Environment Research and Technology Development Fund Final Research Report

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

募区分: 公 環境問題対応型研究(一般課題) 研究予定期間: 令和3 (2021) 年度 ~ 令和5 (2023) 年度 題番号 課 : [5-2105] 体系的番号: (JPMEERF20215005) 「対策によるオゾン濃度低減効果の裏付けと標準的な将来予測手法の 研 究 課題 : 開発」 Research Title: Development and Application of a Standard Method to Predict Ozone Reduction Caused by Strategies 研究代表者: 茶谷 聡 研究代表機関: 国立研究開発法人国立環境研究所 研究分担機関: 大阪大学、千葉大学、一般財団法人電力中央研究所 研 究領域: 安全確保領域 キーワード: オゾン、光化学オキシダント、大気質シミュレーション、排出インベ ントリ、対策効果評価

令和6 (2024) 年5月

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書	1
I. 成果の概要	4
1. はじめに(研究背景等)	6
2. 研究開発目的	6
3. 研究目標	7
4. 研究開発内容	8
5. 研究成果	9
5-1. 成果の概要	9
5-2. 研究目標の達成状況	15
5-3. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献	17
6. 研究成果の発表状況の概要	20
6-1. 成果の件数	20
6-2. 主な査読付き論文等の主要な成果	21
7. 国際共同研究等の状況	22
8. 研究者略歴	23
Ⅱ. 成果の詳細	24
Ⅱ-1 サブテーマ1「対策効果を表現可能な長期排出インベントリの開発」	24
[サブテーマ1要旨]	24
1. サブテーマ1研究開発目的	24
2. サブテーマ1研究目標	25
3. サブテーマ1研究開発内容	25
4. サブテーマ1結果及び考察	28
5. サブテーマ1研究目標の達成状況	36
II-2 サブテーマ2「長期大気質シミュレーションに基づく対策効果評価手法の確立」	37
[サブテーマ2要旨]	37
 サブテーマ2研究開発目的 	37
2. サブテーマ2研究目標	38
 サブテーマ2研究開発内容 	38
4. サブテーマ2結果及び考察	41
 サブテーマ2研究目標の達成状況 	56
Ⅱ-3 サブテーマ3「地上分光計測に基づいた排出対策効果の検証」	57
[サブテーマ3要旨]	57
 サブテーマ3研究開発目的 	57
2. サブテーマ3研究目標	58
3. サブテーマ3研究開発内容	58
4. サブテーマ3結果及び考察	61
5. サブテーマ3研究目標の達成状況	70
Ⅱ-4 サブテーマ4「衛星計測に基づいた排出対策効果の検証」	71
【サブテーマ4要旨】	71
 サファーマ4研究開発目的 サンドマーマ4研究開発目的 	
2. サブケーマ4研究目標	71
 サファーマ4研究開発内容 サファーマ4研究開発内容 	72
4. サファーマ4 結果及び考察 - - - -	72
 サファーマ4研究目標の達成状況 サファーマ4研究目標の達成状況 	84
Ⅲ. 研究成果の発表状况の詳細	85

[5-2105]

(1)	成果の件数	. 85
(2)	誌上発表	. 85
(3)	口頭発表	. 88
(4)	知的財産権	. 93
(5)	「国民との科学・技術対話」の実施	. 94
(6)	マスメディア等への公表・報道等	. 94
(7)	研究成果による受賞	. 95
(8)	その他の成果発表	. 95

別紙 公募審査・中間評価結果への対応

I. 成果の概要

<課題情報>	
公募区分:	環境問題対応型研究(一般課題)
研究実施期間:	令和3 (2021) 年度 ~ 令和5 (2023) 年度
課題番号:	[5-2105]
研究課題:	「対策によるオゾン濃度低減効果の裏付けと標準的な将来予測手法の開発」
研究代表者:	茶谷 聡(国立研究開発法人国立環境研究所、主幹研究員)
重点課題(主):	【重点課題⑮】大気・水・土壤等の環境管理・改善のための対策技術の高度化 及び評価・解明に関する研究
重点課題(副):	【重点課題⑮】化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究
行政要請研究テーマ (行政ニーズ):	(5-11)光化学オキシダント等の削減対策による大気環境改善の効果評価
研究領域:	安全確保領域

