

大気化学研究

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第 54 号

日本大気化学会

Japan Society of Atmospheric Chemistry

目次

総説

Article No.

—トピックス:「大気化学分野におけるAI/機械学習の利用」—

大気化学分野における機械学習の利用	飯沼 賢輝	054A01
対流圏オゾン予測を対象とした機械学習を応用したガイダンスシステムの開発		
.....	弓本 桂也, 板橋 秀一, 早崎 将光, 菅田 誠治	054A02	
機械学習モデルによる大気モデルのバイアス補正	森野 悠	054A03

第21回日本大気化学会奨励賞受賞記念論文

反応速度論に基づく大気化学反応機構の解明	秦 寛夫	054A04
----------------------	-------	------	--------

会員からのお知らせ

PAN-PGN joint Workshopへの参加報告	猪俣 敏	054N01
Report on Participation in the 6th International Workshop on Frontiers in			
Atmospheric Radical Measurements	Jiaru Li	054N02

学会からのお知らせ

第30回大気化学討論会開催報告		
..... 戸野倉 賢一, 今須 良一, 内田 里沙, 江波 進一, 大畠 祥, 坂本 陽介,			
..... 秦 寛夫, 藤田 道也, 星野 翔麻, 山地 一代, 石野 咲子, 梅澤 拓		054N03	
第30回大気化学討論会に参加して	阮 文鏗, Kwok Jommy	054N04
JpGU-AGU Joint Meeting 2026 大気化学セッション開催のお知らせ		
..... 江波 進一, 石野 咲子, 梅澤 拓, 山地 一代		054N05	
第21回日本大気化学会奨励賞の選考結果について	日本大気化学会 運営委員会	054N06
日本大気化学会会員集会プログラム	日本大気化学会 運営委員会	054N07
第42回日本大気化学会運営委員会議事録	日本大気化学会 運営委員会	054N08

記事のご投稿について

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

大気化学研究編集委員：

池田恒平(編集長), 河野七瀬, 上田紗也子, 佐伯田鶴, 染谷有

日本大気化学会運営委員：

持田陸宏(名古屋大学), 斎藤尚子(千葉大学), 石野咲子(金沢大学),
池田恒平(国立環境研究所), 梅澤拓(東北大学), 江口菜穂(九州大学),
江波進一(筑波大学), 大島長(気象研究所), 大畑祥(名古屋大学),
河野七瀬(近畿大学), 関谷高志(海洋研究開発機構), 竹川暢之(東京都立大学),
中山智喜(長崎大学), 町田敏暢(国立環境研究所), 山地一代(神戸大学)

大気化学分野における機械学習の利用

Applications of Machine Learning in Atmospheric Chemistry

飯沼賢輝^{1*}

近年の大気化学分野の進展は、多くの新知見をもたらす一方で、膨大なデータ解析という新たな課題を顕在化させている。この課題に対し、機械学習は有望な解決手段として注目されており、既にオゾン濃度予測、化学輸送モデルにおけるバイアス補正、反応機構の簡略化、反応速度定数の推定、質量分析データの分類・同定など、幅広い応用が進展している。本稿では、主要な機械学習アルゴリズムの概要とともに、これまでの応用事例を整理し、今後の展望として、物理・化学的制約を組み込んだハイブリッドモデル、因果推論、ならびに高い解釈性を有する手法の開発の必要性について論じる。

1. はじめに

近年の計測技術の進展により、従来の分析手法では検出が困難であった化合物、例えば高度に酸化された分子(Highly Oxygenated Molecules, HOMs)や、イソプレン酸化過程において生成される高反応性中間体などの直接観測が可能となり、大気化学反応に関する理解が飛躍的に深化した。その場で測定を行うオンライン分析の普及は、時間分解能を著しく向上させ、大気化学反応のリアルタイム追跡を可能にした。また、サンプル採取後に処理・分析を行うオフライン分析では高解像で高感度な質量分析装置の進展により、大気試料中の膨大な化合物の化学式決定が可能となった。こうした進歩は大気化学分野の研究を飛躍的に発展させたが、同時に、前例のない規模のデータを扱うこととなった。また最新の知見を反映した SOA 生成などのプロセスを組み込むことで、大気化学モデルは一層複雑化している。その結果、膨大なデータを効率的に処理・解析するための新たな手法の開発が重要な課題となっている。

近年、大規模データの解析において機械学習の利用が急速に拡大している。機械学習では、コンピュータが膨大なデータセットから特徴や関連性を学習し、その結果を用いて未知のデータに対する分類や

予測を実施する。機械学習は様々な科学領域で利用されているが、本稿では大気化学分野における応用に焦点を当て、特に大気化学反応や化学種の特性評価・分類に関する応用を概観する。さらに、現状の課題を整理し、今後必要とされる研究の方向性について議論する。

2. 機械学習とは

機械学習は人工知能(AI)の一領域であり、人間が明示的に規則を定義することなく、膨大なデータから統計的パターンを自律的に学習し、モデルを構築する技術である。このモデルを用いることで、新たに与えられたデータから同様のパターンや法則を抽出することが可能となる。この用語の起源は 1959 年に遡り、IBM の計算化学者であったアーサー・サミュエルが、コンピュータがチェッカー(西洋碁)をプレイできるように学習する手法を研究し、その成果を論文として発表したことに始まる[Samuel, 1959]。その後、AI 分野では多様な手法の研究が進められ、いくつかのブームと停滞期を経て、現在の大規模な普及に至っている。ここでは、AI の主要なアプローチである機械学習に焦点を当て、特に「教師あり学習」、「教師なし学習」、「強化学習」という三つの主要な学習手法の違

いについて簡単に説明する。また各手法に採用されている代表的なアルゴリズムを表形式で整理する。具体的な実装や理論的背景については、Python で使用される機械学習ライブラリの scikit-learn のユーザーガイドを参照されたい[Pedregosa et al., 2025]。

2.1 教師あり学習

教師あり学習は、特徴量(入力データ)とそれに対応するラベル(正解)を含む学習データを用いて、特徴量からラベルを推定する関数を学習し、未知の特徴量が与えられた際にラベルを予測するモデルを構築する手法である。身近な例としてはスパムメールの検出、画像認識、株価予想、短期気象予報などがある。その他マテリアルサイエンスや、創薬における分子特性の推定などにも広く応用されている。この手法は、正解ラベルを用いることで高い精度を達成できる一方、入力データの質と量がモデル性能に大きく影

響するため、データ品質の管理に多大な労力を要する点が課題である。表 1 に教師あり学習で使われる主なアルゴリズムをまとめる。アルゴリズムの選択は、入力データの量的、及び質的特性および最終的な分析目的に強く依存する。特に、結果の解釈可能性が重視される場合、ニューラルネットワークのような複雑なモデルは適切ではない。一方で、線形回帰により十分に対応可能な問題に対して、過度に複雑なアルゴリズムを適用することは、計算コストの浪費につながり、合理的な選択とは言えない。

2.2 教師なし学習

教師なし学習はラベルが無いデータからアルゴリズムがパターン、構造、特徴を自動的に抽出する手法を指す。表 2 に教師なし学習で主に使用されるアルゴリズムをまとめる。本手法は、主に類似した特徴

表 1 教師あり学習で使われる主なアルゴリズム。

アルゴリズム	目的	利点	欠点
線形回帰	入力と出力の線形関係を仮定し、モデルを構築	シンプル、解釈性が高い	非線形関係に弱い
ロジスティック回帰	シグモイド関数で確率を算出し、その値でクラス分類を行う	二値・多クラス分類に対応	非線形関係に弱い
決定木	特徴量でデータを分割し木構造で予測	非線形関係を扱える。特徴量重要度が分かる	過学習しやすい
ランダムフォレスト	複数の決定木をアンサンブルし予測	過学習抑制、安定した予測、解釈性あり	計算コストが高い
勾配ブースティング決定木(GBDT / XGBoost)	弱学習器を逐次追加し誤差を最小化	高精度、複雑な非線形関係に対応	ハイパーパラメータ*調整が必要
線形サポートベクターマシン(LSVM)	クラス間の間隔を最大化する線形境界を求める	高速	非線形関係に弱い
カーネルサポートベクターマシン(KSVM)	線形分離できないデータを、カーネル関数で高次元に変換し、線形な境界を求める	複雑な決定境界を学習可能	計算コストが高い ハイパーパラメータ*調整が難しい
ニューラルネットワーク(NN)	多層構造で非線形性を表現、深層学習で高性能	大規模データ対応、柔軟性が高い	解釈性が低い、計算コストが高い

*ハイパーパラメータ: 機械学習モデルの過学習や構造を制御するために使われる、学習前に人間が設定する値。

表2 教師なし学習で使われる主なアルゴリズム。

アルゴリズム	目的	利点	欠点
K-means	データを指定したクラスタ数に分割	計算が速い, 実装が簡単	クラスタ数を事前に指定する必要がある 非球状クラスタに弱い
階層的クラスタリング	データを階層構造でグループ化し, デンドrogramで可視化可能	クラスタ数を後から決定可能, 構造把握に有効	計算コストが高い
DBSCAN (Density-Based Spatial Clustering)	密度に基づいてクラスタを形成し, ノイズを扱える	クラスタ数を指定不要, 異常値検出に強い	パラメータ設定が難しい
PCA(主成分分析)	高次元データを低次元に圧縮し, 情報を保持	次元削減で計算効率向上, 可視化に有効	線形性を仮定 非線形構造には弱い
t-SNE	高次元データの非線形次元削減, 可視化に特化	クラスタ構造の視覚化に優れる	計算コストが高い 大規模データに向き
UMAP	t-SNE より高速で構造保持に優れる	高速, クラスタ構造をよく保持	パラメータ調整が必要
オートエンコーダ	ニューラルネットワークで特徴抽出し次元削減	非線形構造に対応, 柔軟性が高い	訓練に時間がかかる 解釈性が低い

を持つデータをグループ化するクラスタリングや, 高次元データの次元削減に利用される。身近な例として, 顧客の購買パターンを分析し, 類似性に基づいてグループを抽出し, 商品推薦に活用する方法がある。主成分分析(Principal Component Analysis, PCA)は, 教師なし学習における代表的なアプローチとして広く利用されている。これは, 高次元データの次元削減を施した後, クラスタリング手法と組み合わせることで, サンプル間の構造的差異を視覚的に把握することを可能にするためである。近年注目されている画像生成では, 正解ラベルの無い多様な画像データから特徴を学習し, その知識を基に新たな画像を生成するため, 教師無し学習といえる。教師無し学習は正解ラベルを必要としないため, データ前処理の負担が比較的少なく, 膨大なデータをそのまま扱うことで, データに内在する構造や関係性を効率的に抽出できる利点がある。一方で, 正解が存在しないため, 得

られた分類結果の妥当性を慎重に評価する必要がある。また, 入力データに含まれるノイズの影響を受けやすく, 結果の信頼性を確保するためには, 結局のところ適切な前処理が不可欠になる。

2.3 強化学習

強化学習では行動方策を学習の主体である「エージェント」と, それが行動する対象となる「環境」で構成される。エージェントと環境の間では「状態」, 「行動」, 「報酬」の情報が交換される。表3に強化学習で使われる主なアルゴリズムをまとめる。強化学習では, エージェントが試行錯誤を繰り返し, 長期的な報酬を最大化するような行動方策(ポリシー)を獲得する。これは人間の学習方法と似ている。強化学習が前述の学習法と大きく違うのは, 人間が関与せども, エージェントが環境との相互作用を通じて自律的に最適な行動方策を獲得できる点にある。強化学習の代表的な事例として, 囲碁や将棋において自己対戦を繰

り返しながら学習を進め、人間のトッププレイヤーを凌駕する性能を達成した AI プログラムが挙げられる。加えて、自律型ロボットの動作制御においては、環境との相互作用を通じて最適な行動ポリシーを獲得する強化学習が主要な手法として採用されている。

上記の手法の中でも、特に教師あり学習と教師なし学習は、大気化学分野への応用が比較的進んでいる。次に、これまで大気化学分野で実施されてきた機械学習の主な事例について述べる。なお、ここではすべての事例を網羅的に記載していないことに留意されたい。

3. 大気化学分野での応用

3.1 化学輸送モデルのオゾンバイアス補正

化学輸送モデル(CTM)による大気中化学種の輸送および反応過程の数値的再現においては、観測値とモデル予測値との間に系統的な乖離(バイアス)が生じることが報告されており、これはモデルの信頼性や応用可能性に影響を及ぼしている。このバイアス

は主に、排出インベントリや気象場などの入力データに内在する不確実性、モデルに実装された化学反応スキームの限界、ならびに空間・時間解像度に関する計算コスト上の制約に起因すると考えられる [Ivatt & Evans, 2020]。とりわけオゾン濃度のバイアスは、大気汚染に伴う健康影響の評価やリスク分析、環境規制の立案・実施に関する政策決定、さらには気候モデルの精度向上に対して重大な影響を及ぼす可能性がある。そのため、オゾンバイアスの低減は、CTM の改良における重要かつ優先的に取り組むべき課題である。近年、機械学習手法の進展に伴い、オゾン濃度予測におけるモデルバイアスの低減を目的とした新たな手法として、機械学習を応用したアプローチが提案されている [Hickman et al., 2025]。これらの手法は、従来の物理・化学ベースのモデルでは捉えきれない非線形性や複雑な相互作用を補完する可能性を有しており、CTM の精度向上に向けた有望な選択肢として注目されている。

オゾンバイアス補正には、教師あり学習が広く適用

表3 強化学習で使われる主なアルゴリズム。

アルゴリズム	目的	利点	欠点
Q-Learning	状態と行動の組み合わせに対して価値(Q値)を学習し、最適方策を導く	環境モデル不要、シンプル	大規模状態空間で計算量が膨大 連続空間に不向き
SARSA	オンポリシー*で現在の方策に従って次の行動を選び、その行動で更新	方策に沿った安全な学習	探索が保守的で最適解に到達しにくい
Deep Q-Network (DQN)	Q-Learning をニューラルネットで拡張し、連続的な状態空間に対応	高次元状態(画像など)に対応可能	ハイパーパラメータ調整が難しい サンプル効率が低い
Policy Gradient	方策を直接パラメータ化し、勾配法で最適化	連続行動空間に対応、柔軟な方策表現	勾配推定の分散が大きく不安定
Actor-Critic	Policy Gradient と価値関数を組み合わせ安定性を向上	Policy Gradient より安定、連続行動対応	実装が複雑、ハイパーパラメータ調整が難しい
Proximal Policy Optimization (PPO)	方策更新を制約し、学習の安定性を確保	実装が比較的簡単、安定性が高い	サンプル効率は低い、大規模計算コストが必要

*オンポリシー: 現行ポリシーに基づく行動選択を通じて、同ポリシーの改善を図る学習アプローチ

されている。具体的には、CTM モデルのオゾン出力を観測値や再解析データと照合し、誤差補正のための学習データを生成することで、モデル出力の精度を向上させる手法である[e.g. Ivatt & Evans, 2020; Miyazaki *et al.*, 2025; Sun & Archibald, 2021; Tang *et al.*, 2024; Xu *et al.*, 2021]。またオゾンに関わる一部、又は全ての化学反応プロセスを機械学習で代替し、モデルの簡略化および計算効率の向上を図る手法が提案されている[e.g. Anderson *et al.*, 2022; Keller & Evans, 2019; Nowack *et al.*, 2018; Shen *et al.*, 2022]。これらの研究では多様な機械学習アルゴリズムが活用されており、バイアス補正にはランダムフォレストや XGBoost が、モデルの簡略化には GBDT が主に用いられている。ニューラルネットワークは、バイアスの補正だけでなくモデルの簡略化にも活用されている。さらに、GBDT を用いて CTM による $5 \times 5 \text{ km}$ 解像度のオゾン予測を $1 \times 1 \text{ km}$ にダウンスケールすることで、粗い解像度では希釈されてしまう局所的な NO_x 排出を反映し、オゾンと NO の滴定反応を補正する手法が報告されている。このアプローチにより、観測値との誤差が大幅に低減され、従来の解像度では捉えられなかつた中長期的な変動や傾向を再現することが可能となっている[Gouldsborough *et al.*, 2024]。

3.2 大気化学反応機構への応用

大気化学モデルの高度化においては、反応機構の網羅性、計算コストの低減が不可欠である。反応機構の詳細化は計算コストの増加を不可避とし、さらに反応依存性の複雑さが並列化を制約するため、計算リソースの単純な増加による高速化は期待できない。室内実験等で反応経路が限定される状況では、包括的なモデルから関連する反応のみを自動で選択し、計算可能であることが望まれる。これらの課題に対して、機械学習の活用は極めて有効な手段となり得る[e.g. Keller & Evans, 2019; Kelp *et al.*, 2020]。

Master Chemical Mechanism (MCM) [Jenkin *et al.*, 1997] や Gecko-A [Aumont *et al.*, 2005] といった明

示的な大気化学モデルは、大気中の VOC 反応や SOA 生成メカニズムの解析に極めて有用である。しかし、CTM や化学気候モデルへの適用は、膨大な計算リソースを要するため現実的には困難である。そこで Schreck らは、Gecko-A モデルで得られた多様な環境条件下の結果を用い、フィードフォワード型全結合ニューラルネットワークおよびリカレントニューラルネットワークによる機械学習を行い、人為起源 VOC の OH 酸化反応および植物起源 VOC の O_3 酸化反応に伴う SOA 生成を再現し機械学習の再現度を比較した [Schreck *et al.*, 2022]。報告によれば、ニューラルネットワークを用いたエミュレーションは化学種の時間変化を高精度で再現可能であり、長期的な安定性に関しても良好な結果が得られている。さらに最大 6 衍の高速化が報告されており、化学気候モデルへの導入も可能であることが示唆されている。さらに、同グループはランダムフォレスト法を用いて、人為起源 VOC の酸化過程、生成される SOA 質量、ならびにガス／エアロゾル分配の再現を試みた。その結果、一部に再現性の課題が認められたものの、将来的には大規模モデルへの適用が可能であることを示唆している [Mouchel-Vallon & Hodzic, 2023]。

複雑な反応機構の簡略化や未知反応の探索では、グラフ理論とニューラルネットワークを統合したグラフニューラルネットワーク (Graph Neural Network, GNN) の応用が報告されている [J. Zhou *et al.*, 2020]。GNN は、グラフ構造を有するデータの処理を目的として設計されたニューラルネットワークであり、非規則構造を持つデータの解析に優れた性能を示す。化学分野においては、分子を原子 (ノード) と原子間結合 (エッジ) から構成される分子グラフとして表現し、各ノードおよびエッジに特徴ラベルを付与することで分子構造情報をモデル化する手法が広く利用されている。GNN は、メッセージパッシング手法により、各ノードが隣接ノードから情報を集約し自身の特徴を更新する。この過程を通じて、局所的な構造情報が階層的に統合され、例えば反応中心の同定や結合変化の予測

が可能となる。Getter らは、大気種をノード、反応をエッジとしてグラフ構造で表現することにより、新規大気反応を探索する手法を提案している[Getter *et al.*, 2025]。彼らは、GEOS-Chem の反応機構から一部の化学反応(エッジ)を除去したデータを学習に利用し、GNN モデル間でエッジ再構築性能を評価した。評価の結果、提案モデルは約 90% のエッジを再構築可能であり、このアプローチが新規反応の探索において有用である可能性を示唆した。さらに、グラフ理論を応用したオープンソースソフトウェア MEXPLORER[Sander, 2024]では、複雑な反応機構の解析、簡略化、可視化が可能であることが示されている。また、学習可能な人工知能アルゴリズムであるマルチヘッドアテンションを組み込んだ手法として Artificial Intelligence Model for Aerosol Chemistry and Interactions (AIMACI)[Xia *et al.*, 2025]が提案されている。

