモートセンシングを用いてエアロゾルの質量濃度と光学特性の関係を明確化することが必要である。Damiani et al.(2021)により、複数の地上リモートセンシング機器を用いることでfAOD(高度1 km圏内における粒径2.5 mm以下のAOD: Aerosol Optical Depth)とfAAOD(高度1 km圏内における粒径2.5 mm以下のAAOD: Absorption AOD)が得られ、相対湿度やオングストローム指数(粒径の指標)などの抽出条件のもとPM_{2.5}濃度とfAOD、BC(ブラックカーボン)濃度とfAAODの間にそれぞれ相関係数0.92、0.85の関係があった。

本研究は、東アジアの越境汚染の影響を受けやすい福江でfAODとfAAODの有用性を検証するとともに、春日とつくばを含めた日本の4地点でfAODとfAAODを用いたトレンドの解明を目的としている。

観測地点と解析期間

観測地点と解析期間は以下のとおりである。

千葉 (36.625°N, 140.104°E) : 2012年6月-2021年9月
つくば(36.114°N, 140.096°E) : 2014年1月-2021年9月
春日 (33.524°N, 130.475°E) : 2014年1月-2021年9月
福江

(32.752°N, 128.682°E) : 2019年6月-2021年9月

観測機器と解析方法

MAX-DOAS (multi-axis differential optical absorption spectroscopy) によって観測された高度1 km圏内のAEC (Aerosol Extinction Coefficient) とSkyradiometerによるF2.5 (粒径2.5 mm以下の微小粒子の割合) とSSA (Single Scattering Albedo: 大気中で光子が散乱される割合)を用いて、以下の式でfAODとfAAODを算出した。

$$fAOD_{\lambda} = AEC_{\lambda}[0 - 1 \text{ km}] \times F2.5$$

$$fAAOD_{\lambda} = fAOD_{\lambda} \times (1 - SSA_{\lambda})$$

fAODは高度1 km圏内のAECのうち粒径2.5 mm以下の微小粒子を表しており、fAAODはfAODのうち光吸収成分を持つ粒子(BC、有機炭素、ダスト)を表している。

結果と考察

福江は、日本の南西に位置することから冬季、春季で東アジアから黄砂などダストの影響を受けることで粗大粒子割合が大きく、ダストの影響を受けにくい千葉と同じ指標を用いた解析は困難であった。しかしダストの影響下であってもfAODと地上で観測されたPM_{2.5}濃度の関係を精度よく表すことができた(図1)。

千葉、福江、つくば、春日における2020年8月から2021年7月までのfAOD (500 nm)の中央値±標準偏差は、それぞれ 0.044±0.027, 0.052±0.055, 0.072±0.036, 0.075±0.043であった。また解析期間が最も長かった千葉ではfAODとfAAODの長期トレンドは減少傾向にあり、特にfAAODの長期トレンドは先行研究(Mori et al., 2020)による関東のBC濃度の長期的な減少を支持する結果となった(図2)。

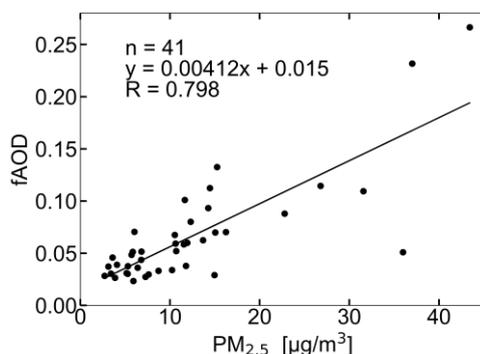


図1 福江におけるダスト影響下のfAODとPM_{2.5}の関係(オングストローム指数が1以下)