<キーワード>

オゾン
光化学オキシダント
大気質シミュレーション
排出インベントリ
対策効果評価

<研究体制>

サブテーマ1「対策効果を表現可能な長期排出インベントリの開発」

<サブテーマ1リーダー及び研究分担者>

機関名	部署名	役職名	氏名	参画期間
国立研究開発法人 国立環境研究所	地域環境保全領 域	主幹研究員	茶谷 聡	

<サブテーマ1研究協力者>

機関名	部署名	役職名	氏名
国立研究開発法人国立環 境研究所	地域環境保全領域	特別研究員	北山響

サブテーマ2「長期大気質シミュレーションに基づく対策効果評価手法の確立」

<サブテーマ2リーダー及び研究分担者>

機関名	部署名	役職名	氏名	参画期間
大阪大学	大学院工学研究 科	准教授	嶋寺 光	

<サブテーマ2研究協力者>

機関名	部署名	役職名	氏名
大阪大学	大学院工学研究科	招へい研究員	荒木 真

サブテーマ3「地上分光計測に基づいた排出対策効果の検証」

<サブテーマ3リーダー及び研究分担者>

機関名	部署名	役職名	氏名	参画期間
千葉大学	環境リモートセ ンシング研究セ ンター	教授	入江 仁士	

サブテーマ4「衛星計測に基づいた排出対策効果の検証」

<サブテーマ4リーダー及び研究分担者>

機関名	部署名	役職名	氏名	参画期間
一般財団法人電力 中央研究所	サステナブルシ ステム研究本部	主任研究員	板橋 秀一	

<研究経費(間接経費を含む)>

年度	直接経費	間接経費	経費合計
2021	23,695千円	7,107千円	30,802千円
2022	20,057千円	6,016千円	26,073千円
2023	17,524千円	5,256千円	22,780千円
合計	61,276千円	18,379千円	79,655千円

1. はじめに(研究背景等)

大気中の光化学オキシダントの濃度(昼間の日最高1時間値の年平均値)は、近年はほぼ横ばいで推 移しており、環境基準の達成率は極めて低い水準にある。ただし、光化学オキシダント濃度の長期的な 改善傾向を評価するための指標(新指標値;8時間値の日最高値の年間99パーセンタイル値の3年平均 値)で見れば、地域によって低減傾向も見られている。光化学オキシダントの主要物質であるオゾン は、主に窒素酸化物(NO_x)と揮発性有機化合物(Volatile Organic Compound; VOC)から、大気中で の光化学反応過程を経て生成される。その有効な濃度低減策を立案するためには、大気中での輸送や光 化学反応過程などによる汚染物質濃度の変化を表現できる化学輸送モデル、NO_xやVOCをはじめとする全 ての大気汚染原因物質の排出量を収録した排出インベントリ、気象場の変化を計算できる気象モデルで 構成される、大気質シミュレーションが有用である。これまでに実施された推進費課題5-1601では、多 くのモデル研究者の参加を得て、領域化学輸送モデル間相互比較を行い、大気汚染物質の適切な濃度再 現性を確保するための規範的なモデル設定を確立した。また、推進費課題5-1903においては、シミュレ ーションの簡便な実行を支援するシステム開発などを行った。これらの研究成果を基に、有効な対策を 立案するためにシミュレーションを積極的に活用する段階に達していると言える。実際に、VOC排出削 減のための自主的取組における排出量の削減目標(対2000年比でVOC排出量30%減)を設定するために、 シミュレーションが用いられた。しかしながら、目標を大きく上回る排出削減を達成したにもかかわら ず、光化学オキシダントの環境基準の達成率は低いままであり、対策の実効性が問われている。シミュ レーション上の問題点の一つとして、対象日の選定や計算結果の解釈など、シミュレーションを対策評 価に用いるための具体的な手法が明確に定まっていなかったことが挙げられる。アメリカでは、環境基 準の未達成地域についてState Implementation Plan (SIP) を策定し、SIPに掲げられるさまざまな対 策による大気改善効果をシミュレーションで評価することが求められており、そのためのガイドライン をアメリカ環境保護庁が整備しているが、日本にはそれに相当するものは存在しない。もう一つの問題 点として、シミュレーションによるオゾン濃度絶対値の再現性の検証は多く行われているものの、NO_v やVOCの排出量の変化によるオゾン濃度の変化をシミュレーションが正確に計算できるかどうかという 観点での検証は十分になされていなかったことが挙げられる。