3.3 反応速度定数の推定

反応速度定数は大気化学において最も基本的で重要なパラメータの一つである。多くの重要な反応の速度定数が実験より正確に求められているが、全ての起こりうる化学反応の速度定数を実験より求めるることは現実的ではない。さらに、膨大に存在する反応中間体の反応速度定数は、実験データ、理論計算、あるいは構造活性相関 (Structure–Activity Relationship, SAR) によって推定されている。しかし、これらの手法には多大な計算コストや計算リソースが必要であり、特に SAR は適用可能な化合物が限定されるため、多くの化合物を網羅することは現実的ではない。

従来報告されている機械学習を用いた反応速度定数の推定手法の多くは、アレニウス式のパラメータを機械学習で予測し、その予測値を基に反応速度を計算する方法である[Komp *et al.*, 2022]。反応速度定数推定における機械学習の精度は、訓練データの量的規模と質的水準に依存する。反応速度論のデ

ータセットは多様に存在するが、機械学習の観点から要求される条件を包括的に満たすものは、現状では存在しない。しかし、近年では機械学習の利用を前提としたデータセットの整備が活発化している。例えば、気相反応では Grambow らによる約 12,000～16,000 件の有機反応を DFT 計算より得た量子化学データがある[Grambow *et al.*, 2020b]。また、von Rudorff らは E2(脱離による多重結合形成反応)および S_N2 反応(一段階で進行する求核置換反応)に特化し、4,466 種の遷移状態を含むデータセットを提供している[von Rudorff *et al.*, 2020]。Grambow らは、同時に自身のデータセットを活用し、前駆体および生成物のグラフ表現のみを入力として、ニューラルネットワークにより活性化エネルギー(E_a)を推定する手法を提案している[Grambow *et al.*, 2020a]。さらに、特定の反応系に焦点を当てた機械学習手法も提案されている。例えば、Lu らはアルケンと OH の反応を対象とし、C₂～C₅の 10 種類のアルケンをトレーニングデータとして用いて、C₆～C₁₂アルケンの反応速度定数を推定し、十分な精度が得られることを報告している[Lu *et al.*, 2021]。さらに、大気反応に特化した手法として、Morgan フィンガープリントとグラフニューラルネットワークの一種である D-MPNN を組み合わせて反応速度定数を推定するアプローチが提案されている[Al Ibrahim & Farooq, 2022]。この研究では、SAR 用に編纂された大気相反応のアレニウス式パラメータを含むデータセット AtmVOCKin[McGillen *et al.*, 2020]をトレーニングデータとして用い、修正アレニウス式のパラメータを機械学習により推定し、反応速度定数を算出している。多相化学反応への応用として、Berkemeier らは、kinetic multi-layer model of aerosol surface and bulk chemistry (KM-SUB) の計算コストが大きい速度論モデル部分に対し、ニューラルネットワークを用いた代理モデルを構築し、精度を維持したまま高速化に成功している[Berkemeier *et al.*, 2023]。

3.4 質量分析手法への応用

イオン化法や質量分析装置の進歩により、大気ガスやエアロゾル試料から、これまで未知であった多くの化合物が検出可能となった。しかし、それらのデータ解析や化合物同定には依然として多くの課題が残されている。特に質量分析装置の高解像度化によって膨大なデータが得られるようになったことで、データ解析には情報科学的手法の導入が不可欠となっている。

教師なし学習手法の代表例である PCA や PMF (Positive Matrix Factorization: 観測データを非負の行列に分解し、寄与源とその寄与量を推定する統計的手法) は、大気サンプル分析やバイオインフォマティクスで広く活用されている。特に大気化学では、発生源寄与解析において重要な役割を果たし、ラベル付けが困難なデータの解析に有効である。特にオンライン型の質量分析計である AMS (Aerosol Mass Spectrometer, Aerodyne Research, MA, USA) を用いた発生源寄与の解析において頻繁に利用されており、その有効性は広く認められている。詳細な手法については、例えば Zhang らによるレビューを参照されたい。[e.g. Zhang *et al.*, 2011]。

同じくオンライン型の質量分析計として単一エアロゾル質量分析計 (Single Particle Mass Spectrometer, SPMS) がある。AMS は全体のエアロゾル組成を把握するのに用いられるが、SPMS ではエアロゾルごとに成分を直接イオン化して測定できるため、混合状態やエアロゾル間の化学的多様性を解析するのに有効である。このようなデータではエアロゾルのクラス分類を正確に短時間で行うためのデータ解析手法が必要となる。Christopoulos らは、ランダムフォレストを SPMS のデータ解析に適用し、大まかなエアロゾル分類で 90% 以上、より詳細な分類でも約 90% の精度を達成したと報告している [Christopoulos *et al.*, 2018]。

オフライン分析の分野では、Franklin らが、GC/MS や GC × GC/MS データに対応する未知化合物の定量・特性評価を可能にするランダムフォレストベースの手法を開発し、R 用パッケージ Ch3MS-RF として

公開している [Franklin *et al.*, 2022]。Franklin らのランダムフォレストモデルは、130 種類の既知成分を含む外部標準の揮発性・極性空間上の位置と質量スペクトル情報を用いて学習・評価されており、標準物質が存在しない化合物についても、炭素数、蒸気圧、炭素酸化状態、O:C 比を高い精度で予測できることが報告されている。さらに、ソースコードが公開されているため、用途に応じた改良やカスタマイズが可能である。

その他にも、大気有機化合物の同定に向け、マススペクトル情報を基盤とした機械学習の応用事例も報告されている。Bortolussi らは、既知農薬の複数の化学イオン化試薬を使用した質量分析データを用いてモデルを学習させ、検出精度と信号強度予測性能を検証し、報告している [Bortolussi *et al.*, 2025]。現状では、構造が類似した化合物に対しては高い精度を示すものの、未知化合物を直接同定できる段階には至っていない。しかし、報告によれば、今後トレーニングデータを充実させることで、未知化合物の同定に資するモデルの構築が可能になることが示唆されている。その他にも大気中ハロカーボンの GC/EI-HRMS 分析結果から、機械学習を用いて未知化合物のフラグメントに化学式ラベルを付与する新しいアプローチが報告されている [Guillevic *et al.*, 2021]。

質量分析計ではない検出器に関して、Stewart らは、光イオン化検出器における揮発性有機化合物のイオン化特性と検出応答を、量子力学的計算の代替として機械学習を用いて効率的に予測し、計算コストを大幅に低減するアプローチを提示している [Stewart *et al.*, 2023; Stewart & Martin, 2023]。光イオン化法は質量分析器のイオン化手法としても使われるため、質量分析への適用が期待される。

4. 現状の課題と将来の方向性

前項で述べたように、大気化学分野においても機械学習の応用が進みつつある。特に、大気化学は数百を超える化学種と複雑な反応ネットワークを含むた

め, 従来の数値モデルでは計算コストが極めて大きいことから, 機械学習による効率的な近似や予測手法の開発は重要な研究課題となっている。

しかし, 機械学習の適用にはいくつかの制約が存在する。一般的な課題として, トレーニングデータの品質確保, モデルの解釈性の低さ(内部機構の理解が困難で, 機構的説明可能性が限定的), 汎用性の制限(分布外, 新規条件で性能が低下し, 再学習が不可欠)が挙げられる。さらに, 大気化学分野特有の問題として, 時間的・空間的および化学種のカバレッジ不足による学習データの限定性, 複雑な化学反応を対象とする際の精度と解釈性の両立の困難性, 気候モデルや CTM における長期シミュレーションでの安定性の確保, そして科学的妥当性の評価に伴う困難性が顕著である。

これらの課題を解決するためには, 物理・化学的制約を組み込んだ機械学習手法の導入が不可欠である。例として, Physics-Informed Neural Networks (PINNs) [Raissi *et al.*, 2019], 明示的モデルの一部を機械学習で置き換えたハイブリッドアプローチ[Keller & Evans, 2019], 不確実性評価を目的としてベイズ推論や確率的手法を組み合わせた機械学習の活用が求められる[Zaidan *et al.*, 2025]。さらに, データ管理, 利用, 収集方法の透明性を確保し, データガバナンスおよび倫理的な機械学習利用のための枠組みを構築することは, 極めて重要な課題である。これらの取り組みは, データの信頼性と公平性を保証し, 学際的な協力を促進するうえで不可欠である。

筆者は長年, イオンモビリティ質量分析計を用いて得られる衝突断面積(CCS)値を, 大気化学種の同定に活用してきた。その過程において, 標準物質が存在しない化合物の構造推定に際しては, 量子化学計算手法を併用し, CCS 値を推定する必要があったが, 量子力学的計算の実施には, 膨大な計算コストおよび高価な専用ソフトウェアを要するため, 想定されるすべての分子構造について網羅的に計算を行うことは現実的に困難であった。Zhou らによる 2017 年の

研究で, 機械学習を用いて CCS 値を推定する手法である MetCCS[Z. Zhou *et al.*, 2017]が提案されて以来, 様々な機械学習を用いた CCS 値推定アプローチが発表されている[Plante *et al.*, 2019; Rainey *et al.*, 2022; Ross *et al.*, 2020; Z. Zhou *et al.*, 2020]。これらの手法の導入により, 従来の計算手法と比較して計算時間を大幅に短縮でき, さらに多数の化合物に対して CCS 値を容易かつ比較的高精度に推定することが可能となった。このように, 分析データの高度化・複雑化により, 従来の解析手法では対応が困難である問題も機械学習の進展によって, 突然として解決に向かう可能性がある。今後, 解釈性が確保された機械学習手法の発展が, 大気化学分野における様々な研究を支援する有力な手段となることを期待したい。

参考文献

Al Ibrahim, E., & Farooq, A. (2022). Transfer learning approach to multitarget temperature-dependent reaction rate prediction. *The Journal of Physical Chemistry. A*, 126(28), 4617–4629.

Anderson, D. C., Follette-Cook, M. B., Strode, S. A., Nicely, J. M., Liu, J., Ivatt, P. D., et al. (2022). A machine learning methodology for the generation of a parameterization of the hydroxyl radical. *Geoscientific Model Development*, 15(16), 6341–6358.

Aumont, B., Szopa, S., & Madronich, S. (2005). Modelling the evolution of organic carbon during its gas-phase tropospheric oxidation: development of an explicit model based on a self generating approach. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 2497–2517.

Berkemeier, T., Krüger, M., Feinberg, A., Müller, M., Pöschl, U., & Krieger, U. K. (2023). Accelerating models for multiphase chemical kinetics through machine learning with polynomial chaos expansion and neural networks. *Geoscientific Model Development*, 16(7), 2037–2054.

Bortolussi, F., Sandström, H., Partovi, F., Mikkilä, J., Rinke, P.,

& Rissanen, M. (2025). Technical note: Towards atmospheric compound identification in chemical ionization mass spectrometry with pesticide standards and machine learning. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 25(1), 685–704.

Christopoulos, C. D., Garimella, S., Zawadowicz, M. A., Möhler, O., & Cziczo, D. J. (2018). A machine learning approach to aerosol classification for single-particle mass spectrometry. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(10), 5687–5699.

Franklin, E. B., Yee, L. D., Aumont, B., Weber, R. J., Grigas, P., & Goldstein, A. H. (2022). Ch3MS-RF: a random forest model for chemical characterization and improved quantification of unidentified atmospheric organics detected by chromatography–mass spectrometry techniques. *Atmospheric Measurement Techniques*, 15(12), 3779–3803.

Getter, D., Sturm, P. O., & Silva, S. J. (2025). Data - driven discovery of atmospheric chemical reactions. *Journal of Geophysical Research: Machine Learning and Computation*, 2(4), e2025JH000895.

Gouldsborough, L., Hossaini, R., Eastoe, E., Young, P. J., & Vieno, M. (2024). A machine learning approach to downscale EMEP4UK: analysis of UK ozone variability and trends. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 24(5), 3163–3196.

Grambow, C. A., Pattanaik, L., & Green, W. H. (2020a). Deep learning of activation energies. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 11(8), 2992–2997.

Grambow, C. A., Pattanaik, L., & Green, W. H. (2020b). Reactants, products, and transition states of elementary chemical reactions based on quantum chemistry. *Scientific Data*, 7(1), 137.

Guillevic, M., Guillevic, A., Vollmer, M. K., Schlauri, P., Hill, M., Emmenegger, L., et al. (2021). Automated fragment formula annotation for electron ionisation, high resolution mass spectrometry: application to atmospheric measurements of halocarbons. *Journal of Cheminformatics*, 13(1), 78.

Hickman, S. H. M., Kelp, M. M., Griffiths, P. T., Doerksen, K., Miyazaki, K., Pennington, E. A., et al. (2025). Applications of machine learning and artificial intelligence in tropospheric ozone research. *Geoscientific Model Development*, 18(22), 8777–8800.

Ivatt, P. D., & Evans, M. J. (2020). Improving the prediction of an atmospheric chemistry transport model using gradient-boosted regression trees. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(13), 8063–8082.

Jenkin, M. E., Saunders, S. M., & Pilling, M. J. (1997). The tropospheric degradation of volatile organic compounds: a protocol for mechanism development. *Atmospheric Environment (Oxford, England: 1994)*, 31(1), 81–104.

Keller, C. A., & Evans, M. J. (2019). Application of random forest regression to the calculation of gas-phase chemistry within the GEOS-Chem chemistry model v10. *Geoscientific Model Development*, 12(3), 1209–1225.

Kelp, M. M., Jacob, D. J., Kutz, J. N., Marshall, J. D., & Tessum, C. W. (2020). Toward stable, general machine - learned models of the atmospheric chemical system. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 125(23). <https://doi.org/10.1029/2020jd032759>

Komp, E., Janulaitis, N., & Valleau, S. (2022). Progress towards machine learning reaction rate constants. *Physical Chemistry Chemical Physics: PCCP*, 24(5), 2692–2705.

Lu, J., Zhang, H., Yu, J., Shan, D., Qi, J., Chen, J., et al. (2021). Predicting rate constants of hydroxyl radical reactions with alkanes using machine learning. *Journal of Chemical Information and Modeling*, 61(9), 4259–4265.

McGillen, M. R., Carter, W. P. L., Mellouki, A., Orlando, J. J., Picquet-Varrault, B., & Wallington, T. J. (2020). Database for the kinetics of the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. *Earth System Science Data*, 12(2), 1203–1216.

Miyazaki, K., Marchetti, Y., Montgomery, J., Lu, S., & Bowman, K. (2025). Identifying drivers of surface ozone bias in global chemical reanalysis with explainable machine

learning. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 25(15), 8507–8532.

Mouchel-Vallon, C., & Hodzic, A. (2023). Toward emulating an explicit organic chemistry mechanism with random forest models. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 128(10). <https://doi.org/10.1029/2022jd038227>

Nowack, P., Braesicke, P., Haigh, J., Abraham, N. L., Pyle, J., & Voulgarakis, A. (2018). Using machine learning to build temperature-based ozone parameterizations for climate sensitivity simulations. *Environmental Research Letters*, 13(10), 104016.

Pedregosa, F., Varoquaux, G., Gramfort, A., Michel, V., Thirion, B., Grisel, O., et al. (2025). Scikit-learn: Machine Learning in Python. Retrieved November 17, 2025, from https://scikit-learn.org/stable/user_guide.html

Plante, P.-L., Francovic-Fontaine, É., May, J. C., McLean, J. A., Baker, E. S., Laviolette, F., et al. (2019). Predicting Ion Mobility Collision Cross-Sections Using a Deep Neural Network: DeepCCS. *Analytical Chemistry*, 91(8), 5191–5199.

Rainey, M. A., Watson, C. A., Asef, C. K., Foster, M. R., Baker, E. S., & Fernández, F. M. (2022). CCS predictor 2.0: An open-source Jupyter Notebook tool for filtering out false positives in metabolomics. *Analytical Chemistry*, 94(50), 17456–17466.

Raissi, M., Perdikaris, P., & Karniadakis, G. E. (2019). Physics-informed neural networks: A deep learning framework for solving forward and inverse problems involving nonlinear partial differential equations. *Journal of Computational Physics*, 378, 686–707.

Ross, D. H., Cho, J. H., & Xu, L. (2020). Breaking down structural diversity for comprehensive prediction of ion-neutral collision cross sections. *Analytical Chemistry*, 92(6), 4548–4557.

von Rudorff, G. F., Heinen, S. N., Bragato, M., & von Lilienfeld, O. A. (2020). Thousands of reactants and transition states for competing E2 and S N 2 reactions. *Machine Learning: Science and Technology*, 1(4), 045026.

Samuel, A. L. (1959). Some studies in machine learning using the game of checkers. *IBM Journal of Research and Development*, 44(1.2), 210–229.

Sander, R. (2024). MEXPLORER 1.0.0 – a mechanism explorer for analysis and visualization of chemical reaction pathways based on graph theory. *Geoscientific Model Development*, 17(6), 2419–2425.

Schreck, J. S., Becker, C., Gagne, D. J., Lawrence, K., Wang, S., Mouchel-Vallon, C., et al. (2022). Neural network emulation of the formation of organic aerosols based on the explicit GECKO – A chemistry model. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 14(10). <https://doi.org/10.1029/2021ms002974>

Shen, L., Jacob, D. J., Santillana, M., Bates, K., Zhuang, J., & Chen, W. (2022). A machine-learning-guided adaptive algorithm to reduce the computational cost of integrating kinetics in global atmospheric chemistry models: application to GEOS-Chem versions 12.0.0 and 12.9.1. *Geoscientific Model Development*, 15(4), 1677–1687.

Stewart, M. P., & Martin, S. T. (2023). Machine learning for ionization potentials and photoionization cross sections of volatile organic compounds. *ACS Earth & Space Chemistry*, 7(4), 863–875.

Stewart, M. P., Ohno, P. E., McKinney, K., & Martin, S. T. (2023). Prediction of the response of a photoionization detector to a complex gaseous mixture of volatile organic compounds produced by α -pinene oxidation. *ACS Earth & Space Chemistry*, 7(10), 1956–1970.

Sun, Z., & Archibald, A. T. (2021). Multi-stage ensemble-learning-based model fusion for surface ozone simulations: A focus on CMIP6 models. *Environmental Science and Ecotechnology*, 8(100124), 100124.

Tang, B., Stanier, C. O., Carmichael, G. R., & Gao, M. (2024). Ozone, nitrogen dioxide, and PM2.5 estimation from observation-model machine learning fusion over S. Korea: Influence of observation density, chemical transport model

掲載受理日: 2026 年 1 月 15 日

resolution, and geostationary remotely sensed AOD. *Atmospheric Environment (Oxford, England: 1994)*, 33(120603), 120603.

Xia, Z., Zhao, C., Yang, Z., Du, Q., Feng, J., Jin, C., et al. (2025). Toward a learnable Artificial Intelligence Model for Aerosol Chemistry and Interactions (AIMACI) based on the Multi-Head Self-Attention algorithm. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 25(12), 6197–6218.

Xu, M., Jin, J., Wang, G., Segers, A., Deng, T., & Lin, H. X. (2021). Machine learning based bias correction for numerical chemical transport models. *Atmospheric Environment (Oxford, England: 1994)*, 248(118022), 118022.

Zaidan, M. A., Motlagh, N. H., Nurmi, P., Hussein, T., Kulmala, M., Petäjä, T., et al. (2025, June 19). *Artificial Intelligence for atmospheric sciences: A research roadmap*. arXiv [cs.ET]. Retrieved from <http://arxiv.org/abs/2506.16281>

Zhang, Q., Jimenez, J. L., Canagaratna, M. R., Ulbrich, I. M., Ng, N. L., Worsnop, D. R., et al. (2011). Understanding atmospheric organic aerosols via factor analysis of aerosol mass spectrometry: a review. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 401(10), 3045–3067.

Zhou, J., Cui, G., Hu, S., Zhang, Z., Yang, C., Liu, Z., et al. (2020). Graph neural networks: A review of methods and applications. *AI Open*, 1, 57–81.