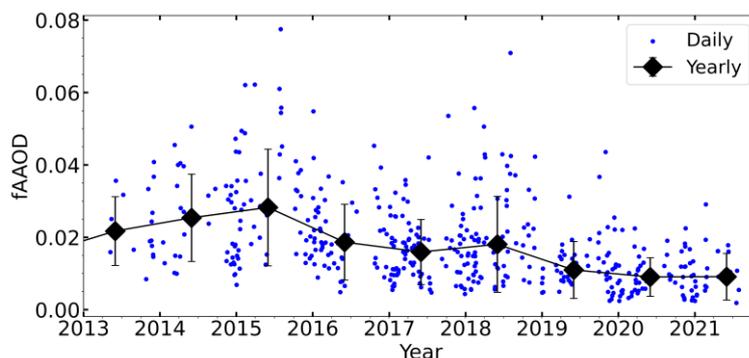


図2 千葉におけるfAAODの長期トレンド

北インドにおける低コストで自動データ転送する 小型大気観測装置の30個の展開：Aakashプロジェクト

*松見 豊¹, 中山智喜², 林田佐智子^{3,4}, 上田佳代⁵,
安富奈津子³, 荒木晶³, 山崎高幸¹, 岡本 渉¹

1:名大宇宙地球研, 2:長崎大学, 3:総合地球研, 4:奈良女大, 5:京都大学

総合地球環境学研究所のAakashプロジェクト(代表:林田 2020-2024年)

<https://aakash-rihn.org/>

では、北インドの稲わら焼き問題に対処して、大気浄化、公衆衛生および持続可能な農業の実現を目指している。そのプロジェクトの一環として、パンジャブ地方での稲わら焼きが原因となってニューデリー首都圏まで広範な環境・健康影響を引き起こしている問題の物理的および化学的な機構の解明をし、さらには有効な対策を明確にしようとしている。そのため、パンジャブ州からニューデリーの300 km間の農村地帯で、小型大気環境計測器の最初の30台の設置作業をしているところである(図1および図2)。この計測器は、本プロジェクトむけに我々が開発したが、現在は業者から製品として本体10万円弱+電気化学センサ代で購入できるようになっている。インドで多数展開するため、毎日夜に自動的にクラウドサーバーへ携帯電話回線でデータをあげるようになっている。計測センサは、我々とPanasonicで開発した高精度なPM2.5センサ、英国のAlphasense社の電気化学センサ(NO, NO₂, CO, O_x=O₃+NO₂)の4種を搭載している。屋外に設置できるように通気のあるプラボックス内にセンサ等を収納している。電源の無いところのために太陽発電パネル駆動にも対応している。当日のポスターではこの小型大気計測器の詳細について説明し、搭載センサのデータを長期に大型機器計測と比較した試験結果について発表する。またインドに送った30台の長崎大学での性能検証結果について発表する。