2. 研究開発目的

本研究課題では、対策によるオゾン濃度の低減効果をシミュレーションで評価するための標準的な 手法の開発と、現在まで蓄積されてきている地上・衛星計測に基づいた実際の大気質の経年変化に基づ き、評価手法の有効性を科学的に裏付けることを目的とする。日本国内の自動車と固定燃焼発生源を対 象に、対策などによる排出量の経年変化を明示的かつ整合的に表現できる長期排出インベントリを新た に開発する。その排出インベントリを用い、過去のオゾン濃度の経年変化を長期大気質シミュレーショ ンで計算する。アメリカ環境保護庁のガイドラインを出発点とする評価手法に基づき計算結果を解析 し、オゾン濃度の経年変化に対するVOC自主的取組、自動車排出ガス規制、固定燃焼発生源対策、越境 輸送、気象条件の影響を明確にする。さらに、大気中のホルムアルデヒド(HCHO)とNO₂の濃度比に着 目し、有効な対策の判断材料となり得る、オゾン生成のNO_xとVOCへの依存性(感度レジーム)の検証を 行う。衛星計測と地上分光計測(MAX-DOAS)により長年蓄積されているHCHOとNO₂の濃度データに基づ き、空間的・経年的な感度レジームの変化を判定し、シミュレーションとの整合性を明らかにする。問 題点が見出された場合には、排出インベントリおよび評価手法にフィードバックした上で、対策による 将来のオゾン濃度低減効果の標準的な評価手法として確立させる。

6

3. 研究目標

全体目標	(アウトプット) 大気質シミュレーションを用い、対策等による原因物質の排出量の変化に 伴う過去の実際のオゾン濃度の経年変化を表現できることが科学的に裏 付けられた、対策効果の評価手法を開発する。
	(アウトカム) 今後の行政による対策立案における対策効果の標準的な評価手法として 確立させ、対策によるオゾン濃度の確実な低減に貢献する。

サブテーマ1	「対策効果を表現可能な長期排出インベントリの開発」
サブテーマ1実施機関	国立研究開発法人国立環境研究所
サブテーマ1目標	2000年以降の長期間を対象に、過去の対策や社会要因等による排出量の経 年変化を明示的かつ整合的に表現し、シミュレーションによるオゾン濃度 の経年変化の再現を実現する排出インベントリを新たに開発する。

サブテーマ2	「長期大気質シミュレーションに基づく対策効果評価手法の確立」
サブテーマ2実施機関	大阪大学
サブテーマ 2 目標	2000年以降の長期間を対象に、オゾン濃度変化の諸要因を考慮したシミュ レーションを実行し、常時監視による光化学オキシダントならびにNO _x や非 メタン炭化水素等の関連物質濃度の経年変化との整合性を裏付けること により、標準的な対策評価手法として確立させる。 VOC自主的取組、自動車排ガス対策、固定燃焼発生源対策、越境輸送、気象 条件といった各要因のオゾン濃度の経年的な変化に対する寄与を定量化 することで、今後の対策のあり方とシミュレーションの有効性を示す。

サブテーマ3	「地上分光計測に基づいた排出対策効果の検証」	
サブテーマ3実施機関	千葉大学	
サブテーマ3目標	都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分光計測(MAX-DOAS法)からリ トリーバルされた大気境界層内のNO ₂ 、HCHO、オゾン濃度の直近10年間もの 長期連続データセットを構築し、各成分の年々変動を明らかにすると共 に、実大気におけるオゾン感度レジームを導出し、オゾン濃度低減に対す るNO _x とVOCの排出削減の有効性を地上分光計測から定量的に検証する。	

サブテーマ 4	「衛星計測に基づいた排出対策効果の検証」
サブテーマ4実施機関	一般財団法人電力中央研究所
サブテーマ4目標	衛星計測によるNO ₂ とHCHO鉛直積算濃度の比から、実大気におけるオゾン感度レジームを導出し、時空間的な変動を解明することで、オゾン濃度低減に対するNO _x とVOCの排出削減の有効性を衛星計測から定量的に検証する。

4. 研究開発内容

本研究は4つのサブテーマで構成される。それぞれのサブテーマにおける実施内容と相互関係の概要 を図0-1に示す。



図0-1 各サブテーマにおける実施内容と相互関係の概要

これまでのオゾン濃度を変化させてきた要因として、VOC自主的取組、自動車排ガス対策、固定燃焼 発生源対策、越境輸送、気象条件、そしてCOVID-19などの社会的要因などが考えられる。サブテーマ1 では、NO_xやVOCをはじめとする全ての大気汚染原因物質について、2000年以降を対象に、VOC自主的取 組、自動車排ガス対策、固定燃焼発生源対策、越境輸送による経年変化を表現できる、国内外の全ての 発生源の長期排出インベントリを新たに構築し、サブテーマ2に提供した。また、2020年以降のCOVID-19の蔓延による経済活動の低下について、活動量データの解析を行って特異的な排出量の減少を表現で きるようにし、サブテーマ2とサブテーマ4に提供した。各サブテーマで得られた知見に基づき、排出 インベントリに必要な改良を施した。その上で、対策の評価のために排出インベントリに求められる適 切な経年変化の表現方法ならびに対策の反映手法としてとりまとめた。