Zhou, Z., Xiong, X., & Zhu, Z.-J. (2017). MetCCS predictor: a web server for predicting collision cross-section values of metabolites in ion mobility-mass spectrometry based metabolomics. *Bioinformatics (Oxford, England)*, 33(14), 2235–2237.

Zhou, Z., Luo, M., Chen, X., Yin, Y., Xiong, X., Wang, R., et al. (2020). Ion mobility collision cross-section atlas for known and unknown metabolite annotation in untargeted metabolomics. *Nature Communications*, 11(1), 4334.

著者所属

1. 沖縄科学技術大学院大学機器分析セクション

* 責任著者

Yoshiteru Iinuma <yoshiteru.iinuma@oist.jp>

原稿受領日: 2025 年 12 月 4 日

対流圏オゾン予測を対象とした機械学習を応用したガイダンスシステムの開発

Development of post-process for ozone prediction with Machine Learning Technique

弓本桂也^{1*}, 板橋秀一¹, 早崎将光², 菅田誠治³

大気汚染による健康影響の軽減には、高精度な大気質予測が不可欠である。本研究では、国立環境研究所の大気質予測システム(VENUS)のオゾン予測を念頭に、領域化学輸送モデル(WRF-CMAQ)出力と大気汚染物質広域監視システム(AEROS)の地上観測を用いてニューラルネットワーク型ガイダンスシステムを構築した。予測されたオゾン濃度やPM2.5濃度に加え、風速、気温、相対湿度、月、時刻などを入力として学習し、2017年を対象に検証を行った。その結果、相関係数は0.66から0.87へ向上し、RMSDも約60%低減するなど、全国的に見られた過大バイアスが大きく改善された。機械学習によるガイダンスシステムによる予測結果の補正是既存大気質予測システムの精度向上に有効であり、実運用への展開が期待される。

1. はじめに

大気汚染は人間社会の健康・経済活動・生活環境に多大な影響を及ぼしている。その中でも、微小粒子状物質(PM2.5)やオゾン(O₃)による健康被害は深刻であり、呼吸器疾患や循環器疾患の増加など、長期的な公衆衛生上の問題を引き起こしている。このような背景から、大気汚染の予測および早期警戒システムの整備は、被害の軽減やリスク管理の観点から

極めて重要である。実際、欧州や北米、東アジアを中心に、数多くの国で大気汚染予測システムの運用が進められている[Bai et al., 2018]。しかしながら、現行の予測システムには依然として精度の限界が存在し、改善の余地が大きい。

大気汚染予測の精度向上に向けては、観測データを用いて初期値や排出量を更新するデータ同化手法が有効であることが知られている[例えば、Menut &

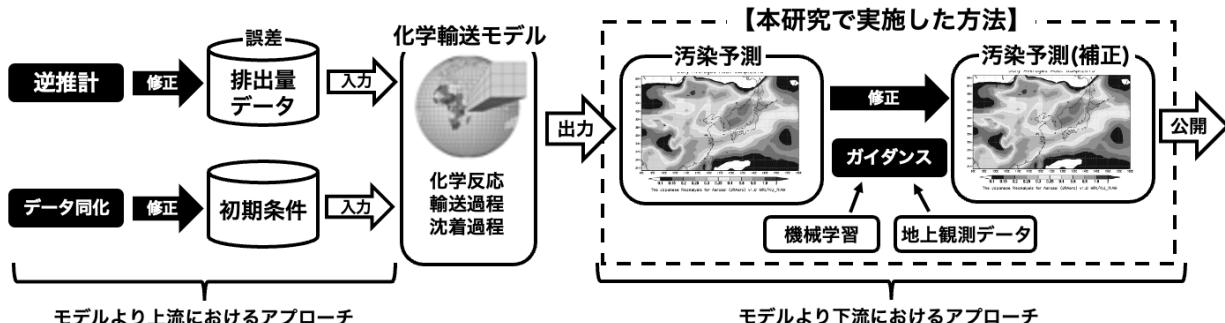


図1 ガイダンスシステムを組み込んだ大気汚染予測システムの概要。参考までにデータ同化や逆推計手法を用いた予測精度改善の流れも示す。

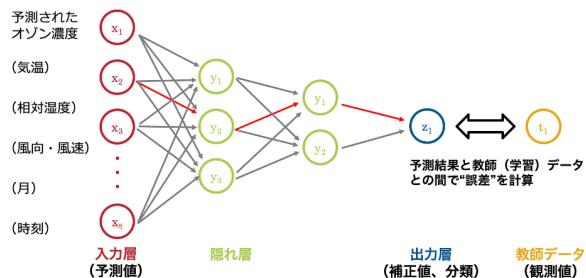


図2 ニューラルネットワークによって構築されたガイダンスシステムの概要。

Bessagnet, 2019]。しかし、データ同化の導入や運用には高い計算コストおよびシステム開発負担を伴うため、実運用への適用には一定の制約がある。一方で、数値天気予報分野においては、モデル出力に対して補正を付加する「ガイダンスシステム(guidance, またはpost-processing(PP))」が広く用いられている。ガイダンス手法は、データ同化と比較して導入が簡便で、既存モデル出力を再利用しつつ予測誤差を補正できるという特徴を有している(ガイダンスシステムについては気象庁の資料が詳しい[気象庁予報部, 1991; 高田, 2017])。

近年、大気汚染予測においても、化学輸送モデルの出力に対してガイダンスシステムを適用する試みが進められつつあるが[森野ら, 2025]、開発段階にあり実運用に至っている例は限られている。環境研究総合推進費「機械学習を用いた大気汚染予測システムへのガイダンス手法の開発と予測精度向上(5RF-2002, 2020-2021 年度)」および「機械学習によって観測データと統合された新しい大気汚染予測システムの開発と実働実験(5MF-2201, 2022-2023 年度)」では、国立環境研究所が運用する大気質予測システム(VENUS, <https://venus.nies.go.jp/>)のオゾン予測への応用を念頭に、機械学習によるガイダンスシステムの開発とその検証を行った。本稿ではその結果について紹介する。

2. 手法及び観測データ

図1に本研究で開発したガイダンスシステムを組み込んだ大気汚染予測システムの概要を示す。参考

のため、データ同化による予測修正の流れも示す。データ同化では、観測データを取り込むことでモデルの初期条件や排出量データを逐次的に更新し、予測精度の向上を行う。ガイダンスシステムは予測結果と観測データから予め作成され、予測結果に直接作用することで予測値の補正を行う。データ同化は化学輸送モデルの上流で働く一方、ガイダンスシステムはモデルの下流で作用することに大きな違いがある。

2.1 大気汚染予測システム

ガイダンスシステムの構築に必要な訓練データと検証用のテストデータは、オフラインで結合した領域気象モデル(WRF (Ver 4.1.1, *Skamarock et al.*, 2019))と領域化学輸送モデル(CMAQ (Ver 5.3.1, *U.S. EPA*, 2019))を用いて作成した。VENUSへの導入を考慮し、モデルの設定は極力 VENUS に準拠した[菅田ら, 2011]。VENUS では、東アジア全体を対象とした解像度 45 km の領域(Domain#1), 広域日本を対象とした解像度 15 km の領域(Domain#2), 日本列島を対象とした 5 km の領域(Domain#4)の3重ネスティングを採用しており、ガイダンスの構築には Domain#3 の結果を後述する観測データの格子グリッドに合わせ内挿して用いた。詳しい計算設定は *Itahashi et al.* [in revise]を参考にされたい。

2.2 大気汚染物質広域監視システム

大気汚染物質広域監視システム(AEROS, <https://soramame.env.go.jp/>)は国内の大気汚染監視を目的としたモニタリングネットワークである。本研究では AEROS で得られたオゾンの時間値を教師データとした。ただし、各観測サイトで得られた値ではなく、統計的な品質管理(QC)を行い、格子グリッド(水平解像度約 0.375 度)に変換されたデータセットを用いた。QC は、観測地点ごとのチェックを行うサイトレベル QC と各時刻のデータのチェックを行う時刻レ

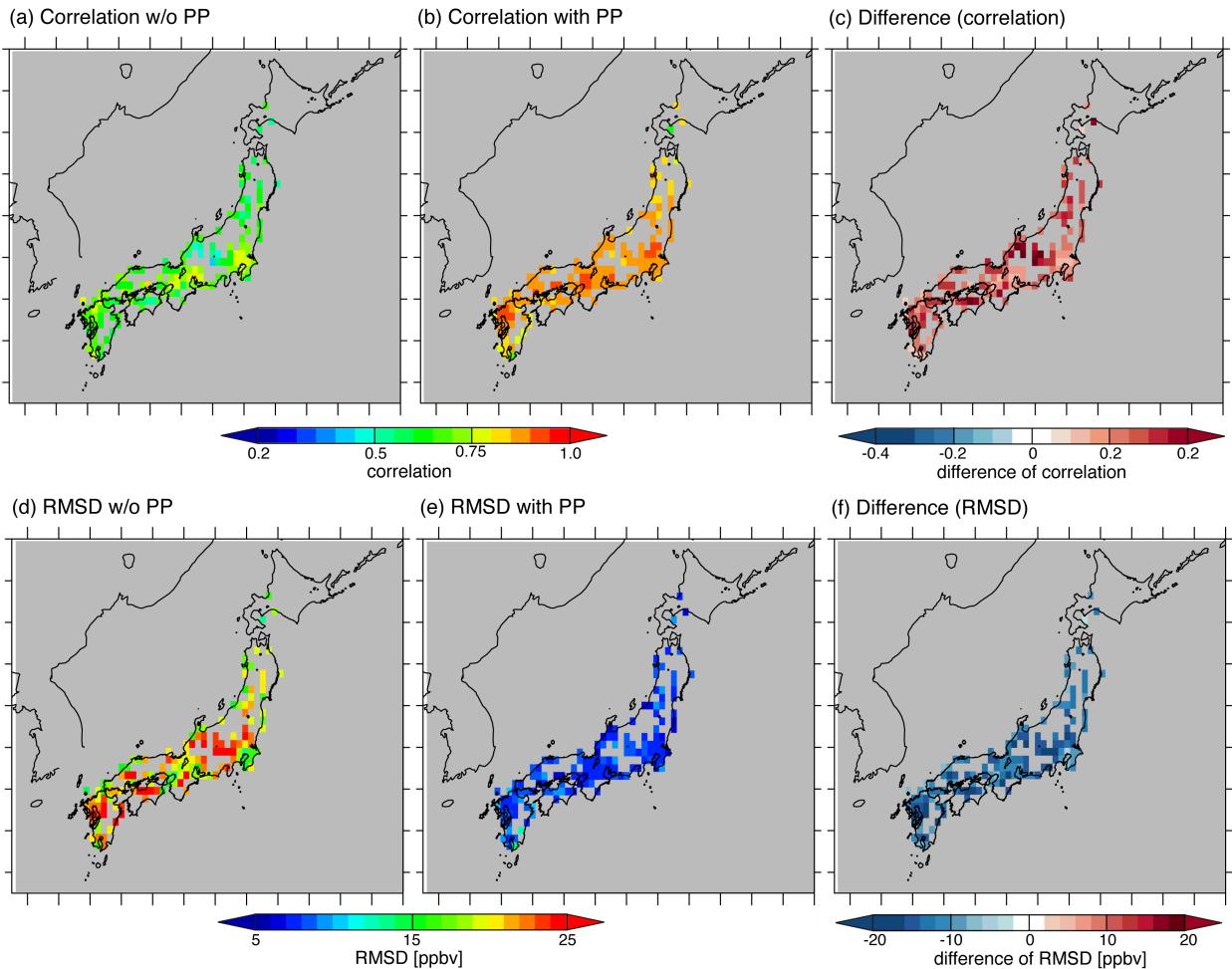


図3 ガイダンスシステム適用前後の相関係数 R と平均二乗誤差 (RMSD) の分布。(a)ガイダンスシステム適用前の R , (b)ガイダンスシステム適用後の R , (c)ガイダンスシステム適用前後の R の差。(d)ガイダンスシステム適用前の RMSD, (e)ガイダンスシステム適用前の RMSD, (f)ガイダンスシステム適用前後の RMSD の差。

ベル QC から構成されている。詳細は *Itahashi et al. [in revise]*を参考にされたい。

2.3 ガイダンスシステム

ガイダンスシステムはニューラルネットワークを用いた機械学習によって構築する。図2に構築したニューラルネットワークの概要を示す。入力値には予測されたオゾン濃度に加えて、予測された PM2.5 濃度、東西・南北方向の風速、気温、相対湿度といった気象に関する予測値を選択した。また、月および時刻の情報も入力値とした。出力値はオゾン濃度で、教師データには地上オゾン観測濃度の時間値を用いた。ガイダンスシステムは pytorch ライブラリーを基に構築し、損失関数には平均二乗誤差を、最適化アルゴ

リズムには Adam を採用した。日本全国を約 0.375 度のグリッドに分割し、前述の品質管理の実施に十分な観測地点が含まれた 144 グリッドそれぞれに対しガイダンスシステムの構築を行った。それぞれのグリッドは図3で確認できる。

入力値の違いがガイダンスシステムのパフォーマンスに与える影響を調べるために、いくつかの感度実験も行った。詳細は省くが、例えば、地表面気圧や境界層高さ (PBL) は予測精度向上にはほとんど寄与しなかった。一方、月や時刻の情報の追加はオゾン濃度予測に対してさらなる精度向上をもたらした。これは PM2.5 予測を対象としたガイダンスシステムでは見られなかった。オゾン濃度予測には日内周期変動や季節変動を正しく表現することの重要性を示

表1 ガイダンスシステム適用前後で計算された各統計量のまとめ

	平均偏差	相関係数	平均二乗誤差	一致度指数	スキルスコア	平均規格化誤差	平均規格化偏差	平均分割誤差	平均分割偏差
Mean bias [ppbv]		R	RMSD [ppbv]	IOA	SS	NME [%]	NMB [%]	MFE [%]	MFB [%]
ガイダンス適用前	16.5	0.66	20.7	0.41	0.76	53.7	51.3	51.0	49.2
ガイダンス適用後	0.6	0.87	8.1	0.93	0.92	19.2	-2.0	24.7	2.0
n = 1239400									

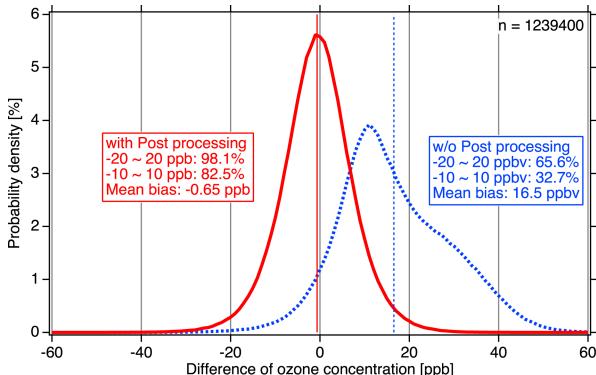


図4 モデル予測値と観測値の偏差(モデル予測オゾン濃度値から観測されたオゾン濃度値を引いたもの)の頻度分布。青線はガイダンスシステム適用前、赤線はガイダンスシステム適用後。平均偏差や-10から+10 ppbv の範囲に含まれる偏差の割合も示す。

唆する結果であるといえる。

ガイダンスシステムの構築は 2013–2016 年のデータを用いて行った。検証は 2017 年を対象に行った。検証では、構築したガイダンスシステムを用いてモデルの予測値の補正を行い、補正前と補正後の値を AEROS の観測値と比較することでガイダンスシステムの性能を定量的に評価した。

3. 検証結果

図3に各グリッドにおける相関係数(R)および平均二乗誤差(RMSD)のガイダンスシステム適用前後の値とその差の分布を示す。値が示されていない地域は、AEROS による観測が不十分であり、ガイダンスシステムの作成ができなかった地域である。ガイダンスシステム適用前は、相関係数は概ね 0.5 から 0.7 の範囲に含まれ、RMSD も 20 ppbv を超えるグリッドが多く見られた。ガイダンスシステムの補正によって、R および RMSD ともにすべてのグリッドで値が改善された。R は全体の 94.4% (136/144) で 0.8 を超えた(ガイダンス適用前はわずか 2 グリッドのみ)。RMSD は平均で 60% 減少した。

図4に予測値と観測値の差の頻度分布を示す。ガ

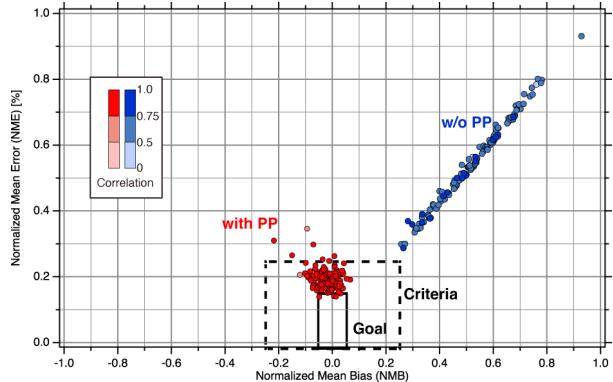


図5 NMB と NME に対するサッカーゴールプロット。青のプロットがガイダンスシステム適用前、赤のプロットがガイダンスシステム適用後を示す。相関係数 R は色のセンターで示す。Emery *et al.* [2017]で提案された許容範囲と目標範囲をそれぞれ、鎖線、実線の枠で示す。

イダンスシステムによる修正前、すなわち大気汚染予測システムによる予測は全体的にオゾン濃度を過大評価していることがわかる。観測値との差が ± 10 ppbv に収まったのは全体の 32.7% であった。ガイダンスシステムによる修正後は、予測システムに見られた過大バイアスが解消され、その分布の分散も小さくなっている。観測値との差が ± 10 ppbv に収まったのは全体の 82.5% に大幅に改善した。

全グリッド、全時間値で計算した統計量を表1にまとめた。R は 0.66 から 0.87 に大きく向上した。RMSD は大きく改善し、10 ppbv 以下となった。一致度指数(index of agreement: IOA) やスキルスコア(skill score) の値も大きく上昇し、それぞれ 0.9 を超えている。バイアスに関する指標では、50% 近くあった規格化平均偏差(normalized mean bias: NMB) や平均分割偏差(mean fractional bias: MFB) が 2% 前後まで大きく減少している。

Emery *et al.* [2017]は、化学輸送モデルを用いた既往研究のレビューを通じて、統計指標として normalized mean bias (NMB), normalized mean error (NME), 相関係数 R を用い、再現性の評価において目標とすべき範囲 (Performance Goal: NME <

15 %, $NMB < \pm 5\%$, $R > 0.75$) と, 妥当とみなせる許容範囲 (Performance Criteria : $NME < 25\%$, $NMB < \pm 15\%$, $R > 0.50$) を提案した。図 5 に, 各グリッドにおけるこれらの統計指標の分布を示す。目標範囲および許容範囲は, それぞれ実線と鎖線で示されている。プロット点がこれらの線で囲まれた範囲内にあり, かつ R が所定の条件を満たしていれば, それぞれの目標範囲または許容範囲を達成したことを意味する。まず, ガイダンスシステム適用前は, 過大バイアスを反映してすべてのグリッドが図の右側に位置している。 NME と NMB の間に明確な比例関係があるが, この分布は予測結果に過大バイアスが含まれる場合によく見られる。ガイダンスシステム適用前は, すべてのグリッドで許容範囲を達成することはできなかつた。一方, ガイダンスシステム適用後は分布が中心下方に集まり, NME , NMB ともに大きく改善していることがわかる。全体の 91.7% (132/144) が許容範囲を, 2.8% (4/144) が目標範囲を達成した。

4. おわりに

環境研究総合推進費「機械学習を用いた大気汚染予測システムへのガイダンス手法の開発と予測精度向上(5RF-2002, 2020-2021 年度)」および「機械学習によって観測データと統合された新しい大気汚染予測システムの開発と実働実験(5MF-2201, 2022-2023 年度)」では, 国立環境研究所が運用する 大 気 質 予 測 シ ス テ ム (VENUS , <https://venus.nies.go.jp/>) への導入を念頭に, ガイダンスシステム(guidance または post-processing)の開発を行った。ガイダンスシステムの構築には, ニューラルネットワークによる機械学習を選択し, 教師データとして大気汚染物質広域監視システム(AEROS)で観測されたオゾン濃度の時間値を用いた。

ガイダンスシステムの適用前, すなわちプレーンなモデルの予測結果には日本全国で共通した過大評

価が見られ, 平均偏差は 16.5 ppbv であり, NMB や MFB も 50% を超過した。RMSD はすべてのグリッドで 10 ppbv を超え, 56% (80/144) のグリッドで 20 ppbv より大きくなつた。ガイダンスシステム適用後は, 過大評価が大きく改善され, 平均偏差は 0.6 ppbv に減少し, NMB や MFB も 2% 前後まで改善した。*Emery et al. [2017]*による再現性評価では, ガイダンスシステム適用前はすべてのグリッドで許容範囲および目標範囲を達成することができなかつた。一方, ガイダンスシステム適用後は, 全体の 91.7% (132/144) が許容範囲を, 2.8% (4/144) が目標範囲を達成した。これらのガイダンスシステムによる予測再現性の向上は, どの季節および日本全国すべてのグリッドで見られ, 手法としての汎用性を示唆している。

一方で, 本研究では機械学習手法に特有の注意点も明らかになつた。第一に, オゾン予測においては, 境界層高度など濃度と物理的な関連が強いと考えられる気象要素よりも, 月や時刻といったカレンダー情報を入力変数として用いることが, ガイダンスシステム性能の向上に大きく寄与した。これは, オゾン濃度に顕著な季節変動や日内変動が存在し, それらを再現するうえで月・時刻情報が重要であるとの裏返しであるが, 同時に, 入力変数の選択がガイダンスシステムの性能を大きく左右することを示唆している。第二に, 長期トレンドを有する現象に対しては, 機械学習により構築したガイダンスシステムが, むしろ系統的なバイアスを付加してしまう場合があることが分かつた。これは, ガイダンスシステムが過去データに基づいて学習されるという性質に起因するものである。現在進行形で長期的な変化が無視できない場合には, 追加学習や逐次学習による動的なガイダンスシステムの構築が求められる。

謝辞

本研究は, 環境研究総合推進費「機械学習を用

いた大気汚染予測システムへのガイダンス手法の開発と予測精度向上(5RF-2002, 2020-2021 年度)」および、機械学習によって観測データと統合された新しい大気汚染予測システムの開発と実働実験(5MF-2201, 2022-2023 年度)」の援助により実施されました。

参考文献

Bai, L., Wang, J., Ma, X., & Lu, H. (2018), Air Pollution Forecasts: An Overview, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 15(4), 780.