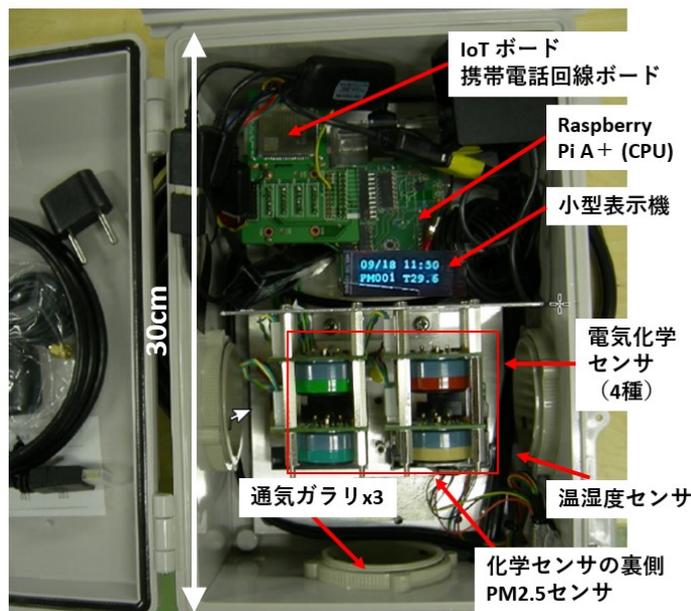


図1 インドに展開する新規の小型大気環境計測器 (PM2.5, NO_x, O₃, CO)。業者から製品として購入可能。

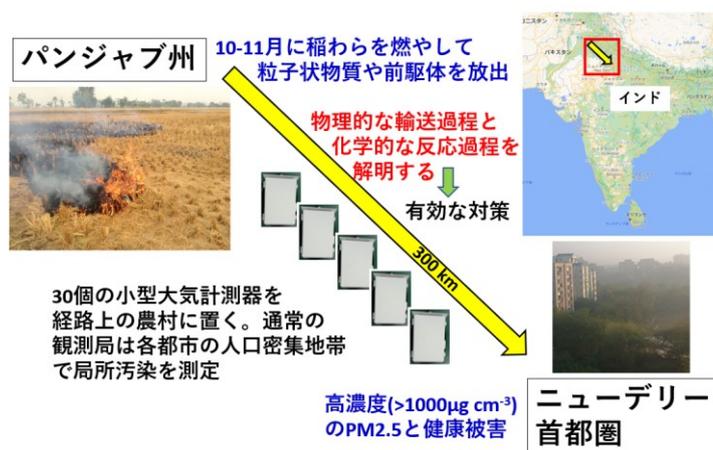


図2 インドのパンジャブ地方の稲わら焼きが広範な地域の環境悪化を招いている機構解明と有効な対策のために小型計測器を多数展開する

COALA-2020観測においてオーストラリアで採取した 大気エアロゾル試料の化学分析

*持田陸宏¹, 大畑祥¹, 横山容子², 五十嵐元美², Dhananjay K. Deshmukh³,
Bhagawati Kunwar³, 河村公隆³, Sonia Afsana¹, Quang Dang⁴, Clare Palton-Walsh⁴

1:名古屋大学, 2:ムラタ計測器サービス, 3:中部大学, 4:University of Wollongong

1. はじめに

オーストラリアでは、2019年から2020年にかけて大規模な森林火災 (bushfires) が発生した。この森林火災では、ブルームが高度約30 kmにまで達したことが報告されており (Ohneiser et al., 2020), また、火災由来のエアロゾルが海洋に供給されて植物プランクトンのブルームを引き起こした可能性が指摘されている (Tang et al., 2021)。これらの報告は、火災の発生源やその下流域において、そのブルームが大きな影響をもたらしたことを示している。

この森林火災イベントの時期を含む2020年の1~3月に、我々はCOALA-2020観測の一環として、オーストラリア・ニューサウスウェールズ州において大気エアロゾルのフィルタ採取を行った。この試料を用いて、当森林火災の影響を受けたエアロゾルの光吸収特性・吸湿性を解析することを計画しており、これまで、その基盤となる化学成分の解析を行っている。本発表では、この成分分析の結果について、森林火災の有機エアロゾルへの寄与に着目しつつ概観する。

2. 試料の採取と分析

大気エアロゾル試料の採取は、オーストラリア・ニューサウスウェールズ州のCataract Scout Parkにおいて2020年1月17日から同3月12日まで (UTC) の期間に実施した。採取には、カスケードインパクトを取り付けたハイボリュームエアサンプラを用いた。この装置内において、スーパーミクロン領域のエアロゾル粒子はインパクト基材に捕集され、PM_{0.95} (粒径が0.95 μm未満の粒子状物質) が8×10インチの石英繊維フィルタ上に捕集される。これまでに、8×10インチのフィルタに採取したPM_{0.95}の化学分析を進めた。具体的には、イオンクロマトグラフ法による無機イオンの定量、カーボンアナライザによる有機炭素 (OC)・元素炭素 (EC) の定量、全有機体炭素計による水溶性有機態炭素 (WSOC) の定量を行った。さらには、トリメチルシリル化によるGC-MS分析により、レボグルコサン等の有機化合物の定量を進めた。

3. 結果と考察

1月17日から2月5日までのエアロゾル採取期間の前半は、期間のうちで比較的高いOC濃度で特徴付けられ、その濃度は $3.3 \pm 2.6 \mu\text{g m}^{-3}$ (試料数ベースの平均±標準偏差) であった。一方、後半にはOC濃度が低下し、2月5日以降のOC濃度は $0.42 \pm 0.29 \mu\text{g m}^{-3}$ であった。このよ