サブテーマ3では、2013年から都市域(千葉)と郊外(つくば)において実施している地上分光計 測(MAX-DOAS法)を継続した。最新のアルゴリズムを用いて、観測スペクトルデータから大気境界層内 のNO₂、HCHO、オゾン濃度を同時にリトリーバルし、長期連続データセットを確立させた。データセッ トを解析し、COVID-19影響下の期間を含む様々な時間スケールでHCHO/NO₂比とオゾン濃度の対応を調 ベ、オゾン感度レジームについての新たな観測的知見を得るとともに、サブテーマ2、4との整合性を 評価した。また、集中観測も実施し、誤差評価、衛星計測データとの整合性評価、越境汚染の影響評価 を実施した。

サブテーマ4では、2005年から現在まで継続しているOMI衛星計測データに基づき、NO₂およびHCHO鉛 直積算濃度の比を解析することにより、オゾン感度レジームの経年変化を東アジアスケールで明らかに するとともに、サブテーマ2、3との整合性を評価した。各サブテーマの情報と統合的に解析すること で、地表面近傍と対流圏鉛直積算濃度の対応関係を明らかにした。また、COVID-19という劇的な排出量 変化事例を対象に、シミュレーションも用いてオゾン濃度の変化を評価することで、排出対策効果を検 証した。

そして、サブテーマ2では、サブテーマ1で構築された長期排出インベントリを用い、長期大気質 シミュレーションを実行した。地上オゾン濃度観測値の経年変化との整合性を評価し、前駆物質排出量 変化に対するオゾン濃度変化が正しく表現されているかを評価した。また、サブテーマ3、4で得られ たオゾン感度レジームとの整合性を評価した。その上で、アメリカ環境保護庁が定める対策効果評価手 法に必要な改良を施し、日本国内の対策によるオゾン濃度低減効果の評価手法を確立させた。本手法を 用いて、オゾン濃度に対する気象条件の変化、越境輸送の変化の影響と、過去のVOC自主的取組、自動 車排ガス対策、固定燃焼発生源対策の効果をそれぞれ定量化した。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

(a) サブテーマ1

日本国内の主要発生源である自動車、大規模固定燃焼発生源、VOC蒸発発生源を含む国内外の全ての 発生源を対象発生源、オゾンの前駆物質であるNOxと非メタン有機化合物(NMVOC)を含む全ての大気汚 染原因物質を対象物質とし、2000年以降の長期間を対象に各年の排出量を推計した(成果番号3、図1-3)。日本国内のほとんどの物質の排出量に減少傾向が見られた。NMVOCの排出量については、植物起源 の寄与が相対的に大きくなり、2019年には全発生源の半分を超える寄与を占めた。排出量減少の要因を 明らかにするために、対策と活動量の変化による排出量への影響を別個に表現できるようにした(成果 番号3、図1-4)。自動車については、新車に対する排出ガス規制が段階的に強化されており(図1-1)、市場を走行する古い車両が新しい規制に対応した車両に置き換わることによって、排出量が効果 的に削減されていることが示された(成果番号2)。一方、自動車の活動量に相当する車両台数や走行 距離の経年変化は比較的小さいため、排出量の経年変化に対する影響は限定的であった。大規模固定燃 焼発生源からの排出量も対策によって削減されているが、エネルギー消費量の削減努力などによる排出 削減の方がより大きく現れた。VOC蒸発発生源からの排出量は、自主的取組などの対策により削減され ているのに加えて、リーマンショックが発生した2008年頃から、溶剤などの生産量や消費量が落ち込ん でいる影響も現れた。大規模固定燃焼発生源からの排出量については、環境省が3年おきに実施してい る大気汚染物質排出量総合調査においても、排出量の集計値が公開されている。調査データには異常値 などが含まれるため、本研究で推計した排出量を完全に一致させるのは困難であるが、排出量と業種 別・施設種別の寄与割合の経年変化傾向は、集計値と推計値の間で概ね一致していた(図1-5)。国内 の全発生源の排出量は、約1×1 kmの高解像度で整備した。都市部の他、自動車の寄与が大きいNoxの場 合は高速道路沿いで排出が多いなど、主要発生源に特徴的な空間分布が得られた(図1-6)。このよう に、過去の対策や社会要因等による排出量の経年変化を明示的かつ整合的に表現する高解像度の排出 **インベントリを新たに構築することができ、**サブテーマ2に提供した。