Emery, C. et al. (2017), Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 67(5), 582–598.

Itahashi, S. et al. (2025), Development of a high-spatiotemporal-resolution chemical reanalysis dataset of tropospheric ozone toward an accurate risk assessment for plants over Japan, in revise.

気象庁予報部 (1991), 天気予報ガイダンスの解説, 予報技術資料, 第 41 号, 気象庁.

Menut, L., & Bessagnet, B. (2019), What Can We Expect from Data Assimilation for Air Quality Forecast? Part I: Quantification with Academic Test Cases, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 36(2), 269–279.

森野 悠, 茶谷 聰, 五藤 大輔, 板橋 秀一, 弓本 桂也, 兼 松 透江, 菅田 誠治 (2025), 大気汚染予測システム VENUS による 2024 年夏季の光化学オキシダント予測, 大気環境学会誌, 60 号, p.115–120.

Skamarock, W.C. et al. (2019), A Description of the Advanced Research WRF Version 4. NCAR Technical Note, NCAR/TN-556+STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO.

菅田 誠治, 大原 利眞, 黒川 純一, 早崎 将光 (2011), 大気汚染予測システム (VENUS) の構築と検証, 大気環境学会誌, 46 号, p.49–59.

高田伸一 (2017), ガイダンスの解説, 数値予報課報告・別冊, 第 64 号, 気象庁, 216 pp.

U.S. Environmental Protection Agency, 2019. CMAQ (Version 5.3.1). <https://zenodo.org/records/3585898>.

原稿受領日: 2025 年 11 月 21 日

掲載受理日: 2026 年 1 月 13 日

著者所属:

- 九州大学応用力学研究所
- 日本自動車研究所
- 国立環境研究所

* 責任著者:

Keiya Yumimoto <yumimoto@riam.kyushu-u.ac.jp>

機械学習モデルによる大気モデルのバイアス補正

Bias correction of chemical transport models using machine learning models

森野悠^{1*}

大気汚染物質の環境影響評価に必要な曝露データを推計する際に、地上観測や衛星観測で時空間的に不足する情報を補ううえで、化学輸送モデル(CTM)の果たす役割は大きい。CTMの計算値は観測値に対するバイアスを有するが、近年、このバイアス補正に機械学習手法が広く利用され、従来の簡易的な手法と比べて高精度での濃度場推計を可能としている。本稿では、機械学習によるCTMのバイアス補正手法を概説する。

1. はじめに

大気汚染物質の環境影響評価において、濃度の時空間分布の正確な推計が必要である。先進国の都市域ではモニタリング地点が密に配置されていることが多いため観測データの内挿でも濃度場の推計が可能である。一方でモニタリング地点がまばらな地域やモニタリングが実施されていない地域・期間においては、時空間的に連続な濃度分布データを算出可能な化学輸送モデル(CTM)の計算値などを参照する必要がある。ただ、CTMの計算結果は排出量を含む入力データや物理・化学過程の計算モジュールなどの不確実性に起因するバイアスを有する。そのため、CTMの計算結果を環境影響評価や汚染対策立案に活用するためには、バイアスを補正する必要がある。

環境影響評価の研究者がバイアス補正を実施する場合、研究の主眼は影響評価モデルの開発・精緻化であるため、簡易なバイアス補正手法が好まれる。一方、バイアス補正に機械学習モデルを用いることで、疫学研究の入力データにも利用可能な高精度の濃度場構築が可能となっている。機械学習モデルは複雑系・非線形系の問題に強く、後述の簡易手法と

比べてバイアスのみでなく平均誤差や時空間変動を補正可能という利点がある。本稿では簡易手法と機械学習モデルによるCTMのバイアス補正手法を概説した後に、筆者らによる適用事例を紹介する。

2. マッピング手法

本節では、CTMなどのデータを基に大気汚染物質の地表濃度の空間分布を推計するマッピングの手法を概観する。

2.1 入力データ

地上観測が充実している地点では、逆距離加重法や地球統計学モデルに基づくクリギング法[Matheron, 1963]などによる観測データの内挿で高精度のマッピングが可能である。逆距離加重法では推計地点から観測地点までの距離の逆数で重み付け計算し、クリギング法では距離の近い観測点のデータは大きな類似性を持つという空間相関構造を利用して、空間的に連続な濃度場を推計する。

一方で、地上観測点が不足する地域においては、空間網羅性の高い衛星観測やCTM計算で得られる時空間分布の情報を入力データ(説明変数)に利用

して、2.2 節で後述する手法により大気汚染物質の濃度場(目的変数)を推計する。例えば地表 $PM_{2.5}$ 濃度のマッピングには、極軌道衛星 Terra/Aqua に搭載された MODIS(中分解能撮像分光放射計)センサーで 2000 年頃から現在まで測定されているエアロゾル光学的厚さ(AOD)が広く利用されており、 $PM_{2.5}$ 濃度の長期トレンド推計にも活用されている[*van Donkelaar et al., 2021; Shen et al., 2024*]。また、2010 年代以降、欧州(Meteosat)、アジア(Himawari, GOCI, FengYun など)、北米(GOES, TEMPO)で静止軌道衛星のデータが利用可能となり、各地域での 1 時間分解能でのリアルタイムの $PM_{2.5}$ マッピングも可能となっている[例えば、*Zhang et al., 2022*]。衛星観測では地上観測点が不足する地域の観測データが得られる一方で、雲・積雪などに起因する欠測データが多く、加えて、地上濃度推計には鉛直分布の仮定が必要となる。また、地表オゾン(O_3)濃度のマッピングにおいては、極軌道衛星 Aqua に搭載された OMI センサーや、Sentinel-5P に搭載された TROPOMI センサーのデータである NO_2 カラム量や対流圏下層の O_3 カラム量が説明変数として利用されている[*Wang et al., 2022; Jung et al., 2024*]。

また、CTM は時空間的に連続なデータを出力する利点を持つため、 $PM_{2.5}$ や O_3 のマッピングに広く利用されている。CTM の出力がそのまま利用される場合に加えて、観測値を CTM 計算値に同化した客観解析データが説明変数として利用される。CTM は地表の $PM_{2.5}$ 濃度と鉛直積算量である AOD との間の関係式を作成する際にも活用されている。上記データに加えて、排出量データ、気象客観解析データ、土地利用データなども説明変数に利用されることが多く、目的や対象に合わせて入力データセットが選択されている。

2.2 推計手法

CTM 計算値の最も簡易的なバイアス補正手法として、過去における実測と計算値の平均濃度比を将来

予測値に乗ずる方法がある。この手法は、米国において $O_3 \cdot PM_{2.5}$ などの環境基準を達成していない地域の行政機関が環境基準達成のための行動計画を策定する際の数値モデル評価でも利用されている[速水, 2021]。具体的には相対応答係数(CTM で計算される対策前後の濃度変化割合)を観測値に乗ずることで、対策後の目標評価濃度を予測する。平均濃度比を用いた簡易手法は $PM_{2.5}$ や O_3 の健康影響評価などにも利用されており、指標値を補正可能であるが、当然その頻度分布や経時変化・空間分布のバイアスを補正することはできない。

平均濃度に加えて、観測値とモデル計算値の頻度分布を一致させるバイアス補正手法として、順序統計量を用いた分位マッピングが挙げられる。この手法も気候変動の影響評価や大気化学分野で広く活用されている。この手法では、累積頻度別に、濃度比(Eq.(1)) や濃度差(Eq.(2)) を指標に補正計算を実施する[渡辺, 2020]。

$$R = S' F_O^{-1}(F_{S'}(S')) / F_S^{-1}(F_{S'}(S')) \quad (1)$$

$$R = S' + F_O^{-1}(F_{S'}(S')) - F_S^{-1}(F_{S'}(S')) \quad (2)$$

ここで、 R はバイアス補正後の計算値、 S' は CTM 計算値(予測データ)、 S は CTM 計算値(訓練データ)、 F_O は実測値 O の累積頻度分布、 F_S は S の累積頻度分布、 F^{-1} は逆関数を表す。

これら従来手法と比べて、機械学習モデルでは 2.1 に示した入力データ(説明変数)から自動で特徴を抽出して、高精度で濃度推計が可能という利点を持つ。大気汚染物質のマッピングの目的では、アンサンブル学習法(ランダムフォレスト: RF, 勾配ブースティング決定木: GBDT など)やニューラルネットワーク(NN)が選択されることが多い。RF は複数の決定木(木構造による予測規則)を多数集約して予測を行うアンサンブル学習法である。各決定木は、訓練データの復元抽出によるブートストラップサンプルと、分岐時の説明変数のランダム選択を組み合わせて独立に構築される。この二重のランダム性により決定木間の相

関が低下するため、過学習に強いという特徴を有する。GBDT は弱学習器を逐次的に積み重ねて誤差を段階的に修正するアンサンブル学習法であり、損失関数の勾配情報を利用してモデルを効率的に改善する点に特徴がある。NN は入力層・隠れ層・出力層から構成され、各層で線形変換と非線形活性化（線形出力に非線形性を付与する関数処理）を繰り返すことで複雑な非線形関係を学習する。濃度マッピングには局所領域の特徴を抽出する畳み込み演算を用い、空間構造の学習に優れた畳み込みニューラルネットワーク(CNN)が選択されることが多い。手法ごとにハイパーパラメータへの感度、空間構造を含む特徴抽出能力、必要なデータ量や計算速度が大きく異なるため、目的やデータ特性に応じて適切な手法を選択する必要がある。これらの機械学習モデルは従来の線形回帰モデルと比べて $PM_{2.5}$ や O_3 の濃度場を高精度で推計可能であることが様々な先行研究で示されている[例えば, *Dong et al.*, 2020]。

2.3 検証手法

CTM バイアス補正や濃度マッピングなどに機械学習モデルを導入する目的は、既知データから学習したモデルを用いて未知データを適切に予測することである。そのためには、モデルが訓練データに過度に適合する過学習や、十分に学習できていない未学習を防ぎ、汎化性能を正しく評価する検証が不可欠である。そこで、利用可能なデータを訓練データとテストデータに分割し、訓練データを用いてモデルを学習させ、テストデータでモデルの汎化性能を評価する。安定した性能評価のため、データを複数のサブセットに分割して学習と評価を繰り返す交差検証(CV)が主に利用されている。CV の代表的な方法として、データを k 等分して学習と検証を繰り返す k 分割交差検証や 1 サンプルのみを検証用に残して学習・検証を繰り返す leave-one-out 交差検証などがある。また CV に加えて、モデル構築に利用しない独立データによる外部検証もモデルの拡張性を評価する

うえで有効である。

なお、大気汚染物質濃度は地理的に近接した観測点間で高い相関を示すという空間的自己相関を有する。この性質により、通常のランダム抽出に基づく CV では、訓練データとテストデータが空間的に近接するためモデル精度を過大評価する傾向が生ずる。空間自己相関の影響を適切に排除するためにはテスト地点の周囲に一定のバッファ距離を設定し、その範囲に含まれるデータを訓練データから除外した上で交差検証を実施するなどの工夫が必要である [*Shen et al.*, 2024]。

モデル検証の評価指標には、平方平均二乗誤差(RMSE)、標準化平均バイアス(NMB)、ピアソン相関係数(PCC)などが利用される(それぞれの計算式は図 1 の標題参照)。

3. 適用事例

3.1 オゾンのバイアス補正

O_3 によるヒト健康被害や農作物収量低減などを定量的に評価するためには O_3 ばく露量と用量反応関数(O_3 ばく露量とその環境影響の関係式)の情報が必要である。 O_3 のばく露量推計には CTM のデータが利用されることが多いが、CTM は北半球陸域での O_3 濃度の過大バイアスなどの問題を抱えているため [*Young et al.*, 2018]、バイアス補正が必要である。本節では、 O_3 の環境影響評価を目的として、筆者らが実施したバイアス補正の簡易手法(手法 1: 平均濃度比、手法 2: 分位マッピング)と機械学習モデル(手法 3: RF)の比較結果を紹介する[木村ら, 2023]。

バイアス補正はモデル構築・モデル検証・モデル計算の順に進めた。モデル構築・検証では、測定局を重複無しでランダムに分割する 5 分割交差検証を実施した。全体の 80%の訓練データでモデルを構築し、残り 20%のテストデータでバイアス補正モデルの計算精度を評価している。その後、CTM などのグリッドデータを説明変数として、構築済みのモデルを計算することで、バイアス補正された O_3 濃度場(グリッド

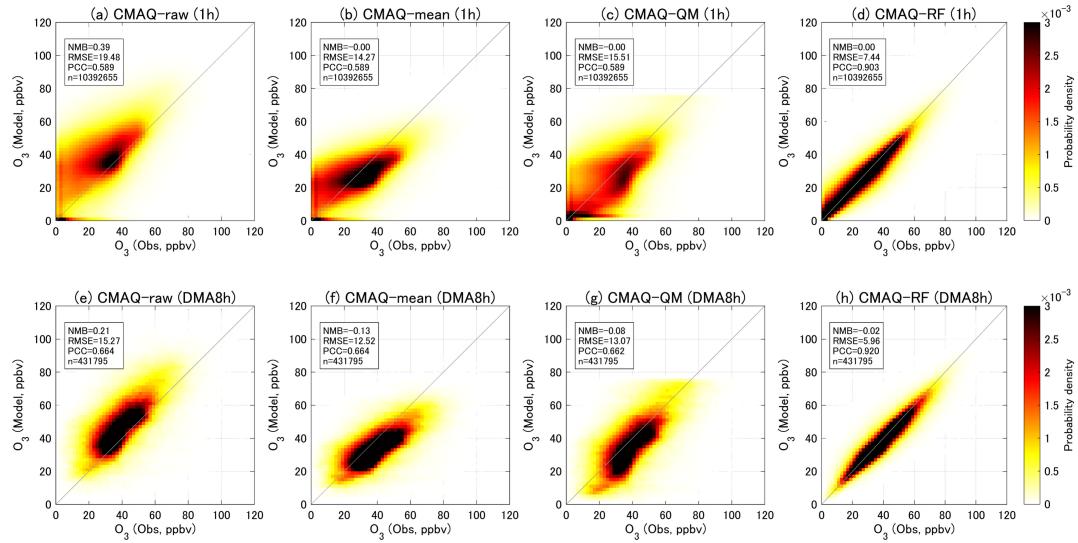


図 1 O_3 濃度の 1 時間値(a-d)・日最高8時間値(e-h)の実測値・モデル計算値の2次元ヒストグラム。CTM の出力(a,e), 平均濃度比補正(b,f), 分位マッピング補正(c,g), ランダムフォレスト(d,h)。スコアは NMB(標準化平均バイアス: $\sum(M_i - O_i) / \sum O_i$), RMSE (二乗平均平方根誤差: $(\sqrt{\sum(M_i - O_i)^2 / n})$), PCC (ピアソン相関係数: $\sum[(M_i - \bar{M}_i)(O_i - \bar{O}_i)] / \sqrt{\sum(M_i - \bar{M}_i)^2 \sum(O_i - \bar{O}_i)^2}$), M_i と O_i はそれぞれ計算値と実測値, 乗船は平均値, n はサンプル数を指す。

データ)を推計した。

5分割交差検証による再現性検証結果を図 1 に示した。バイアス補正前の CTM は O_3 濃度(1 時間値)を過大評価し($NMB = 39\%$), PCC は 0.59 だった(図 1(a))。簡易的な手法 1・2 は, 1 時間値のバイアスをゼロに改善するものの, PCC はバイアス補正前からほとんど改善しない。それに対して, 機械学習モデルは 1 時間値のバイアスをゼロにするとともに, PCC (= 0.90), RMSE (= 7.4 ppb)ともバイアス補正前と比べて顕著に改善していた(図 1(a)-(d))。このように, 簡易的手法でも平均的なバイアス補正是可能だが, 時空間分布のバイアスを適切に補正するためには機械学習モデルが有効であることが分かる。

続いて, O_3 による健康影響評価指標(日最高 1 時間値: DMA8h), および農作物収量への影響評価指標(閾値である 40 ppb を超える 1 時間値の閾値超過分を積算した O_3 ばく露量: AOT40)のバイアス補正前後の推計精度を評価した。その結果, 手法 1 では高濃度時の補正が不十分であるために, DMA8h のバイアスは 1 時間値よりも大きくなっていた($NMB = -13\%$)。手法 2 ではバイアスは低減するが PCC は改善されず, 手法 3 が RMSE(6.0 ppb), PCC(0.92)とも最も良好なスコアを示した。

AOT40 は閾値を有するため, 1 時間値や DMA8h と比べてモデルごとの精度のバラつきが顕著である(図 2)。バイアス補正前の CTM は平均的に AOT40 実