うな観測期間の前後半のコントラストは、期間前半に森林火災の影響を強く受けた結果だと考えられる。WSOCの濃度は上記の前半・後半でそれぞれ 2.2 ± 1.2 , $0.32 \pm 0.19 \mu\text{g m}^{-3}$ であり、OC濃度の平均値に対するWSOCの平均値の比は、後半が0.78であるのに対して、前半は0.66であり、疎水性有機エアロゾルの割合が高い特徴が見られた。観測前半にはSO₄²⁻の濃度がOC濃度の10%を下回る試料も複数見られ、最も低い場合で4%であった。バイオマス燃焼のトレーサであるレボグルコサンには、観測期間前半に高濃度イベントが見られ、SO₄²⁻濃度がOC濃度の10%未満となる場合には、レボグルコサンの濃度がいずれも 800 ng m^{-3} を上回る高い水準であった。

今後、これらの試料を用いて、エアロゾル質量分析計を利用するオフライン分析 (e.g., Chen et al., 2016a,b,c) を実施し、有機エアロゾルの化学構造の特徴や光吸収特性 (ブラウンカーボンとしての特性) の解析、またエアロゾル成分の吸湿性の解析を行うことを検討している。観測前半に得た試料はバイオマス燃焼の影響を強く受けた貴重な試料と言え、オーストラリア森林火災のエアロゾルの特徴付けに留まらず、大気輸送を経たバイオマス燃焼有機エアロゾル一般の特徴の解明に役立つ可能性がある。なお、観測期間中には、別途ポリカーボネートフィルタへのエアロゾル採取も行っており、今後、Single-Particle Extinction and Scattering (SPES) 法を用いる非水溶性エアロゾル粒子の分析に取り組むことも計画している。

謝辞

本研究で用いるエアロゾル試料の採取ではWollongong大学の方々に協力いただき、また、化学分析ではムラタ計測器サービスの方々に協力いただいた。名古屋大学のYunhua Chang氏には、本研究の試料を用いる解析について議論していただいた。

文献

Chen et al., *Environ. Sci. Technol.*, 50, 10,351–10,360, 2016a; Chen et al., *Environ. Sci. Technol.*, 50, 1721–1730, 2016b; Chen et al., *Environ. Sci. Technol.*, 51, 8293–8303, 2016c; Ohneiser et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 8003–8015, 2020; Tang et al., *Nature*, 597, 370–375, 2021.

海洋地球研究船「みらい」による 広域の海洋大気微小エアロゾル観測

*宮川拓真¹, 竹谷文一¹, 駒崎雄一¹, 角谷麻奈未¹, Choi Yongjoo¹, 滝川雅之¹, 高島久洋^{2,1}, 朱春茂¹, 金谷有剛¹

1:海洋研究開発機構, 2:福岡大学

はじめに

海洋大気におけるエアロゾル粒子は、海上の雲生成に顕著な影響を与えるため、地球表面の7割を占める海洋上のアルベドを強く制御し、地球大気の放射収支にとって重要な役割を果たしている。そのような重要性にもかかわらず、外洋における大気エアロゾル観測の実施・継続の難しさから、モデル検証のために必要な高精度かつ体系的なデータセットは極端に少ない。雲の影響を受ける衛星データだけではなく、現場観測に基づくデータ整備は依然として重要な位置づけである。

海洋研究開発機構では、海洋地球観測船「みらい」を用いて、これまで太平洋域を中心とした大気組成観測を実施し、2014年以降、放射収支に多大な影響を与える微小エアロゾル粒子に関する観測研究を本格的に推進している。

観測概要

海洋地球観測船「みらい」の研究航海において、洋上大気中の微小粒径の粒子一粒ごとにレーザー誘起白熱法 (e.g., Moteki and Kondo, 2007) に基づいた超高感度観測を実施した。DMT社製Single Particle Soot Photometer (SP2) を、「みらい」最上層のデッキ直下の研究室である汎用観測室内に設置し、試料空気を室外から引き込み、ナフィオン式の大口径エアロゾルドライヤー (MD-700, Perma Pure) を通して、相対湿度をおよそ40%以下 (海域による) に除湿したうえで導入している。(Miyakawa et al., 2017) 従って、SP2は乾燥状態の粒径分布を計測している。