COVID-19の蔓延に伴い、経済活動や人々の移動が制限された2020年以降については、火力発電量、 固定燃焼発生源のエネルギー消費量、自動車の走行距離の3種類の活動量を対象に周期変動解析を行 い、通常時の月変動とCOVID-19の蔓延に伴う特異的な活動量の低下を切り分けて抽出した。解析により 得られた月別の活動量を用いて排出量を推計した結果、2020年の5月におけるNO_xの排出量は2019年に比 べて最大約14%減少したことが示され、最初の緊急事態宣言が発出された時期に一致した(成果番号5、 図1-7)。NMVOCの排出量のうち、植物起源の排出量は気象条件の影響を強く受けていたが、人為起源の 排出量の変動はNO_xと同様であった。このように、<u>COVID-19蔓延の影響を受けた期間についても、特異</u> 的な排出量の減少を表現した排出インベントリを構築することができ、サブテーマ2と4に提供し た。

最終的に、2000年~2021年の22年間にもわたる長期間を対象に、国内外の全ての発生源について排 出インベントリを構築するだけではなく、大気質シミュレーションへの入力ファイルの形式に変換す るための係数類(図1-2)と変換後の入力ファイルも全て取り揃えることができた。いずれも詳細を記

9

<u>述した説明文書を用意しており、準備ができ次第、ウェブサイト上で一般に公開する予定である。</u>

本研究が構築した長期の排出インベントリは日本国内でもこれまでに例がなく、国際的にも注目さ れている。長距離越境大気汚染条約のTask Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP) では、大気質シミュレーションなどを利用して越境大気汚染の解析を行っており、そのために必 要となるHTAP排出インベントリのversion 3に、本研究が構築した排出インベントリが組み込まれた (成果番号4)。また、アジアにおける大気質モデル・化学気候モデル間相互比較研究(Model Inter-Comparison Study for Asia (MICS-Asia))では、アジア域におけるモデル間相互比較が行われてお り、そのために必要な排出インベントリであるMIXv2にも、本研究が構築した排出インベントリが組み 込まれた (成果番号6)。さらに、北東アジアにおける将来の気候変動と大気汚染対策シナリオについ て研究を行うDevelopment of a collaborative, integrated management framework to improve future air quality in Northeast Asia (AQNEA) プロジェクトにおいても、本研究で構築した排出イ ンベントリが採用されている。本研究で新たに開発した長期排出インベントリが、これらの国際共同 研究プロジェクトにも生かされている。

(b) サブテーマ3

2013年から都市域(千葉)と郊外(つくば)において実施している地上分光計測を継続し(図3-1)<u>11年間にもおよぶ長期連続データセットを確立させることができた</u>(成果番号8を拡張、図3-3)。年平均NO2濃度はつくばよりも千葉の方が高かったが、年平均HCHO濃度は千葉よりもつくばの方が 高かった(成果番号8を拡張、図3-4)。オゾン濃度は、7月と8月を除き、千葉とつくばで同程度であっ た。千葉において、NO2とHCHOの濃度は年率6~10%の速度で急激に減少していたが、オゾンの濃度には 有意な減少は認められなかった(成果番号8を拡張、図3-5)。NO_xやVOCの減少に伴って起きたであろう オゾンの光化学的生成の減少分が、NOタイトレーションによるオゾン消費の減少分によって打ち消され たと考えられる。NOタイトレーションがオゾン濃度を決定する上で顕著な役割を果たしていること、さ らには、オゾンの生成がVOCで律速されている(VOC-sensitiveの領域)ことがわかった。一方、つくば においては、オゾン濃度に有意な減少トレンドが見出され、NO_x-sensitiveの領域にあると考えられ る。このようなオゾン感度レジームの経年的・空間的な傾向を、地上分光計測から直接示すことがで きた。計測で得られたHCH0/NO2濃度比は、VOC-sensitive領域にある千葉では1以下の値を示すこと、 NO_x-sensitive領域にあるつくばでは2以上という高い値を示すことがわかり、感度レジーム判定のため の文献値とよく一致していた。2013年以降、千葉におけるHCH0/NO2濃度比が減少から増加に転じ、NO_xsensitive領域にシフトする傾向があることもわかった。直近の3年間について考察してみると、2021~ 2022年の間は、NO₂、HCHO、オゾンのいずれにも有意な変化は認められなかったが、2022~2023年の間 では、N02濃度は減少したがHCH0濃度が千葉とつくばの両地点で増加した。2023年夏季は「地球沸騰 化」として注目されるほどの猛暑の影響により、植物起源VOCが増加し、HCHO濃度も増加した可能性が ある。