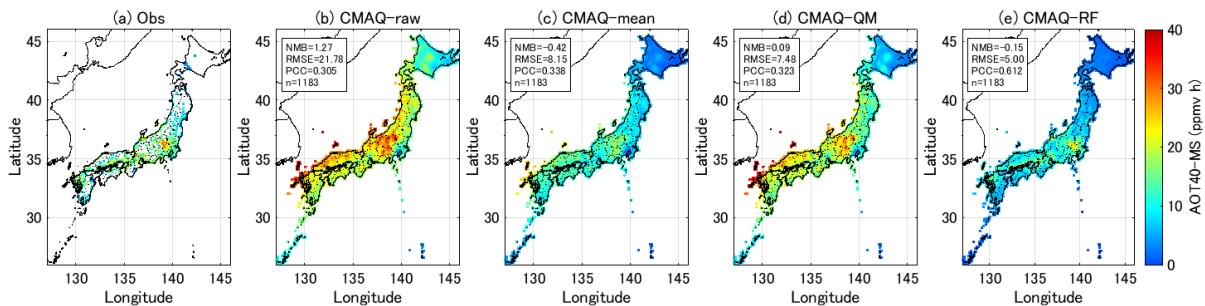


図 2 AOT40(閾値である 40 ppb を超える 1 時間値の閾値超過分を積算した O_3 ばく露量)の実測値(a), 及びモデル計算値(b-e)。

測値を 2.26 倍過大評価しており、水平分布も適切に再現していない (PCC = 0.31)。手法 1 で推計した AOT40 は NMB = -42% と顕著に過小評価していた一方で、RMSE と PCC のスコアは手法 3 が最も良好であった。手法 3 のみが、AOT40 が北関東で高く東北・北海道・南九州で低い地域分布を再現していた。このように、機械学習モデルを利用することで O_3 による健康影響・農作物影響の指標値を時空間的に高精度でバイアス補正できることが示された。

3.2 PM_{2.5} のバイアス補正

衛星観測データや CTM を利用した PM_{2.5} のマッピングは全球、および地域ごとに多数実施されて、環境影響評価や疫学研究に活用されてきた。このマッピングは、地上観測が不足する地域における濃度場推計に加えて、地上観測が実施されていない期間の濃度場構築という目的においても有用である。例えば、中国では 2013 年以前の PM_{2.5} 観測データが少ないため、それ以前のデータを補うために機械学習モデルを活用したマッピングが多数実施されている [例えば、*Xiao et al., 2018*]。日本においても PM_{2.5} のモニタリング開始は 2010 年であり、それ以前の PM_{2.5} 濃度の観測データは非常に限られているため、PM_{2.5} への長期曝露と健康影響の関連性を評価した疫学解析が限られている。そこで筆者らは、PM_{2.5} のモニタリングが開始される以前の期間を含む PM_{2.5} の曝露データを構築するために、機械学習モデルを構築・計算した [森野ら, 2025]。地球統計学モデル (通常クリギング法) や全球を対象とした機械学習モデル結果 (SatPM2.5, *Shen et al., 2024*) との比較結果と合わせて紹介する。

通常クリギング法では地上観測データを内挿することで 2010 年–2020 年における PM_{2.5} 濃度場を推計した。一方、機械学習モデルでは 2012 年–2020 年を訓練・検証期間とし、構築したモデルを基に、2000 年–2020 年の計算を実施した。いずれの手法でも、日本全国における 15 km メッシュの PM_{2.5} の日平均値

を推計した。機械学習モデルでは lightGBM を選択し、ハイパーパラメータの最適化には optuna パッケージを利用した。説明変数に気象モデル (WRF v4.1.5) と化学輸送モデル (CMAQ v5.3.2) の計算結果 [Chatani et al., 2023]、および大気常時監視局で測定された 4 成分 (SPM, Ox, NO₂, SO₂) の通常クリギング結果を利用した。利用可能な PM_{2.5} の地上モニタリング地点数は 2008 年以前に 5–8 地点であったが、徐々に増加して、2017 年以降は 800 地点以上となった。

lightGBM で推計された PM_{2.5} 日平均値の CV スコアは、2012 年以降は通常クリギングよりもわずかに低いものの、バイアスは ±3% 以内であった。利用した観測地点数が 105 地点の 2011 年には通常クリギングと同程度であり、同 34 地点だった 2010 年では通常クリギングよりも高スコアであった。また、観測データが不十分な 2010 年以前における独立データとの検証においても、PM_{2.5} 濃度は概ね ±6% 以内のバ

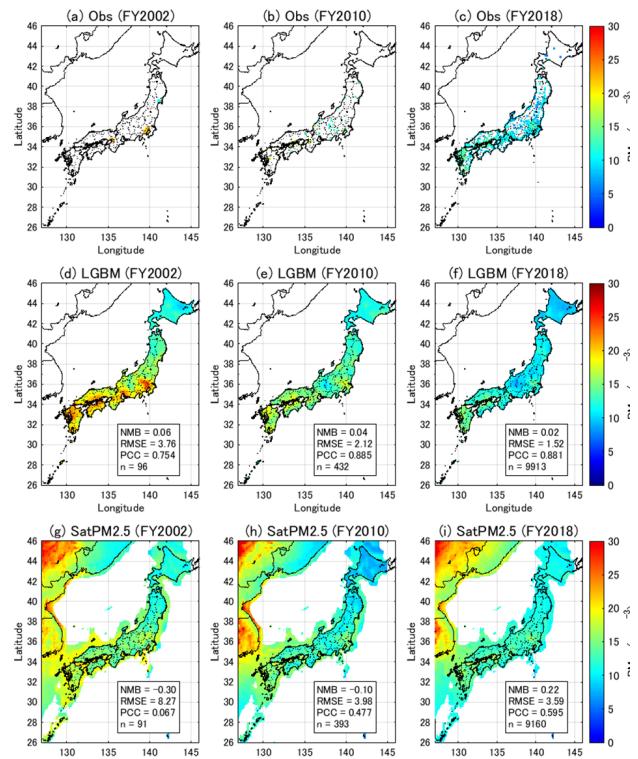


図 3 2002 年度、2010 年度、2018 年度における PM_{2.5} 平均濃度の実測値 (a–c) とモデル計算値 (d–i)。CV スコアは月平均値を基に計算

イアスで再現された(図 3 (d)-(f))。一方, 上述の SatPM2.5 では, 2000 年代前半に 20–30% 程度の過小評価, 2010 年代後半には 20–40% の過大評価と経年的なバイアスが発生していた(図 3(g)-(i))。推計・検証条件が異なるため厳密な比較はできないが, 大気汚染物質濃度は自然現象のみでなく地域ごとの社会・経済活動や汚染対策などの政策の影響を受けるため, 地域ごとの状況を考慮したマッピングが必要であることを示唆している。

4. 結語

近年, 大気化学分野においても物理モデル(CTM や気象モデルなど)に加えて, データ駆動型モデル(機械学習モデルなど)の利用が急速に進んでいる。本稿で紹介したモデルは比較的単純な機械学習モデルであるが, 全球大気質予報, 時系列予測, ダウンスケーリング[Wong et al., 2024; Sekiyama et al., 2023]など様々な分野において, データ駆動型モデル(主に深層学習モデル)は従来の物理モデルに匹敵する精度の計算を, 压倒的高速で実現可能としてきた。従来よりビッグデータを扱うことの多かった大気化学研究分野はデータ駆動型モデルとの相性は良いため, 物理モデルとデータ駆動型モデルを相乗的に活用することで, 今後のさらなる研究の発展が期待される。

謝辞

機械学習計算についてご助言いただいた荒木真氏, CTM 計算結果などをご提供いただいた嶋寺光氏, 茶谷聰氏, モデル計算を実施した木村知里氏, 山本研氏に謝意を表する。本研究の一部は JSPS 科研費(23K11411, 24H00763)により実施した。

参考文献

Chatani, S., Kitayama, K., & Itahashi, S. (2023), Effectiveness of emission controls implemented since 2000 on ambient ozone concentrations in multiple timescales in Japan: An

emission inventory development and simulation study, *Sci. Tot. Environ.*, 894, 165058.

Dong, L., Li, S., Yang, J., Shi, W., & Zhang, L. (2020), Investigating the performance of satellite-based models in estimating the surface PM_{2.5} over China, *Chemosphere*, 256, 127051.

速水洋 (2021), 米国環境保護庁 モデリング手引書 「Modeling Guidance for Demonstrating Air Quality Goals for Ozone, PM_{2.5}, and Regional Haze」抄訳 オゾンと PM_{2.5}を中心, 大気環境学会誌, 56 (3), 57-67.

Jung, C. R. et al. (2024), A machine learning model for estimating daily maximum 8-hour average ozone concentrations using OMI and MODIS products, *Atmos. Environ.*, 331, 120587

木村 知里ら (2023), 大気オゾンの環境影響評価に向けたバイアス補正手法の検討, 大気環境学会誌, 58(3), 74-85.

Matheron, G. (1963), Principles of geostatistics, *Econ. Geol.*, 58, 1246-1266.

森野悠, 山本研, 茶谷聰, 嶋寺光 (2025), 機械学習モデルによる PM_{2.5} 長期曝露データ構築, 第 30 回大気化学討論会講演要旨集, P46.

Sekiyama, T. T., Hayashi, S., Kaneko, R., & Fukui, K. (2023), Surrogate Downscaling of Mesoscale Wind Fields Using Ensemble Super-Resolution Convolutional Neural Networks, *Artificial Intelligence for the Earth Systems*, 2(3), e230007.

Shen, S. et al. (2024), Enhancing Global Estimation of Fine Particulate Matter Concentrations by Including Geophysical a Priori Information in Deep Learning, *ACS ES&TAir*, 1(5), 332–345.

van Donkelaar, A. et al. (2021), Monthly Global Estimates of Fine Particulate Matter and Their Uncertainty, *Environ. Sci. Technol.*, 55, 15287–15300.

Wang, W., Liu, X., Bi, J., & Liu, Y. (2022), A machine learning model to estimate ground-level ozone concentrations in California using TROPOMI data and high-resolution

meteorology, *Environ. Int.*, 158, 106917.

渡部哲史 (2020), 気候モデル出力値のバイアス補正 (1) 特徴に基づく手法の整理, 水文・水資源学会誌, 33(6), 243-262.

Wong, C. (2024), Superfast Microsoft AI is first to predict air pollution for the whole world, *Nature*, doi:10.1038/d41586-024-01677-2.

Xiao, Q., Chang, H. H., Geng, G., & Liu, Y. (2018), An ensemble machine-learning model to predict historical PM_{2.5} concentrations in China from satellite data, *Environ. Sci. Technol.*, 52(22), 13260–13269.

Young, P. J. et al. (2018), Tropospheric ozone assessment report: Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends,

Elementa. Sci. Anthrop., 6, 10.

Zhang, H. et al. (2022), Nowcasting Applications of Geostationary Satellite Hourly Surface PM_{2.5} Data, *Weather and Forecasting*, 37(12), 2313–2329.

原稿受領日: 2025 年 12 月 6 日
掲載受理日: 2026 年 1 月 13 日

著者所属

1. 国立環境研究所 地域環境保全領域

* 責任著者:

Yu Morino <morino.yu@nies.go.jp>

反応速度論に基づく大気化学反応機構の解明

Kinetic study of atmospheric chemical reactions

秦 寛夫^{1*}

大気現象の根本には、原子レベルの結合の変化を伴う「化学」が介在している。化学変化が実現象として進行するか否かを議論するためには、反応速度論による検討が不可欠である。本稿では、筆者が大気化学に関わる反応速度論研究の一端として進めてきたテーマである、化学輸送モデルを用いたクリーギー中間体(CI)の大気環境影響評価や、反応実験によるCIの不均一反応場におけるモデリング、および理論計算による反応速度定数算出に関する研究について、既往研究のレビューと共に全体像を示す。合わせて、筆者の具体的な業績として、これまで明らかにされていなかった振動励起状態CIと安定化CIのエアロゾル生成への寄与や、有機過酸化ラジカルと二酸化硫黄の反応速度定数が低いことの由来、不均一反応場におけるCIの化学に関する大気環境影響評価に関する研究について概説する。

1. はじめに

この度は第 21 回日本大気化学会奨励賞という大変名誉ある賞を授与して頂き誠にありがとうございます。発展途上な側面も多分にあり、今後もっとがんばれという激励とも受け取っております。私が大気化学の分野に足を踏み入れたのは、本稿執筆時点から 10 年前の 2015 年に遡ります。当時勤務していた東京都から東京都環境科学研究所に出向したことがきっかけで、始めは自動車に由来する揮発性有機化合物(VOC)等の大気汚染物質排出量の評価や排出量推計モデルの構築、化学輸送モデルによる大気環境影響に関する研究を行っていました。2021 年に現所属である産業技術総合研究所に移ってからは、大気化学と物理化学の橋渡しとなる研究を進めており、特に対流圏の大気化学や大気汚染の観点からヒトや自然生態系の保全に資する研究成果となるよう精進しているところです。

現在、大きく分けて二つの研究テーマに取り組んでいます。一つ目のテーマは、気候変動や都市気候

変化、次世代技術導入に伴う対流圏のオゾンや微小粒子状物質濃度変化に関する評価研究であり、主に行政の基礎的知見となりうる成果となるよう取り組んでいます。二つ目のテーマは、クリーギー中間体に関する反応速度論や化学輸送モデリング、その大気中エアロゾル生成への寄与の評価に関する基礎的な研究です。一つ目のテーマは別学会誌で今後総説を執筆する予定であることから、本稿では二つ目のテーマであるクリーギー中間体の化学や関連する反応速度論に関する研究について、先行研究のレビューと自身で進めてきた成果について概説します。

2. クリーギー中間体の大気化学の背景

クリーギー中間体(Criegee intermediate; CI)は、C=C 二重結合を有するオレフィンのオゾン(O_3)による酸化反応で生成するカルボニル中間体の総称である。その化学的な歴史は 1900 年代初頭まで遡り、1949 年に Rudolf Criegee により 9, 10-Octalin の O_3 酸化反応機構が提唱されて、CI の存在が予言された

[Criegee and Wenner, 1949; Hassan et al., 2021]。反応機構の概略は図 1 に示した通りであり、オレフィンの二重結合に O_3 が付加して一次オゾニド(primary ozonide; POZ)を形成し、その後に振動励起状態の CI(vibrationally-excited CI; vCI)とカルボニル化合物(ケトンまたはアルデヒド)に分解する。さらに vCI は窒素等の不活性な第三体ガスと衝突して安定化 CI(stabilized CI; sCI)となる。

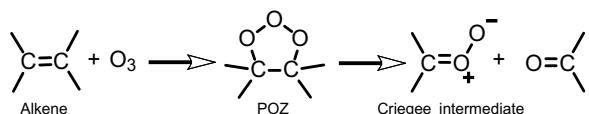


図 1 アルケンの O_3 酸化反応によるクリーギー中間体の生成メカニズム (Hata et al., 2025a (CC-BY-NC 3.0))。

大気化学分野においても CI の大気素反応への寄与は予想されていたが、その反応性の高さ故に直接的な大気観測や反応速度定数の算出には至らなかった。2008 年にアメリカの研究グループが、塩素ラジカルによるジメチルスルホキシドの水素引抜反応と、その後の酸素分子(O_2)との衝突で生成する最も単純な CI、ホルムアルデヒドオキシド(CH_2OO)を、光イオン化質量分析法により定量的に検出することに成功した[Taatjes et al., 2008]。さらに、2012 年にアメリカのグループが世界で初めてジヨードメタンの光分解と後続の O_2 付加反応を誘起することで、 CH_2OO の気相合成と光イオン化質量分析法による CI の検出、 CH_2OO と一酸化窒素(NO), 二酸化窒素(NO_2), 二酸化硫黄(SO_2), 水分子との反応速度定数を算出することに成功した[Welz et al., 2012]。それ以降は類似の気相合成手法を用いた上で、CI の検出に近赤外レーザー吸収分光法を用いた計測手法の確立が行われ[Su et al., 2013]、より分子量が大きく、幾何異性体を有する CI にも適用されたと同時に[Taatjes et al., 2013]、上述の NO, NO_2 , SO_2 , 水に加え、その他種々の大気中化学物質との反応速度定数やオリゴマー化を含む反応動態の解明が実験的、理論的手法で行われている[Sakamoto et al., 2013; Qiu & Tonokura, 2019; Chhantyal-Pun et al., 2020; Caravan

et al., 2024]。特に CI と SO_2 やギ酸・酢酸等の有機酸との反応速度定数は $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ s}^{-1}$ と衝突限界に近いことから、その後の化学輸送モデル(CTM)による CI の大気環境影響の試算に関する研究において、大気化学的なインパクトの高さが示されてきた[Khan et al., 2018; Caravan et al., 2020; Caravan et al., 2024]。大気圧下では大気中化学物質との二体反応のみならず、不活性ガスとの衝突エネルギー移動と非断熱的結合解離による CI 自身の分子内異性化反応で OH ラジカルを生成する反応機構も存在し、CI の大気消失過程の主要因とされている[Kidwell et al., 2016; Vereecken et al., 2017; Lester & Klippenstein, 2018]。以上より、気相中 CI の反応速度論に関する研究課題は無数にあり、反応速度論研究者や大気化学者を中心に関連研究や観測手法の改良がなされながらも、今なお魅力的なトピックとして成長を続けている。

他方、アルケンの O_3 酸化反応は元来、有機化学分野、特に薬剤や化粧品の生成過程で議論されることが多く、大気化学で議論され始めたのは 1970 年以降であった[Hassan et al., 2021]。有機合成等の液相(バルク)反応では生成した CI が、同じくアルケンの O_3 酸化反応で生成したカルボニル化合物と再結合し、二次オゾニド(secondary ozonide; SOZ)を生成する後続反応が進行する。大気中の微小粒子表面や雲内における、気液界面やバルク内においては有機化学系と同様に SOZ が生成することが知られており、さらに分解してカルボン酸となり、バルクの酸性度を上昇させる[Wang et al., 2023]。また、気液界面やバルクでは溶媒和効果や気液界面における不完全な水和に起因する分子間の水素移動反応が生じることに加え、バルクの拡散律速性など反応以外の要因も絡み合う複雑な系を形成し、気相とは異なる速度論的性質を有する[江波, 2024]。気液界面やバルクにおける CI の化学は、質量分析法を用いた生成物解析や分子動力学計算を用いた気液界面反応のモデリングにより、CI と水やカルボン酸が反応することで有機過酸化

物の生成反応が生じうこと、気液界面における反応の寄与が高いことが明らかにされている[Zhu *et al.*, 2016; Enami, 2017; Zhong *et al.*, 2017; Qiu *et al.*, 2018]。さらに、気液界面/バルク内反応をよりマクロな視点から捉える、所謂反応拡散方程式、またはその方程式系の拡散項の二階偏微分の線形近似に基づく多相反応モデルが提唱されており、CI の化学を含む不均一反応の理論的な解明が進められている[Smith *et al.*, 2003; Shiraiwa *et al.*, 2013; Gallimore *et al.*, 2017; Berkemeier *et al.*, 2021]。

筆者が関係するグループにおいても、CI の化学に関して実験と理論計算、CTM による研究を進めてきたため、すでに論文化されている内容を中心に概要を記す。

3. 気相系の反応速度論

3.1 気相系クリーギー中間体の化学輸送モデリング

CTM を用いた CI によるエアロゾル生成に関する大気環境影響評価研究は 2010 年以降、国内外の研究者により領域・全球規模で様々な試行がなされているが、そのエアロゾル、特に硫酸エアロゾル ($\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$) 生成への寄与率の推計値は文献により大きく異なり、1~20 % の幅がある[Percival *et al.*, 2013; Sarwar *et al.*, 2014; Vereecken *et al.*, 2017; Khan *et al.*, 2018; Newland *et al.*, 2018]。計算対象とする地域の違いや用いるモデルの違いなど、幅があることには様々な要因が考えられるが、組み込む反応を如何に精緻にするかということが一つの重要な因子となる。特に初期の研究では CI の单分子異性化反応が組み込まれていなかったことや、水の二量体と CI の反応速度定数が過小評価であったことから、CI 濃度の過大評価があつたと推察される。また、多くの既往研究では sCI による NO_2 や SO_2 等の酸化反応を考えているが、上述のように CI 生成直後の vCI は即座に单分子解離し、OH ラジカルを生成する。この OH ラジカルが NO_2 や SO_2 等を酸化することでもエアロゾル生成に寄与するが、この vCI 経由のエアロゾル生成への寄与を