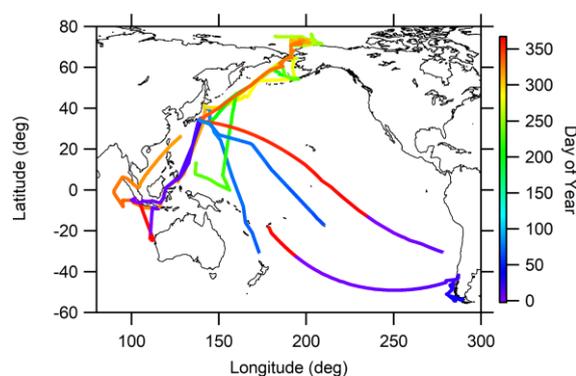


図1 航跡図 (年間通算日で色付け)

船舶観測においては、自船の排気影響を取り除くことが肝要であるが、船体固定の気象観測装置のデータとSP2の単一粒子計測結果 (粒子種・混合状態の情報) を組み合わせることで、良好にデータ選別ができる。

装置パフォーマンス

SP2の運用にあたって、装置レスポンスは標準粒子を用いて校正している。光散乱粒子に対してはポリスチレンラテックス粒子 (JSR, Thermo Fisher Scientific)、BC粒子に対してはフラーレンすす粒子 (Alfa Aesar) を使用した。この観測期間を通して、散乱性粒子・BC粒子ともに装置レスポンスは標準粒子に対して $\pm 10\%$ の変動範囲に収まっており、複数航海のデータを体系的に議論できると考えている。

観測結果

2015–2018年に実施した研究航海について、図1に航路を示す。一部インド洋を含むが、太平洋を中心とした広範な海域をカバーした観測が実施されたことがわかる。夏季の終わりから秋季にかけて太平洋高緯度帯から北極海を、冬季から春季が中緯度帯もしくは南半球を調査していることがわかる。日本近海に関しては各季節に高密度なデータ取得ができています。

本発表では、BCを中心に観測結果を俯瞰的に紹介すると共に、海域ごとの違いや他の観測との比較結果なども示す。また、今後数値モデル計算との比較検証のためのデータセット整備に向け、ニューズ・シーズマッチングの場になることも期待する。

謝辞

「みらい」における観測では、各研究航海の主席研究員・日本海洋事業の観測支援員の多大なる支援を受けた。北極域研究推進プロジェクト (ArCS)、北極域研究加速プロジェクト (ArCSII)、JSPS 科研費 (19H05699) の助成を受けた。

引用文献

- Moteki, N., and Kondo, Y. (2007), *Aerosol Sci. Technol.*, 41, 398-417.
Miyakawa, et al. (2017), *Atmos. Chem. Phys.*, 17 (9):5851-64. doi:10.5194/acp-17-5851-2017.

海洋表層の基礎生産力への大気物質の影響： 現場観測による湿性沈着の効果検証

*竹谷文一¹，松本和彦¹，金谷有剛¹

1:海洋研究開発機構

はじめに

海洋表層に分布する植物プランクトンは海洋食物連鎖の底辺を支える役割に加え、二酸化炭素の吸収などに大きく影響を及ぼすため、その基礎生産力の変動要因を理解することは重要な課題の1つとなっている。基礎生産力を規定する主要な因子である海洋表層(有光層)内に溶存している窒素化合物などで代表される栄養塩は、主に季節的な鉛直混合などによって、海洋内部の栄養塩躍層以深から供給される。しかしながら近年、数値計算などのアプローチにより、大気から海洋への栄養塩物質供給も、特に貧栄養海域では重要な供給過程となりうる事が示唆されている。本研究では、湿性沈着の有無により海洋表層の基礎生産力への影響を船舶による現場での直接観測で検証した。本講演では、その初期結果を報告する。

観測方法

観測は研究船みらいの物質循環航海MR21-01(2021年2月14日(清水港)～3月24日(清水港))において行われた。湿性沈着による実験は、貧栄養海域である亜熱帯海域で実施した。航行中に「みらい」が有するドップラーレーダーを用いて降水帯の状況および動きを把握し、この降雨帯が船に到達する時間および経路を予測した。降雨が到達する前および後での表層海水をバケツ採水(深度0m)に加え、CTD採水より深度5m、10mの海水も取得した。また、同時に研究船の最上階のコンパスデッキに設置した雨サンプラーによる降雨サンプルも取得した。降雨前後の表層海水および雨水中の各栄養塩濃度(NO_3 , NO_2 , SiO_2 , PO_4 , NH_4)を船上にて比色法を用いて分析した。表層海水分析ではクロロフィル濃度なども同時に測定した。降雨の到達前後の表層海水を利用し、培養実験によ