越境汚染の影響を千葉などの東日本よりも強く受ける福岡県春日市においてもMAX-DOASによる観測 を継続し、直近10年間の長期連続データセットを構築することができた。春日においてもNO₂とHCHO濃 度が千葉と同様に長期的に減少していた(図3-6)。HCHO/NO₂濃度比についても1以下の値を示し、近年 は増加に傾向して、NO_x-sensitive領域へのシフトが起きていることを支持する結果を示した。一方、 2014~2019年の期間では、春日と千葉の間にオゾン濃度の顕著な違いが見られ、春日のオゾン濃度は千 葉よりも約10 ppbv高かった。春日が大陸に近いこと、また、COVID-19が発生した2020年にオゾン濃度 が急に減少したことから、この10 ppbvの差のうち少なくとも一部は、中国など大陸からの越境汚染の 寄与と考えられる。

COVID-19蔓延の影響を強く受けた期間にも着目し、MAX-DOASに加え、衛星計測、現場観測、再解析 データ、ボックスモデルシミュレーションを組み合わせて、首都圏におけるNO₂、HCHO、オゾン濃度の 時空間変動を調べた。2020年1年間ではNO₂濃度は約10%減少し、緊急事態宣言下では40%を超える減少を 示した地域もあったことが分かった(成果番号14)。他方、HCHOとオゾンの濃度変化は小さかったこと も分かった。さらに、2020年の都市域では、N0₂とHCHOのウィークエンド効果(日曜日と平日の値の 差)が顕著に大きくなったことが見出され、他国と違って異常なほど減少した日本の週末のモビリティ (人流)と同期していることが分かった(成果番号14、図3-7)。対策とオゾン化学の理解を深めるた めに、機械学習を用いて日スケールでの変動についても解析を行った。各種気象データを説明変数とし て機械学習で計算されたN0₂濃度に比べて、2020年の4月下旬から5月末にかけてN0₂濃度観測値が有意に 低くなり、6月にも再び観測値が減少した(成果番号16、図3-8)。非常事態宣言下でN0₂濃度の有意な 減少が続いたことが示唆され、サブテーマ1が推計したN0_x排出量の傾向とも整合していた。空間的に 見ると、同期間のN0₂濃度は関東地方全域で低下していた一方、オゾン濃度は主要な市街地では上昇、 郊外や地方では低下の傾向が見られた(成果番号16、図3-9)。<u>MAX-DOASによる地上分光計測が、</u> <u>COVID-19蔓延のような特異的な影響を受けた日単位での濃度変動の解析にも有用であることが実証さ</u> れた。

長期観測に加え、2021年7月26日~8月8日に集中観測を千葉大学で実施した。通常4台のMAX-DOASに1 台(北東の視線方位)追加し、合計5台による同時計測などから観測誤差を評価した。追加した北東の 濃度データは、既存の北と東の間の数値を取ることが多く、他の4台のデータに比べて逸脱する傾向も 示さなかったことから、4台のシステムによる空間代表性が担保された。NO2濃度は朝方に高く、日中に 減少、夕方に再上昇するという特徴的な日変化を示した(図3-10)。市街地や工場が多く存在する南方 向に観測視線を向けたMAX-DOASは系統的に高い濃度を示し、想定されるNO_x排出量の分布と整合してい た。雷起源のNO_xによる影響をうかがわせる日もあったが、長期的に見れば、サブテーマ4による衛星 計測に基づくオゾン感度レジームの議論に対する雷起源のNO_xの影響はかなり小さいことが示された。