定量的に示した事例は無かった。Hata *et al.* [2025a] では、2023 年頃までに既往研究の実験や理論計算で得られている、sCI と NO や NO_2 , SO_2 , 有機酸との二次反応速度定数や sCI の单分子解離反応速度定数、水との反応速度定数をレビューして全球 CTM に組み込み、さらに水の一量体と二量体の平衡定数を考慮して水と sCI の反応速度定数を精緻化するなどの工夫をし、CI のエアロゾル生成への影響を評価した。さらに、vCI から sCI に失活する割合を既往研究から仮定し [Saunders *et al.*, 2003]、定量的に明らかになつていない vCI の单分子解離反応経由の OH ラジカルによるエアロゾル生成への寄与を、感度解析で評価した。

CI が $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ の生成に与える影響(寄与率)を図 2 に示す。年間平均の寄与としては最大でも 0.5 % 程度であり、これまでに主張してきた寄与率(=最大で 20%程度)と比較すると低い寄与であることが示された。また、アマゾン熱帯雨林やオーストラリアの熱帯雨林地域等の BVOC 排出量の多い地域で、CI の $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ 生成への寄与が大きいことがわかる。ちなみにオーストラリアの中央以南でも CI の寄与が大きいが、こちらは砂漠地帯に生育しているユーカリに由来する[Guenther *et al.*, 2006; Winters *et al.*, 2009]。

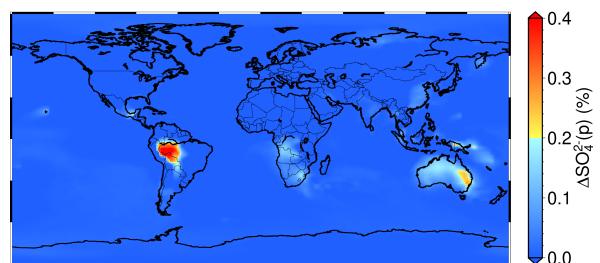


図 2 クリーギー中間体の硫酸エアロゾル生成 ($\Delta\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$) への年平均寄与 (Hata *et al.*, 2025a (CC-BY-NC 3.0))。

中国 (CHI: 北京), インド (IND: デリー), 南アフリカ共和国 (ZAF: ケープタウン), オーストラリア (AUS: シドニー郊外), およびボリビア (BOL: アマゾン熱帯雨林) の 5 地域における、sCI と vCI の $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ 生成への相対感度の試算の結果を図 3 に示す。CHI や IND, ZAF は都市域に対応するが、sCI と比較し、vCI

に由来する OH ラジカルと SO_2 の反応が $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ 生成に支配的であった。一方で、遠隔地に対応する AUS と BOL では sCI と vCI の寄与が同程度であった。都市域では NO_2 や HNO_3 等の sCI のスキャベンジャーが多く、 SO_2 との反応が抑制されることが、都市域で sCI の $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ 生成への相対感度が低い理由と考えられる。先行研究では、sCI の反応速度に関する実験データが多く算出されてきているが、オレフィン化合物の O_3 酸化反応という視点では、sCI の化学は主に遠隔地域で特に重要であることを示した結果である。

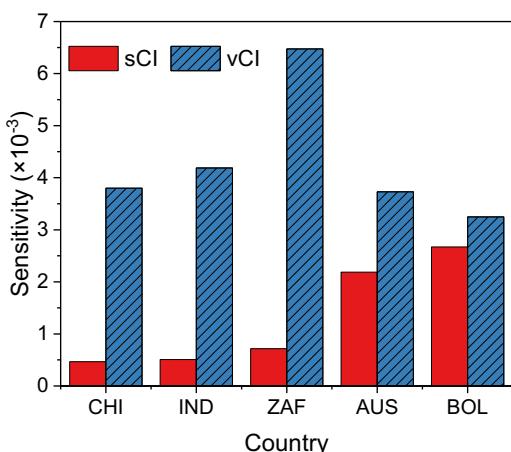


図 3 安定化クリーギー中間体(sCI)と振動励起クリーギー中間体(vCI)の硫酸エアロゾル生成($\Delta\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$)への感度 (Hata et al., 2025a (CC-BY-NC 3.0))。

上述のように、本研究の試算では、CI の寄与は、年間平均で最大でも 0.5% という結果であり、よってそもそも CI の化学は大気環境にほとんど影響しないのではないかという疑問が生じる。本試算は全球 CTM で実施しており、その格子解像度は $2^\circ \times 2.5^\circ$ であった。CI の化学反応速度は CI や反応体の濃度に比例し、かつ Arrhenius 式から気温に対しては指数関数的に比例する。粗な格子解像度の試算では、一つ一つの格子内の物質濃度や気象場を平均化して取り扱う。よって、たとえば局所的に VOC や O_3 , SO_2 等の前駆物質濃度や気温が高い格子があると、本来は CI によるエアロゾル生成への寄与が高くなるべき地

点においても、その現象を再現できない可能性がある。Hata et al. [2023] と Nakamura et al. [2023] では、同様の化学反応メカニズムを用いて、アジア域(格子解像度 $45 \text{ km} \times 45 \text{ km}$)や日本の関東域(格子解像度 $5 \text{ km} \times 5 \text{ km}$)で CI の寄与を試算した。BVOC の排出量が少ない関東では、CI の $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ 生成に対する寄与はほぼゼロであった一方、特に東南アジア域においてイソプレンに由来する CI が最大で 3% 弱、エアロゾル生成に寄与している可能性が示唆された。

近年は CI とアミン水和物やフッ素化オレフィンとの反応速度定数が高いことも報告されており [Chhantyal-Pun et al., 2019; Watson & Beames, 2023]、CI によるエアロゾル生成や他大気汚染物質の消失過程への寄与を、CTM を用いてより精緻に見積もっていく必要がある。

3.2 有機過酸化ラジカルと SO_2 の反応

有機過酸化ラジカル(RO_2)は中程度の酸化剤として知られ、特に NO と反応して NO_2 の再生成による HO_x サイクルの促進がよく知られている。CI の大気化学研究に取り掛かると同時に、一つの疑問が出た。CI と SO_2 の反応速度定数は $\sim 10^{11} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ s}^{-1}$ と大きいのに、なぜ RO_2 と SO_2 の反応速度定数には着目されていないのかということである。文献調査をしたところ、理論計算で HO_2 やメチルペルオキシラジカル、エチルペルオキシラジカル等と SO_2 の活性化エネルギーを算出している先行研究があり、反応の活性化エネルギーは高く、反応はほぼ進行しないことが示唆されていた [Kurtén et al., 2011]。ただ、具体的な反応速度定数に関する記述はなく、よって反応速度定数を見積もることや、本当に大気環境影響が無いのかを検証することは、基礎的知見という意味での意義があるのではと考えた。そこで、Hata & Tonokura [2024] では、全球 VOC 排出量の 60% 以上を占めるとされるイソプレンの、OH ラジカルによる酸化反応経由で生成する RO_2 , isoprene hydroxy hydroperoxyl radical (ISOPOO) を対象とし、 SO_2 との

反応速度定数を理論計算で算出した。

反応速度定数は, Eyring の式に基づく古典的遷移状態理論(CTST)と, 一部, 单分子解離反応の圧力依存性に関しては Rice-Ramsperger-Kassel-Marcus(RRKM)理論と, 窒素等の雰囲気ガスとの衝突に伴う振動エネルギー移動方程式(Master equation; ME)を組み合わせた, RRKM/ME 法により算出した[Gilbert & Smith, 1990]。また, CTST や RRKM/ME 計算で必要となる, 反応に関わる分子の構造情報(=分子座標)とエネルギー情報(=分子振動エネルギー, 零点エネルギー, 高精度一点 0 K エネルギー)を量子化学計算で算出した。ISOPOO には 6 種の構造異性体が存在するが, 本稿では例として 1,2-ISOPOO と SO_2 の反応の結果を述べる。

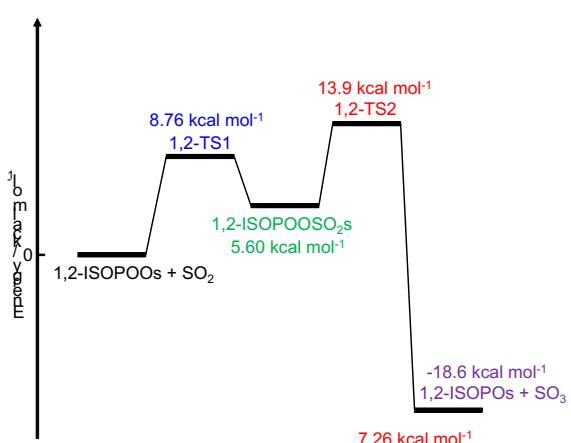


図 4 1,2-ISOPOO と SO_2 の反応エネルギー図。反応は遷移状態 1,2-TS1 を経由して中間錯合体 1,2-ISOPOO₂S を形成後, 遷移状態 1,2-TS2 を経由して SO_3 を生成(Hata & Tononura, 2024 (CC-BY-3.0))。

量子化学計算で得られた 1,2-ISOPOO と SO_2 の反応エネルギー図を図 4 に示す。1,2-ISOPOO と SO_2 の反応は遷移状態 1,2-TS1 を経由し, 反応中間体である 1,2-ISOPOO₂S を生成する。その後, 1,2-ISOPOO₂S の单分子解離反応でアルコキシラジカル ISOPO と SO_3 に分解することが示された。CTST 計算の結果, ISOPOO + SO_2 から ISOPOO₂S を生成する反応の速度定数は温度 300 K において~ 10^{-21} $\text{cm}^3 \text{molecule}^{-1} \text{s}^{-1}$ 程度で, CI + SO_2 の反応速度定数と比較すると 10 枠のオーダーで低い値であった。一

般に RO_2 と CI の大気中濃度はそれぞれ 10^8 と $10 \text{ molecule cm}^{-3}$ 程度であり, よって RO_2 と SO_2 の反応速度は CI + SO_2 と比較し, $10^{-21} \times 10^8 / 10^{-11} \times 10 = 10^{-3}$ だけ低いことが示された。さらに, 図 4 より ISOPOO₂S の单分子解離反応のエネルギー障壁は逆反応よりも高いことがわかる。RRKM/ME により, 单分子解離反応パスへの分岐比を算出した結果, 最大でも 10^2 程度であることがわかった。このことから, ISOPOO + SO_2 から SO_3 を生成する反応の総括反応速度定数は $10^{-23} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 以下であり, SO_2 の酸化反応速度は CI と比較し 10^{-5} 倍小さいこと, よって $\text{SO}_4^{2-}(\text{p})$ を含む実大気中のエアロゾル生成にはほとんど影響が無いと結論付けた。

4. 気液界面/液相系のクリーギー中間体のモデルリング

気液界面/バルク系の CI の化学に関しては, 3 章で実施してきた化学輸送モデルリングと類似の手法で大気中エアロゾルの生成能評価に適用できないか検討している。1 章で言及したように, 気液界面/バルク内の物理化学挙動は不均一性を有することから, 均一系である気相のように反応速度定数を解析解型で定式化することは困難である。一方で, 気液界面/バルク内の CI の動的挙動は, 反応拡散方程式でモデルリングされてきている[Smith et al., 2003; Shiraiwa et al., 2013; Gallimore et al., 2017; Berkemeier et al., 2021]。反応拡散方程式モデルでは, 気相中 O_3 の気液界面での吸脱着と反応に始まり, バルクとの物質交換, バルク内での反応と拡散を定義しており, CI の化学に限らず気液界面とバルク内の動的反応過程を記述することが可能となる。反応拡散方程式モデルを用いて, 様々な環境条件下における気液界面/バルク反応過程の総括反応速度定数をパラメタライズし, CTM に組み込んでオレフィンの O_3 酸化反応の大気環境影響を評価することを目標に研究を進めている。

反応拡散方程式モデルの構築や検証のモデル物質として, 高炭素鎖不飽和脂肪酸であるオレイン酸

やスクアレン、生体内代謝過程で重要なアコニット酸などが用いられている[Shiraiwa *et al.*, 2013; Willis & Wilson, 2022]。高炭素鎖不飽和脂肪酸は C=C 二重結合を有するので、O₃ 酸化反応による CI 経由の物理化学過程の研究に適していること、分子量が大きく蒸気圧が低いことから反応の追跡が行いやすいことが考えられる。また、オレイン酸とスクアレン共に、植物油の成分であることから、調理用油の使用により、実大気に排出されるという点からも、大気中における動態解明が必要であったということが、研究が盛んに進んできた理由である[Hou *et al.*, 2025]。Hata *et al.* [2025b]では、気液界面/バルクにおけるオレフィンの O₃ 酸化反応の総括反応速度定数をパラメタライズするべく、反応拡散方程式モデルを新たに構築し、オレイン酸の O₃ 酸化反応によるオレイン酸濃度の減衰を再現できるか検討した。

反応拡散モデルが実験結果を再現するか検証した。

横軸に OA 薄膜の膜厚、縦軸に実験と反応拡散方程式モデル計算で得られたオレイン酸と O₃ の総括反応速度定数 k_{OA} を図 5 に示す。膜厚が薄くなるにつれ、 k_{OA} が増加しているが、これは膜厚が薄いほど反応活性な界面や界面付近バルクの影響が強くなることに起因する。反応拡散方程式モデルは、膜厚 0.5 μm 付近の極薄の結果を除き、実験結果をよく再現できることを示した。また、反応拡散モデルを用いて気液界面とバルクのいずれが OA + O₃ の反応に寄与しているか感度解析を実施したところ、膜厚に依らず 8 割は気液界面付近での反応が主であり、残りの 2 割がバルク内反応に起因することを示した。これらの反応は、反応速度定数と比較し拡散係数の方が 4 倍速度の高い拡散律速の系であることを示した。

5. まとめ

本稿では CI の大気環境影響評価に関して、これまでに実施してきた研究について概説した。特に気相系の CI の反応速度論については、世界中の物理化学者や大気化学者が実験的・理論的に速度定数を算出しており、速度定数の算出という意味では大枠のデータは出そろっていると考えられる。ただ、CI やその反応物は無数にあり、それらの速度定数の情報を蓄積していくことは、物理化学として重要である。一方で CI の大気環境影響については、CTM の不確実性や不均一性の問題から、今回紹介した結果を含め、本当に結果が妥当なのか異なる検証が必要と考えられる。これは CI の反応に限らず、その他の大気化学反応についても同様のことが言える。

冒頭で述べたように、現在の研究テーマの大枠として、①次世代技術導入による大気環境影響の評価と、②本稿で紹介した CI を含む大気化学反応速度論に関する研究を実施している。①のテーマが筆者の本業であり、二足の草鞋を履いているため、一つ一つの内容を深掘りすることができていないところがあるが、これからさらに時間をかけて大気化学

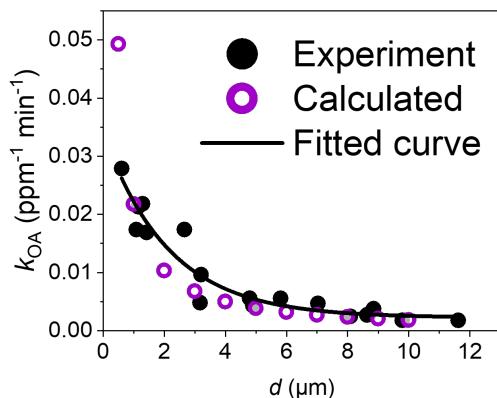


図 5 実験と反応拡散モデルによるオレイン酸のオゾン酸化反応速度定数 k_{OA} の膜厚依存性 (Hata *et al.*, 2025b (CC-BY-NC-4.0))。

手法としてはまず、セレン化亜鉛 (ZnSe) 窓材に、エタノールで希釈したオレイン酸を塗布後、乾燥させることでオレイン酸の薄膜を作製した。ZnSe 窓材をガラスセルに取り付け、FTIR 内に設置後に O₃ を流入し、オレイン酸の O₃ 酸化反応を誘起した。FTIR でオレイン酸の C=O 伸縮振動の吸光度を経時的に計測することでオレイン酸の減衰速度を算出した。様々なオレイン酸濃度で薄膜を作製することで膜厚を変化させ、減衰速度の膜厚依存性を計測した。構築した

の本質をとらえた研究に昇華させていき、国内外の大気化学コミュニティに対して貢献していきたいと考えている。

謝辞

大気研究の実験や解析、論文執筆と査読対応のノウハウをご指導頂き、学位取得後も共同研究者としてお世話になっている東京大学大学院の戸野倉賢一先生に大変感謝しております。また、分子科学のいろはをご教授頂いた元東京理科大学の築山光一先生、大気研究を実施するきっかけを与えてくださった星純也博士を始めとする東京都環境科学研究所の皆様、現在好き勝手に研究を進めてご面倒をおかけしている井上和也博士をはじめとする産業技術総合研究所の皆様、日本大気化学会をはじめとする学会活動でご一緒させて頂いた方々全てに感謝の意を表します。本稿でご紹介した内容は JSPS 科研費 21K12286, 24K03088, 25K01813 の助成の下で実施されました。

参考文献

江波進一 (2024), 大気化学の最前線 -第 3 講 大気不均一化学入門-, 大気環境学会誌, 59, A200-A210.

Berkemeier, T., Mishra, A., Mattei, C., Huisman, A. J., Krieger, U. K., & Pöschl, U. (2021), Ozonolysis of oleic acid aerosol revisited: multiphase chemical kinetics and reaction mechanisms, *ACS Earth Space Chem.*, 2021, 5, 3313-3323.

Caravan, R. L. et al. (2020), Direct kinetic measurements and theoretical predictions of an isoprene-derived Criegee intermediate, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, 117, 9733-9740.

Caravan, R. L. et al. (2024), Observational evidence for Criegee intermediate oligomerization reactions relevant to aerosol formation in the troposphere, *Nat. Geosci.*, 17, 219-226.

Chhantyal-Pun, R et al. (2019), Experimental and computational studies of Criegee intermediate reactions with NH₃ and CH₃NH₂, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 21, 14042-14052.

Chhantyal-Pun, R. et al. (2020), Criegee intermediates: production, detection and reactivity, *Int. Rev. Phys. Chem.*, 39, 385-424.

Criegee, R., & Wenner, G. (1949), Die ozonisierung des 9,10-окталинов. *Liebigs Ann. Chem.*, 564, 9-15.

Enami, S., & Colussi, A. J. (2017); Criegee chemistry on aqueous organic surfaces, *J. Phys. Chem. Lett.*, 8, 1615-1623.

Gallimore, P. J., Griffiths, P. T., Pope, F. D., Reid, J. P., & Kalberer, M. (2017), Comprehensive modeling study of ozonolysis of oleic acid aerosol based on real-time, online measurements of aerosol composition, *J. Geophys. Res.: Atmos.*, 122, 4364-4377.

Gilbert, G. R., & Smith, C. S. (1990), Theory of Unimolecular and Recombination Reactions, Blackwell Science Inc.

Guenther, A. et al. (2006), Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181-3210.

Hassan, Z., Stahlberger, M., Rosenbaum, N., & Bräse, S. (2021), Criegee intermediates beyond ozonolysis: synthetic and mechanistic insights, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 60, 15138-15152.

Hata, H., Hoshino, S., Fujita, M., & Tonokura, K. (2023), Atmospheric impact of isoprene-derived Criegee intermediates and isoprene hydroxy hydroperoxide on sulfate aerosol formation in the Asian region, *Atmos. Environ.: X*, 20, 10026.