り現場水塊の光合成-光曲線を測定し、植物プランクトンの基礎生産力の指標となる飽和光下の最大光合成速度を実測し、雨中栄養塩濃度と共にその比較を行った。

結果および考察

2021年3月13日に日本南方の亜熱帯海域(27°N, 140°E)付近で約1時間の降雨のもと、湿性沈着の現場検証実験を行うことに成功した。降雨中は船内の表層海水の連続分析においても塩分濃度が下がっており、CTD観測においても塩分濃度の低下が深度14m付近まで及び、降雨の強い影響が確認された。この条件下で、降雨前および後の表層海水バケツ採水の各栄養塩濃度(NO_3 , NO_2 , SiO_2 , PO_4 , NH_4)の測定では、 NO_3 および NH_4 の窒素化合物濃度が $0.1 \mu\text{mol/L}$ 以下の貧栄養状態であることがわかった。降雨前後における表層の基礎生産力を比較した結果、降雨後の表層海水での基礎生産力が降雨前に比べて増加していることが確認された。この時に採取した降雨サンプルの NO_3 および NH_4 のそれぞれの濃度は $10 \mu\text{mol/L}$ 以上であった。この時間の降水量(約20 mm/h)を考慮すると、大量の NO_3 および NH_4 が表層海水に大気から供給されたことが見積もられ、降雨による栄養供給が海洋表層の基礎生産力を増大させた可能性が高いことが示された。この結果は、現場観測実験により、大気からの栄養供給による海洋生態系への効果は無視できない過程であることが示された。

謝辞

本研究の実施にあたり、「みらい」乗組員および乗船研究員、陸上支援、日本海洋事業(株)およびマリン・ワーク・ジャパン(株)の皆様にご多大のお世話になりました。改めてお礼申し上げます。

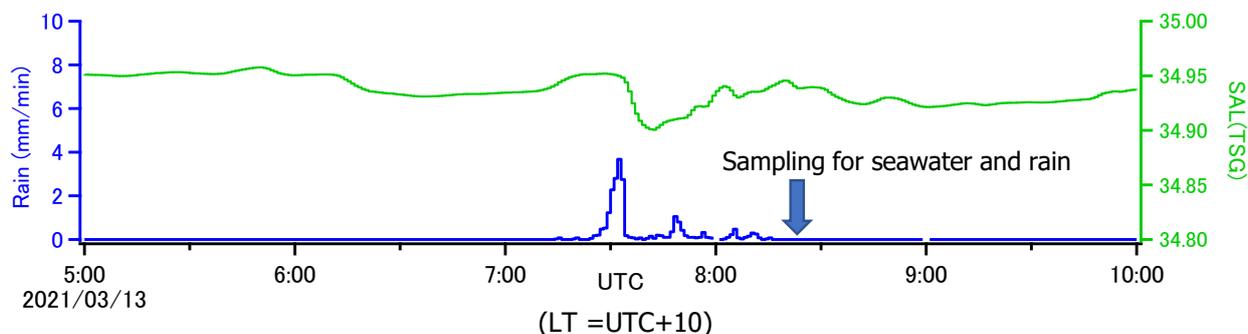


図2 検証実験時の降雨量・表層海水塩分濃度の経時変化

日本大気化学会 賛助会員 ご芳名 (第 26 回大気化学討論会時点)

◆賛助会員(団体)

株式会社汀線科学研究所 (<http://www.shorelinesci.jp>)

東京ダイレック株式会社 (<http://www.t-dylec.net>)

株式会社 ENV サイエンストレーディング (<http://www.env-sciences.jp>)

株式会社ウェザーニューズ (<https://weathernews.jp/>)

◆準賛助会員(団体)

株式会社グローブボックス・ジャパン (<http://www.gbjp.jp>)

メイワフォーシス株式会社 (<http://www.meiwafosis.com>)

本討論会の開催を含む、本会の活動にご支援いただきました。厚く御礼申し上げます。