(c) サブテーマ4

2005年から継続して利用できるOMI衛星計測データのNO₂およびHCHO鉛直積算濃度のグリッド化データ を入手した。HCHO鉛直積算濃度については、先行研究よりもノイズを軽減したデータを作成した。HCHO 鉛直積算濃度をNO2鉛直積算濃度で除することで、両者の比 (FNR) を導出した。FNRを用いたオゾン感 度レジームの判定については、先行研究に準じて、FNR < 1.0をVOC-sensitive、1.0 < FNR < 2.0を遷 移領域、2.0 < FNRをNOx-sensitiveと設定し判別に用いた。2005-2019年までの15年分のデータを平均 した東アジア域のFNRは、NO2濃度が高い都心部で値が小さくVOC-sensitiveと判定され、郊外では遷移 領域、そしてリモート域ではNO_x-sensitiveと判定された(成果番号18、図4-1)。この結果は、これま でに確立されていたオゾン感度レジームの概念と一致するものであり、**衛星計測データからもオゾン** 感度レジーム判定が可能であることが確認できた。2005-2019年の15年間では、FNRが概ね増加傾向に あり、東アジアスケールで緩やかにNO_x-sensitiveへと推移したことが衛星計測データの解析から示さ れた(成果番号18、図4-2)。また、日本の大都市圏(東京・大阪・名古屋)においても、徐々にN0xsensitiveへと推移したことが衛星計測データの解析結果から解明され(成果番号18、図4-3)、サブテ ーマ3の地上分光計測で得られた傾向とも整合していた。オゾン感度レジームの長期的な変化と排出量 変化の対応関係を検証したところ、人為起源のNO_x排出量とNO₂鉛直積算濃度は対応関係が明瞭であっ た。一方で、人為起源NMVOC排出量とHCHO鉛直積算濃度は対応しない部分が見られ、植物起源NMVOC排出 量の傾向が影響していたことが示唆された(成果番号18、図4-4、図4-5、図4-6)。オゾン感度レジー ムのNO_x-sensitiveへの推移の要因として、人為起源NO_x排出量が減少したことと、人為起源NMVOC排出 量が減少したために植物起源NMVOC排出量の重要性が相対的に増しており、植物起源NMVOC排出量も影響 したことが解明された。このように、衛星計測からもオゾン感度レジームの長期的な傾向を明らかに することができ、その傾向はサブテーマ2で実施した大気質シミュレーションと整合していることも わかった(成果番号100、図4-7)。

地表面濃度と鉛直積算濃度の再現性が検証できたシミュレーションの結果も援用することにより、 衛星計測データから得られる鉛直積算濃度から地表面濃度を推定することを検討した。シミュレーショ ンに基づく地表面濃度と鉛直積算濃度の比をSurface to Column Ratio (SCR)と定義した。15年平均値 に基づく地表面濃度および鉛直積算濃度は排出量に対応し、大陸上や都市圏で高濃度となるが、その比 であるSCRとしてみてみると、HCH0とN0₂ともに空間的にほぼ一様である特徴が得られた(成果番号 100、図4-8)。より詳細な時間変化も検討したところ、HCH0のSCRについては、年間を通じて変動が小 さく、さらには2005、2010、2015年の年々変動も小さかった(成果番号100、図4-9)。N0₂についても 同様に、SCRには月変動や年々変動も見られなかった(成果番号100、図4-10)。サブテーマ4で取り組 んだ**衛星計測データの解析と排出インベントリおよびシミュレーションを統合することにより、準リ** アルタイムで得られる衛星計測データから地表面濃度を汎用的に推定できる可能性を示している。 鉛 直積算濃度として得られていた衛星計測データの新しい利用可能性を展開できる結果を得ることができ た。

これらに加えて、現実に起こった劇的な排出量変化事例として、COVID-19の影響を受けた期間を対 象にオゾン濃度の変化を評価した。この事例解析においては、サブテーマ2で実施されたシミュレーシ ョン結果をサブテーマ間で共有するとともに、排出量に対する感度実験も追加で実施した。シミュレー ションは、日中平均値の月平均値や日中最大値の月最大値のオゾン濃度を良好に再現した(図4-11)。 4月には2019年と2020年とで日中平均値の月平均値や日中最大値の月最大値のオゾン濃度に大きな差は 見られなかったが、5月には2019年と比して2020年にオゾン濃度が大きく減少しており、COVID-19の大 気環境への影響が示唆された。しかしながら、気象場の年々変動もオゾン濃度に大きな影響を及ぼす要 因である。同一の排出量を用い、2019-2020年の4-5月の気象場の変化によるオゾン濃度の変化を評価し たところ、4月については日中平均値の月平均値と日中最大値の月最大値ともに前年と比して増減があ り(図4-12)、5月については日本のほぼ全域で減少したことが示され(図4-13)、日射量の増減に対 応していた(図4-14)。また、COVID-19に伴う排出量変化がわが国のオゾン濃度に及ぼした影響を評価 したところ、日中平均値の月平均値については、一般にVOC-sensitiveである都市域においては、NO_x排 出量減少によってNOタイトレーションの効果が弱まってしまうため、オゾン濃度は増加してしまう結果 となった一方で、郊外や遠隔域の広範囲にわたっては、前駆体の排出量減少のためにオゾン濃度は減少 した(図4-15)。また、日中最大値の月最大値を見ると、排出量減少が日本のほぼ全域でオゾン濃度の 減少に寄与したことが明らかとなった。COVID-19の影響によるオゾン濃度の変化は、都市域と郊外・ **遠隔域、平均値と最大値といった異なる空間・時間スケールで多角的に評価をする必要がある**ことが 示された。