Hata, H., & Tonokura, K. (2024), Kinetic study of isoprene hydroxy hydroperoxide radicals reacting with sulphur dioxide and their global-scale impact on sulphate formation, *Environ. Sci.: Processes Impacts*, 26, 1147-1155.

Hata, H., Nakamura, Y., Vazquez, S. J., & Tonokura, K. (2025a), Global-scale analysis of the effect of gas-phase Criegee intermediates (CIs) on sulphate aerosol formation: general trend and the importance of hydroxy radicals decomposed from vibrationally excited CIs, *Environ. Sci.: Atmos.*, 5,

429-441.

Hata, H., Hoshino, S., Fujita, M., & Tonokura, K. (2025b), Dependence of oleic acid ozonolysis rate on film thickness from surface to bulk phases: experimental and modeling approaches, *Int. J. Chem. Kinet.*, 57, 332-341.

Hou, S., Liu, W., & Kuwata, M. (2025), Fresh cooking organic aerosol particles exist as liquid in most urban temperature range, *J. Geophys. Res.: Atmos.*, 130, e2025JD043825.

Khan, M. A. H., Percival, C. J., Caravan, R. L., Taatjes, C. A., & Shallcross, D. E. (2018), Criegee intermediates and their impacts on the troposphere, *Environ. Sci.: Processes Impacts*, 20, 437-453.

Kidwell, N. M., Li, H., Wang, X., Bowman, J. M., & Lester, M. I. (2016), Unimolecular dissociation dynamics of vibrationally activated CH_3CHOO Criegee intermediates to OH radical products, *Nat. Chem.*, 8, 509-514.

Kurtén, T., Lane, R. J., Jørgensen, S., & Kjaergaard, G. H. (2011), A Computational Study of the Oxidation of SO_2 to SO_3 by Gas-Phase Organic Oxidants, *J. Phys. Chem. A*, 115, 8669-8681.

Lester, M. I., & Klippenstein, S. J. (2018), Unimolecular decay of Criegee intermediates to OH radical products: prompt and thermal decay processes, *Acc. Chem. Res.*, 51, 978-985.

Nakamura, Y., Hata, H., & Tonokura, K. (2023), Urban-scale analysis of the seasonal trend of stabilized-Criegee intermediates and their effect on sulphate formation in the Greater Tokyo Area, *Environ. Sci.: Atmos.*, 3, 1758-1766.

Percival, C. J. et al. (2013), Regional and global impacts of Criegee intermediates on atmospheric sulphuric acid concentrations and first steps of aerosol formation. *Faraday Discuss.*, 165, 45-73.

Qiu, J., Ishizuka, S., Tonokura, K., Colussi, A. J., & Enami, S. (2018), *J. Phys. Chem. A*, 122, 7910-7917.

Qiu, J., & Tonokura, K. (2019), Detection of the simplest Criegee intermediate CH_2OO in the ν_4 band using a continuous wave quantum cascade laser and its kinetics with SO_2 and NO_2 , *Chem. Phys. Lett.*, 737, 100019.

Sakamoto, Y., Inomata, S., & Hirokawa, J. (2013), Oligomerization reaction of the Criegee intermediate leads to secondary organic aerosol formation in ethylene ozonolysis, *J. Phys. Chem. A*, 117, 12912-12921.

Sarwar, G. et al. (2014), Impact of sulfur dioxide oxidation by Stabilized Criegee Intermediate on sulfate, 85, 204-214.

Saunders, M. S., Jenkin, E. M., Derwent, G. R., & Pilling, J. M. (2003), Protocol for the development of the Master Chemical Mechanism, MCM v3 (Part A): tropospheric degradation of non-aromatic volatile organic compounds, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 161-180.

Shiraiwa, M., Pfrang, C., Koop, T., & Pöschl, U. (2012), Kinetic multi-layer model of gas-particle interactions in aerosols and clouds (KM-GAP): linking condensation, evaporation and chemical reactions of organics, oxidants and water, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2777-2794.

Smith, G. D., Woods III, E., Baer, T., & Miller, R. E. (2003), Aerosol Uptake Described by Numerical Solution of the Diffusion – Reaction Equations in the Particle, *J. Phys. Chem. A*, 107, 9582-9587.

Su, Y.-T., Witek, H. A., Lee, Y.-P (2013), Infrared absorption spectrum of the simplest Criegee intermediate CH_2OO , *Science*, 340, 174-176.

Taatjes, C. A. et al. (2008), Direct observation of the gas-phase Criegee intermediate (CH_2OO), *J. Am. Chem. Soc.*, 130, 11883-11885.

Taatjes, C. A. et al. (2013), Direct measurements of conformer-dependent reactivity of the Criegee Intermediate CH_3CHOO , *Science*, 340, 177-180.

Vereecken, L., Novelli, A., & Taraborrelli, D. (2017), Unimolecular decay strongly limits the atmospheric impact of Criegee intermediates, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 19, 31599-31612.

Wang, S. et al. (2023), Organic peroxides in aerosol: key reactive intermediates for multiphase processes in the atmosphere, *Chem. Rev.*, 123, 1635-1679.

Watson, I. A. N., & Beames, M. J. (2023), Bimolecular sinks of

Criegee intermediates derived from hydrofluoroolefins – a computational analysis, *Environ. Sci.: Atmos.*, 3, 1460-1484.

Welz, O. et al. (2012), Direct kinetic measurements of Criegee intermediate (CH_2OO) formed by reaction of CH_2I with O_2 , *Science*, 335, 204-207.

Willis, D. M., & Wilson, R. K. (2022), Coupled interfacial and bulk kinetics govern the timescales of multiphase ozonolysis reactions, *J. Phys. Chem. A*, 126, 4991-5010.

Winters, A. J. et al. (2009), Emissions of isoprene, monoterpane and short-chained carbonyl compounds from Eucalyptus spp. in southern Australia, *Atmos. Environ.*, 43, 3035-3043.

Zhong, J., Kumar, M., Zhu, C. Q., Francisco, J. S., & Zeng, X. C. (2017), Surprising stability of larger Criegee intermediates on aqueous interfaces *Angew. Chem. Int. Ed.*, 56, 7740-7744.

Zhu, C., Kumar, M., Zhong, J., Li, L., Francisco, J. S., & Zeng, X. C. (2016), New mechanistic pathways for Criegee–water chemistry at the air/water interface, *J. Am. Chem. Soc.*, 138, 11164-11169.

原稿受領日: 2025 年 12 月 12 日

掲載受理日: 2025 年 12 月 25 日

著者所属:

1. 国立研究開発法人産業技術総合研究所 エネルギー・環境領域 安全科学研究部門 リスク数理解析研究グループ

*** 責任著者:**

Hiroo Hata <hata-hiroo@ait.go.jp>

PAN-PGN joint Workshopへの参加報告

猪俣敏^{1*}

2025年11月10日(月)–12日(水)の3日間, 韓国ソウルにおいて, Pandora Asian Network (PAN)-Pandonia Global Network (PGN) joint Workshop が, National Institute of Environmental Research (NIER), NASA, ESA, LUFTBLICK, SciGlob, EPA, EUMETSAT の共催で開催された。Pandora 装置は, 太陽追尾機能を備えた光化学センサーへッドと回折格子型の紫外・可視高度分光計(波長域:280-525 nm)からなる地上観測リモートセンシング装置で, 二酸化窒素(NO_2), ホルムアルデヒド(HCHO), オゾン(O_3), 二酸化硫黄(SO_2)のカラム全量(対流圏カラム量)が測定可能である。PGN は LUFTBLICK(NASA が資金提供して設立されたオーストリアの会社で, その後 ESA も資金提供している)が管理する全世界の Pandora 装置の観測網で, PAN は NIER が設立した, 韓国, モンゴル, バングラデシ, 東南アジア諸国の観測網であり, NIER は LUFTBLICK のアジアの観測網の管理を任せているため, 今回の PAN と PGN の joint でのワークショップ開催となった。PGN Workshop はこれまで 2 回(2015 年と 2023 年)開催されている。PAN は 2022 年からこれまでに毎年, 計 3 回開催してきた。本ワークショップは, ハイブリッドでの開催で, 現地参加者は約 60 名, リモートからの講演は 8 件あった。また, 関係者のリモートでの聴講も可能であった。

初日は, NIER の Ji-won Seong 氏, LUFTBLICK の Alexander Cede 氏, NASA の Apoora Pandey 氏(予定していた Emma Knowland 氏や Tom Hanisco 氏は来られなかった)からの開会のあいさつの後, LUFTBLICK から Alexander Cede 氏, Martin Tiefengraber 氏, Manuel Gebetsberger 氏, ESA から Angelika Dehn 氏, NASA から Apoora Pandey 氏,

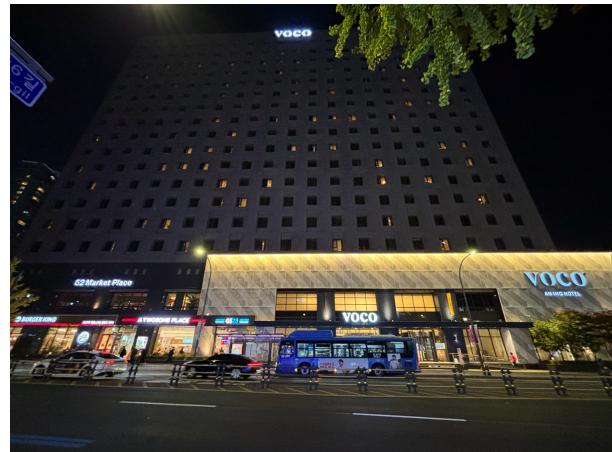


写真 1 (上段) ワークショップが開催されたホテル。
(下段) ワークショップ会場

Bryan Place 氏, SciGlob から Omar Abuhassan 氏がそれぞれ基調講演を行った。特に, Omar Abuhassan 氏からは, 最近起こっているトラブルに対処した改良点の紹介等があった。その後, 私の講演を含む, 3 件の一般講演があった。

私の講演は, 「Introduction of activities of Japan Pandora Network (JPN)」という講演タイトルで, 今年 6 月に打ちあがった温室効果ガス・水循環観測技術衛星 GOSAT-GW(センサー: TANSO-3)の紹介と TANSO-3 で観測する NO_2 の検証が主な目的として

国立環境研究所が中心に運営している JPN の紹介を行った。他の 2 件は, Yonsei University の Jhoon Kim 氏による GEMS (Geostationary Environment Monitoring Spectrometer) の最新データの紹介と Pukyong National University の Hanlim Lee 氏による PAN の装置の稼働状況の紹介があつた。

二日目は, 12 件の一般講演と 8 件のポスター発表があつた。大気汚染を対象にした研究だけではなく, 極域でのオゾン全量の観測に Pandora 装置を用いている講演もいくつかあつた。また, Pandora 装置をエアロゾルの観測に応用している研究発表もあつた。

三日目は, 11 件の一般講演があつた。主には PAN から, モンゴル, 東南アジア諸国(カンボジア, インドネシア, タイ, フィリピン, ラオス), バングラデシュの観測状況に関する発表があつた。その後, 事前に受け付けていた各観測サイトのローカル主任研究者やローカルオペレータからの装置にテクニカルな質問等に対して, LUFTBLICK や SciGlob が回答する時間が設けられた。ワークショップ閉会の前に, Workshop Discussion として, 本ワークショップ内での報告, 議論を踏まえたうえで, LUFTBLICK からいくつかの提案(新しいプロダクトや L3 プロダクトをオフィシャルなプロダクトとするか, など)が出され, 議論された。そして最後に, 本ワークショップの講演資料は基本公開される方針であること, また, 次回は 2027 年 9 月ごろにヨーロッパで開催することが案内された。

本ワークショップに初めて参加して, PGN がどのように運営・管理されているのか, その一面に触れられて為になったと感じている。特に, LUFTBLICK の較正チームの多くのメンバーが参加しており, 彼らが興味をもって各観測サイトのデータを見ていることが垣間見れ, また, Data quality flag などについても直接の説明を聞けて, 理解を深めることができた。そして, アジアでは湿度の問題が共通であることを知ることができたり, PGN のアジア担当者やメーカーである SciGlob の人にも直接会って話すことができ, 今後, JPN の運営に活かすコネクションができたと思う。今

回, 日本から私ひとりが対面で参加したが, フランスの GRASP-EARTH 所属の桃井裕広氏に, 会場でお会いした。彼も, 二日目に「Simultaneous profiling of aerosol and tropospheric nitrogen dioxide from synergistic ground-based observations of sun-sky photometer, lidar and spectrometer」という講演タイトルの一般講演を行つた。こういう場で, 海外で活躍する日本人に会えたことはうれしかつた。

謝辞

本ワークショップの世話を務めた NIER の皆さんに感謝を申し上げたい。

著者所属:

1. 国立環境研究所

* 責任著者:

Satoshi Inomata <ino@nies.go.jp>

Report on Participation in the 6th International Workshop on Frontiers in Atmospheric Radical Measurements

Jiaru Li^{1, 2 *}

1. General information

The 6th International Workshop on Frontiers in Atmospheric Radical Measurements took place at the Stanford Center of Peking University in Beijing, China, on 23rd and 24th November 2025. Around 50 participants joined in person or online from China, the UK, Germany, France, Japan, and the USA. A brief history of the workshop can be found in Table 1. In 1971, Levi first suggested a method of measuring OH concentration using O₃ photolysis as the main source of OH. The following year, a frequency-doubled dye laser was developed for measuring OH at high concentrations (10¹² molecule/cm³). Since then, significant progress has been made in the development and application of HOx measurement techniques over the last five decades.

Table 1. A brief history of the HOx workshop.

Year	Theme	Location
1982	Assessment of Techniques for Measuring Tropospheric HxO _y	NASA, Palo Alto, California, USA
1985	Future Directions for HxO _y Detection	SRI, Menlo Park, California, USA
1992	Local Measurement of Tropospheric HO _x	SRI, Menlo Park,

2005	Free Radicals in the Troposphere: Their Measurements, Interpretation of Field Data, and Future Directions	Leeds, UK
2015	Assessment of local HO _x and RO _x Measurement Techniques: Achievements, Challenges, and Future Direction	Julich, Germany
2025	Measurement of HO _x and RO _x radicals from ground, ship and airborne platforms: Instrument Development and New Chemistry	Peking University, Beijing, China

2. Highlight of the 6th workshop

The 6th workshop introduced a robust set of instruments, including laser-induced fluorescence fast assay by gas expansion (LIF-FAGE), chemical ionization mass spectrometry (CIMS), peroxy radical chemical amplification (PERCA) and differential optical absorption spectroscopy (DOAS) for measuring OH, HO₂, RO₂, and OH reactivity. Specific issues addressed include: 1) OH calibration source and OH interferences; 2) HO₂ interferences from complex RO₂; 3) data utilization across short-term and long-term campaigns. More recently, new techniques for measuring OH reactivity and HO₂ concentration have

emerged using a faraday rotation spectrometer, which can selectively measure magnetic-sensitive radicals [Fang *et al.*, 2025]. The workshop also addressed the active role of women in the HO_x community, especially their leadership across different countries.



Photo 1. Group photo of all participants taken at the conference hall. Photo credited to the Local Organizing Committee.

This workshop included a total of 22 oral presentations and two discussion sessions, covering new instrumentation and new chemistry. The talks focused on the context of instrument development, with a particular focus on the LIF-FAGE system. Field campaigns were conducted using ground-based, aircraft-based, and shipborne observations. The results of some campaigns were used to discuss ozone production and oxidation capacity [Tan *et al.*, 2026]. Additionally, the LIF-FAGE instrument was used in the CERN CLOUD Chamber to study isoprene chemistry, revealing that the oxidation pathway varies with the presence of NO_x [Russell *et al.*, 2025]. New methods and results for RO₂ measurement using CIMS and PERCA were introduced. A new idea for OH interference in the FAGE system was suggested: trioxide ROOOH decomposition [Fittschen *et al.*, 2019]. In addition to quantifying OH reactivity across different in situ and chamber studies, researchers also expanded their measurements to HO₂ and RO₂ reactivity to investigate the HO_x loss during heterogeneous processes [Sakamoto *et al.*, 2025].



Photo 2. Dr. Yosuke Sakamoto (NIES) gave a talk with the topic of LP-LIF Applications for RO_x Uptake Measurement: From Lab Studies to Field Observations. Photo credited to Jiaru Li.

3. Challenges and outlook

A Global Monitoring Network for Atmospheric Radicals and Global Research Alliance was proposed at the end of the workshop. For a long time, the HO_x radical has been considered a key species in atmospheric chemistry that controls the oxidative capacity of air. However, since its initial observation, much work remains to be done. The next workshop is planned for 2030.

References

- Fang, B. *et al.* (2025), Development of a portable laser-flash photolysis Faraday rotation spectrometer for measuring atmospheric total OH reactivity, *Atmos. Meas. Tech.*, 18(5), 1243-1256.
- Fittschen, C. *et al.* (2019), ROOOH: a missing piece of the puzzle for OH measurements in low-NO environments, *Atmos. Chem. Phys.*, 19(1), 349-362.
- Russell, D. M. *et al.* (2025), Isoprene chemistry under upper-tropospheric conditions, *Nat. Commun.*, 16(1), 8555.
- Sakamoto, Y. *et al.* (2025), Heterogeneous Uptake onto Deliquesced Particles as an Atmospheric Fate of Isoprene-Derived Hydroxy-RO₂, *ACS ES&TAir*, 2(5), 713-722.
- Tan, Z. *et al.* (2026), Governing atmospheric oxidation capacity is the key to synergistic air quality and climate gains, *One Earth*, 8, 100-110.

Earth, 9(1), 101569.

Author affiliations:

1. Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology
2. National Institute for Environmental Studies

*** Corresponding author:**

Jiaru Li <jiaru.li@jamstec.go.jp>

第30回大気化学討論会開催報告

戸野倉賢一^{1*}, 今須良一¹, 内田里沙², 江波進一³, 大畠 祥⁴, 坂本陽介⁵,
秦寛夫⁶, 藤田道也¹, 星野翔麻⁷, 山地一代⁸, 石野咲子⁹, 梅澤拓¹⁰

2025年10月8日(水)～10日(金)の3日間、東京大学柏キャンパス環境棟FSホール等(千葉県柏市)において、第30回大気化学討論会が開催され、対面形式で口頭発表およびポスター発表を行いました。



写真1 討論会会場での集合写真(10月10日)

参加登録者は、一般104名、学生44名、招待講演者2名および東京大学の協力学生などを含め、合計155名でありました(写真1)。会場までの交通の便が悪いにもかかわらず、多くの皆さんにご参加いただきまして、厚く御礼申し上げます。

多くの方々より講演申し込みをいただきまして、口頭発表37件(うち、学生16件)、ポスター発表54件(うち、学生17件)、招待講演2件、奨励賞受賞記念講演1件の合計94件の発表が行われました。

10月8日(水)午後の特別セッションでは招待講演として、山口祥一先生(埼玉大学)に「液体表面の和周波発生分光の実験と計算」について、先生のこれまでの和周波発生分光法の確立の道のりと最新の研究成果をご講演していただきました。山口先生には、同日夕方のポスターセッションにもご参加いただき、ご講演内容はもちろんのこと、今後の共同研

究などについての活発な意見交換がなされました。10月9日(木)午後の特別セッションでは招待講演として、萩野浩之先生(日本自動車研究所)に「自動車のブレーキ摩耗で排出されるガス・エアロゾル粒子」について、自動車のブレーキ摩耗から排出されるガス状物質の詳細分析や二次有機エアロゾル生成能評価についての最新の研究成果についてご講演いただきました。同日夕方の懇親会にもご参加いただき、活発な意見交換が行われました。

口頭発表では、一昨年から導入された2名の座長体制での進行が行われました。1日目と2日の午前は学生の皆さんによる口頭発表が行われ、シニアによる口頭発表に負けず劣らない数々の素晴らしい発表がありました。

ポスター発表は、FSホール後部と通路を隔てたギャラリーを使用して、10月8日(水)夕方に実施し、活発な議論が行われました(写真2)。口頭およびポスター発表を行った学生のうち5名(口頭発表3名、ポスター発表2名)に学生優秀発表賞が授与されました(写真3)。

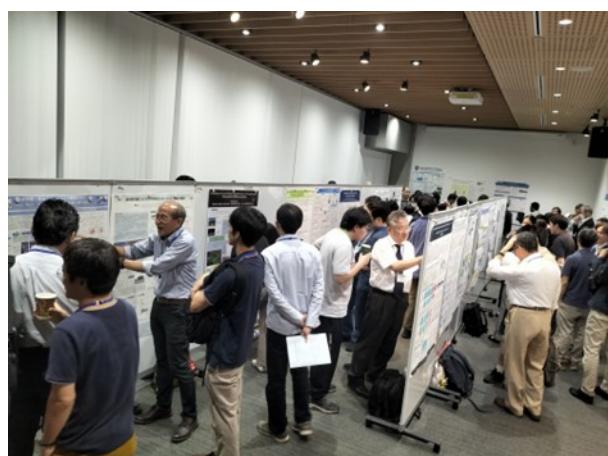


写真2 ポスター発表の様子



写真 3 学生優秀発表賞の受賞者

10月9日(木)午前には、日本大気化学会の会員集会が開催され、奨励賞の授賞式および記念講演が行われました。同日夕方より、場所を流山おおたかの森に移し懇親会を実施し、87名の方にご参加いただきました。

討論会期間中には、東京ダイレック株式会社様の企業展示がありました。また、日本大気化学会の男女共同参画・人材育成委員会により、10月8日(水)夜に「大気化学若手交流会」が、10月9日(木)昼食時に「女性会員のつどい」が行われました。

アンケート結果について

大会終了後に実施したアンケート調査では、62名(うち、発表者37名、発表者以外の参加者15名)の方からご回答をいただきました。今回の討論会全体の満足度について、「おおいに満足」、「満足」が9割を占めており、大部分の参加者に満足いただけたようです(図1)。討論会に関する事前案内はわかりやすかったかについては、「大変そう思う」、「大体そう思う」が9割を占めておりました(図2)。次回の討論会の希望開催形式については、今回と同様の対面開催のみが約50%と最も多い結果でした(図3)。

今回の討論会についての感想などの自由記述には、数多くの有意義なご意見とLOC(実行委員会)に対する温かいお言葉をいただいております。LOC 一

今回の大気化学討論会全体の満足度についてお聞かせ下さい

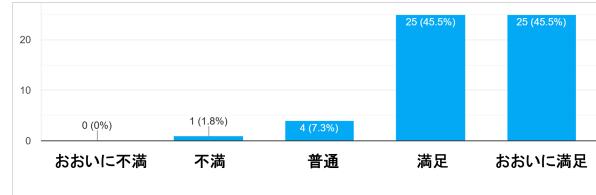


図 1 今回の大気化学討論会の満足度

討論会に関する事前案内は分かりやすかったですか？

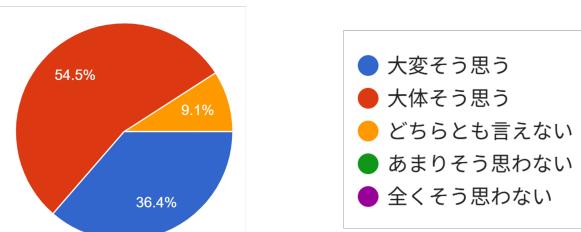


図 2 事前案内について

次回(2026年秋頃)の大気化学討論会についてどのような形式の開催を希望しますか？

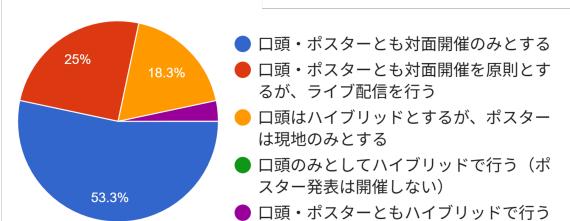


図 3 次回の開催形式の希望

同、深く感謝申し上げます。

最後に、本討論会の開催にあたり、名古屋大学宇宙地球環境研究所、東京大学大学院新領域創成科学研究科にご支援いただきました。また開催準備や当日の運営において、多くの皆様にご協力いただき討論会を無事に終えることが出来ました。この場をお借りし、心より感謝申し上げます。

著者所属:

1. 東京大学

2. 日本自動車研究所
3. 筑波大学
4. 名古屋大学
5. 国立環境研究所
6. 産業技術総合研究所
7. 北里大学
8. 神戸大学
9. 金沢大学
10. 東北大学

* 責任著者:

Kenichi Tonokura <tonokura@k.u-tokyo.ac.jp>

第30回大気化学学会討論会に参加して

阮文鏗¹, Kwok Jommy²

日本大気化学会男女共同参画・人材育成委員会では、第30回大気化学討論会において、学生会員および若手研究者会員の討論会への参加を促進することによる、自身の研究へのフィードバックおよび人的ネットワーク形成を目的として、旅費の支援を実施しました。旅費支援対象者による参加報告を以下に掲載いたします。

(日本大気化学会男女共同参画・人材育成委員会)

1. 大気化学討論会に参加して感じたこと【阮】

この度、第30回大気化学討論会に若手旅費支援制度を利用して参加させていただきました。私は、安定同位体トレーサーを使って大気中の窒素酸化物やオゾンの生成・消滅メカニズムを解明していくことを目指して研究活動に励んでおり、討論会では「都市大気中の粒子状及びガス状硝酸の起源: 三酸素同位体組成を指標に用いた反応経路追跡」というテーマでポスター発表をさせていただきました。

私が討論会で最も印象的だったことは、ポスター発表の時間にお酒が出てきたことです。お酒があることによってポスター会場から堅苦しさが無くなり、参加者の皆さんのが非常にリラックスしながらポスター発表の内容について深く熱く議論することができたのは良かったです。私のポスター発表にも多くの方々が見に来て下さり、研究内容に関する情報や意見を交換することができ、大変有意義な場となりました。今回の発表を通じて、様々な分野の方々から貴重な意見をいただき、自分の研究の完成度を高めるためには別の視点から検討するべきことがあることに気づかされました。また、他の人のポスター発表を見ることによって、色々な研究手法があることを学ぶとともに、ポスターのデザインや分かりやすく見せる工夫など学ぶ

べき点が多くありました。

討論会の口頭発表会場が一會場のみであったことも印象的であり、良い点と感じました。おかげさまで大気化学に関する様々な分野の発表を集中して拝聴することができました。自分の研究に深く関連する研究結果は自身の研究結果の検証に役立ちましたし、普段あまり接する機会のない研究分野の発表から多くの知見を得ることができ、大気化学の知識の幅が広がりました。

懇親会では、リラックスした雰囲気で他の研究室の学生と互いの研究テーマや今後の進路について話をすることができました。現在私の研究室では、大気化学を研究テーマに選んでいる学生は私一人だけでしたので、懇親会を通じて大気化学を研究している若手の方々との人脈を形成することができたことは大きな収穫でした。今回の討論会で得られた全てのことを私自身の今後の研究活動に活かすことで、研究を大きく発展させ、次の発表ではレベルアップした面白い発表ができるよう努めたいと思います。

2. Experience at the JpSAC 2025 Annual Meeting 【Kwok】

I was very glad to be able to join the JpSAC 2025 annual meeting. This time, I joined with a poster presentation on the Pandora Spectrometer in Sapporo. The most rewarding aspects were the opportunity to connect with both familiar and new people in person; and I have received a lot of useful comments on my research.

It is my first time joining the JpSAC's meeting. I feel encouraged to know that there are also many students working in many different aspects of atmospheric

chemistry, and I was able to make a few friends. Also, I was delighted to meet some researchers whom I talked to in the JpGU, and I also got to meet some other new people whom I have read about before but never got to know them.

For my research, I was originally a bit lost and stuck before I came to the meeting, so I was hoping that I could get some inspirations – it turned out great. I am very grateful that many researchers came to my poster just to share with me their related experience and any idea that may be helpful to my research. I am very grateful to everyone I had the pleasure of speaking with.

I also joined the 懇親会 on the second day of the meeting. The atmosphere and food were really nice and enjoyable. I really had a great time at the meeting all in all, and I am looking forward to joining the meeting again in 2026.

著者所属:

1. 名古屋大学 大学院環境学研究科
2. 北海道大学 大学院環境科学院

JpGU-AGU Joint Meeting 2026 大気化学セッション開催のお知らせ

江波進一^{1*}, 石野咲子², 梅澤拓³, 山地一代⁴

1. JpGU-AGU2026「大気化学セッション」

日本大気学会では, 1) 地球惑星科学分野全体に開かれた形で研究集会を実施すること, 2) 他分野との交流を促進することを目的として, 日本地球惑星科学連合大会において 2007 年から大気化学セッションを毎年開催してきました。これまで当該セッションには口頭・ポスター発表合わせて 50~60 件程度の申し込みがあり活発な議論が行われてきました。

次回はアメリカ地球物理学連合(AGU)とのジョイント開催で, JpGU-AGU2026 となります。JpGU-AGU2026においても大気化学セッションが採択され, 開催されることとなりました。以下, 重要な点を抜粋してお知らせします。

2. 日程および予稿投稿

JpGU-AGU2026 は, 現地開催およびオンライン開催のハイブリッド方式での開催が予定されています。口頭発表は, 現地会場・オンラインの両方で, ポスター発表は現地のみで実施される予定です。また, 口頭発表の時間帯にポスター発表のフラッシュトークを行います。ハイブリッド開催のメリットを最大限活かした活発な議論と意見交換の場となることが期待されます。

「大気化学セッション」は口頭およびポスター発表を実施する予定です。各セッションの口頭コマ数は前年の投稿数を元に仮配分され, その後, 実際の投稿数により微調整されます。大気化学セッションとして, 5 月 28 日(木), 29 日(金)に 5 コマの口頭セッションが仮配分されました。ポスターセッションは 29 日の口頭セッション終了後に引き続いて行われます。

記

名称: JpGU-AGU Joint Meeting 2026

会期: 2026 年 5 月 24 日(日)~5 月 29 日(金)

開催方式: ハイブリッド方式(現地+オンライン)

現地会場: 幕張メッセ

予稿投稿:

2026 年 1 月 15 日(木)~2 月 17 日(火) 17:00

(早期投稿締切: 2 月 5 日(木))

大会 WEB サイト:

https://www.jpgu.org/meeting_j2026/

3. 発表言語および招待講演

今回は AGU とのジョイント開催ということで, 前回のジョイント開催時と同じく, 大気化学セッションにおける発表言語については, 「E」区分, すなわち, スライド・ポスター表記および口頭発表の言語は英語としております。

JpGU-AGU2026 においても, 昨年度に引き続き, 大気化学の周辺・境界領域や, 近年特に注目されている分野の研究者による招待講演を実施する予定です。皆様の新たな研究の展開にご活用いただけますと幸いです。

上記にありますように予稿原稿投稿受付は 1/15 から, 投稿最終締切は 2/17, 17:00 です。日本大気学会として, 大気化学に関連する研究を盛り上げるためにも, 皆様からの積極的な発表申込みをお願い申し上げます。(日本大気学会 運営委員会, プログラム担当: 江波進一・石野咲子, 梅澤拓, 山地一代)

著者所属:

1. 筑波大学 数理物質系
2. 金沢大学 環日本海域環境研究センター
3. 東北大学 大学院理学研究科
4. 神戸大学 海事科学研究科

*** 責任著者:**

Shinichi Enami

<enami.shinichi.ka@u.tsukuba.ac.jp>

第21回日本大気化学会奨励賞の選考結果について

受賞者氏名：秦 寛夫(産業技術総合研究所)

受賞研究課題名：反応速度論に基づく大気化学反応機構の解明

受賞理由：秦寛夫氏は大気中化学物質の排出挙動や反応過程の解明を目的とした研究を行っている。2015年より在籍した東京都環境局では、大気汚染問題の主要因の一つとして注目されていたガソリン燃料由来の揮発性有機化合物の排出実態や熱力学的解析、さらにその大気環境影響評価に関する研究を実施した。2021年に産業技術総合研究所へ入所した後は、研究の範囲を大気化学まで広げ、主に反応速度論的視点からの大気化学反応モデリングや、化学輸送モデルを用いた大気汚染構造の解明を行っている。

秦氏の強みは、東京都環境局在籍以前の民間企業で実施した数値計算および計算機支援工学(CAE)解析や、東京都下水道局での行政経験を生かしつつ、修士課程在籍時に培ったレーザー光化学や反応速度論の知識を融合して、大気中の汚染物質の予測や挙動に関して幅広く研究を進めている。特に2010年代から反応速度定数の情報が明らかになり始めたクリーギー中間体や、過酸化ラジカルの微小粒子状物質生成への影響評価に関する研究では、既往研究で解明された速度定数をレビューし、未知の反応に関しては量子化学計算/遷移状態理論計算を駆使することで、関東などの領域規模からアジア域、さらには全球スケールでの化学輸送モデル計算に発展させている。その結果、クリーギー中間体の粒子生成への寄与は全球規模で1%程度であることや、長年謎に包まれていた振動励起クリーギー中間体と安定化クリーギー中間体それぞれの粒子生成影響の切り分けを行い、気相中クリーギー中間体の大気影響に関する普遍的な知見を得ることに成功

している。その他、気液界面におけるアルケンのオゾン酸化反応に関する研究や、気候変動や次世代技術導入に伴う対流圏オゾンと粒子状物質生成への影響の評価など、未開拓な研究分野、さらには行政貢献型研究にも意欲的に取り組んでいる。

秦氏は大気化学討論会や日本地球惑星科学連合大会を含む国内・国際学会において上記の研究を含む成果発表も多く、学位取得からの期間を考慮すると原著論文の質・量ともに十分なものであると言える。また、同氏は大学の客員連携研究員と客員准教授を兼任しながら、大気化学分野の後任育成にも積極的に取り組んでいる。さらに、国際学術誌のAssociate editorを務めるなど、日本の大気化学の存在感を世界に発信している。日本大気化学会は、秦寛夫氏が同賞にふさわしい実績と将来性を有するものと認める。

(日本大気化学会運営委員会)



秦寛夫氏

日本大気化学会会員集会プログラム

日時:2025年10月9日(木) 10:50-11:50

場所:東京大学柏キャンパス 環境棟1階

- 1) 持田会長より挨拶
- 2) 会計・会員報告
- 3) 賛助会員のご紹介
- 4) 第30回大気化学討論会
- 5) JpGU2026での大気化学セッション
- 6) 男女共同参画・人材育成の活動について
- 7) 学会誌「大気化学研究」について
- 8) 日本大気化学会論文賞の募集について
- 9) その他

日本大気化学会奨励賞授与式

(日本大気化学会 運営委員会)

第 42 回日本大気化学会運営委員会議事録

第 42 回日本大気化学会運営委員会

日時:2025 年 10 月 3 日(金)08:30-10:30

場所:WEB 会議による開催

出席者:池田恒平, 石野咲子, 梅澤拓, 江波進一, 大畑祥, 大島長, 江口菜穂, 河野七瀬, 斎藤尚子, 関谷高志, 竹川暢之, 中山智喜, 町田敏暢, 持田陸宏, 山地一代

欠席者:なし

(敬称略, 50 音順)

持田会長より挨拶があった。

1) 議事録確認

「大気化学研究」誌に掲載済の第 41 回運営委員会の議事録について確認がなされた。

2) 会計・会員の状況, シニア終身会員の運用について

会計・会員担当の大畑委員より, 現時点での会員数と会計の状況について報告がなされた。加えて, シニア終身会員への種別変更に必要な書類について提案がなされた。運営委員会で審議し, シニア終身会員への変更申請時に年齢確認書類の添付は求めないことに決定した。

3) 日本大気化学会奨励賞と論文賞に係る細則の改正について

表彰担当の町田委員より, 選考委員の氏名公表に係る細則の変更について提案がなされた。運営委員会において, 繼続審議とすることになった。

4) 学会のアウトリーチ活動について

男女共同参画・人材育成担当の河野委員より, 学会のアウトリーチ活動の検討状況について報告がなされた。持田会長から依頼を受けて男女共同参画・人材育成委員会で検討している 4 つの案を中心に, 引き続き, 検討を進めることになった。

5) 未来の学術振興構想(航空機観測)について

町田委員より, 「未来の学術振興構想」の改訂に向けた「学術の中長期研究戦略」の公募への「有人・無人航空機による気候・地球システム科学的研究の推進」の日本気象学会との共同提案について報告がなされた。

6) 2025 年度第 30 回大気化学討論会の準備状況

プログラム担当の江波委員より, 第 30 回大気化学討論会のスケジュールと発表件数について報告がなされた。

7) 2026 年 JpGU の準備状況について

プログラム担当の江波委員より, AGU との共催で開催される 2026 年の JpGU の準備状況について報告がなされた。「大気化学」セッションのコンビーナは, プログラム委員に加えて, AGU 側から 2 名推薦してもらえるよう JpGU を通して依頼中であるが, 推薦が不調に終われば大気化学会で候補者を検討することになった。

8) 大気化学研究誌について

編集担当の池田委員より, 「大気化学研究」2026 年冬号の編集状況について報告がなされた。来年福岡で開催される AOGS 等, 国際学会の参加報告について掲載の要望があった。

9) 2025 年度大気化学会奨励賞の選考結果と論文賞の募集について

奨励賞の受賞者は運営委員会にて決定され, 受賞者にはその結果が伝達済みであることが報告された。運営委員による積極的な声掛けなど, 応募者数を増やす取り組みも必要であるとの意見があった。また, 論文賞の公募および選考スケジュールについて報告がなされた。

10) 男女共同参画・人材育成委員会の活動について

第 30 回大気化学討論会の若手旅費支援の状況,

討論会期間中の若手会員の親睦会および女性会員の集いの開催予定について報告がなされた。また、2025 年 11 月より男女共同参画学協会連絡会の正式加盟学協会員になることが報告された。

11) 情報広報委員会の活動について

学会 web ページおよび第 30 回大気化学討論会 web ページの更新と作成を行った旨の報告がなされた。また、学会のチラシの活用について検討がなされた。

12) 2026 年度第 31 回大気化学討論会の準備状況

について

2026 年度の大気化学討論会を東北大学で開催することが報告され、承認された。

13) その他

年会費のクレジットカード払いの可否について、継続して検討することになった。

以上

(日本大気化学会 運営委員会)

編集後記

今号では、トピックスとして「大気化学分野におけるAI/機械学習の利用」をテーマに3編の総説記事を掲載しました。AIがますます身近な存在になりつつあり、大気化学研究への利用に興味をお持ちの方も多いかと思います。本特集では、特にAIの一分野である機械学習のアルゴリズムの概要から、機械学習を利用した執筆者の研究まで解説していただきました。AI/機械学習に馴染みのないという方から、専門とする方まで幅広い読者の皆様に有意義な記事になっています。著者の皆様、及び査読を快くお引き受けいただいた皆様に、深く感謝申し上げます。

本誌は、自身の研究や活動内容を会員と共有する有用な場としてご活用いただけます。引き続き、積極的なご投稿とご意見をお寄せください。(KI)

大気化学研究 第54号 (2026年1月27日 発行)

編集兼発行: 日本大気化学会

編集委員: 池田恒平(編集長), 河野七瀬, 上田紗也子, 佐伯田鶴, 染谷有

連絡先: 〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局

電話: 03-5389-6237

FAX: 03-3368-2822

電子メール: jpsac-post@as.bunkan.co.jp

ホームページ: <https://jpsac.org/publications/aacr/>

《本誌掲載著作物の転載を希望される方へ》

本誌に掲載された著作物を転載される場合は、上記までご連絡ください。無断での二次使用や勝手な加工はお控えください。