(d) サブテーマ2

オゾン(0₃)濃度変化の諸要因、すなわち気象条件、越境輸送、各種対策等による国内排出量の経年 変化を考慮して、2000~2020年の長期大気質シミュレーションを実施した。気象場(気温、風速、降水 量)の経年変化は非常に良好に再現された(図2-2)。バックグラウンド(隠岐、与那国島、南鳥島) における03月平均濃度の変化も、計算期間を通して良好に再現された(図2-3)。関西・関東域におけ るNO2濃度は系統的に過小評価となったが、季節変動の傾向は良好に再現された(図2-4、図2-5)。03 濃度の8時間値の日最高値(MDA8)については、関西・関東域ともに系統的に、特に寒候期に過大評価 となったが、年平均値の微増〜横ばい傾向や年々変動については良好に再現された。季節別には、冬季 における経年的な増加傾向、春季における横ばい~微増傾向、夏季における年々変動および長期的な減 少傾向が良好に再現された(図2-6)。高濃度時に相当する年間上位10日平均MDA8 03濃度については、 関西・関東域ともに濃度絶対値がほとんどの年できわめて良好に再現され、経年変化についても良好に 再現された(図2-7)。夏季平均の場合と概ね同様に、大きな年々変動とともに長期的な減少傾向を示 しており、特に関東で減少幅が大きくなった。オゾン感度レジームについてサブテーマ3による観測結 果と比較したところ、千葉ではVOC-sensitiveの頻度が高く、つくばではNO_x-sensitiveの頻度が高いと いう地域差が整合していた(図2-9)。VOC-sensitiveからNO,-sensitiveに移行しつつある傾向につい てはサブテーマ4とも整合していた。本研究で実施した長期大気質シミュレーションは、実大気と整 合的な年平均・季節平均・高0。濃度とオゾン感度レジームの経年変化を表現できており、諸要因の寄与 を評価するための基準として適切であると判断できた。

複数のシミュレーション(表2-2)を実施し、国内全部門排出、気象場、越境輸送、国内VOC蒸発排

出、国内自動車排出、国内大規模固定燃焼排出、国内その他排出の寄与を評価した。年平均NO2濃度の 経年的な減少は、ほぼ全て国内排出量の経年的な減少の寄与によって説明できた(図2-11)。年平均 MDA8 03濃度の経年的な微増傾向に対しては、国内排出と越境輸送が同程度に寄与していた。自動車お よびその他部門のNo_x排出量減少に伴うNOタイトレーション効果の減少が0₃濃度増加に寄与していた。 季節別に見ると、冬季の明瞭な経年的増加については、自動車およびその他部門のN0x排出量減少に伴 うN0タイトレーション効果減少による0₃濃度増加の寄与が支配的であった(図2-12)。春季の増加傾向 については国内排出と越境輸送が同程度に寄与していた。夏季における経年的な減少傾向は、ほぼ国内 排出量の経年的な減少の寄与であり、部門別にはVOC蒸発の寄与が支配的であった。夏季における年々 変動については、気象場の寄与の年々変動と概ね対応した。同様に、経年的な年間上位10日平均03濃度 減少はほぼ国内排出量の経年的な減少によるものであり、年々変動はほぼ気象場の年々変動によるもの であった(図2-13)。国内排出の部門別には、VOC蒸発排出量減少の寄与が支配的ではあるが、自動車 排出量減少についても夏季平均に比べると寄与率が高くなった。主要都市圏周辺においてはVOC蒸発排 出量減少の影響が大きい一方、自動車排出量減少の影響はより広域的に確認され、主要都市圏中心部に おけるNO_x排出量減少が、風下地域におけるO₃生成量減少につながっていることが示唆された(図2-14)。このように、03濃度の平均値および高濃度の長期的な傾向に対する諸要因の寄与を長期大気質シ ミュレーションで明らかにすることができ、国内における対策が03高濃度の低減に有効に寄与してきた

<u>ことが実証された。</u>

日本における高濃度0₃に対しては越境輸送の影響も大きいため、地域的な高濃度0₃に対する国内の原 因物質の対策効果を評価する手法について検討した。MDA8 0₃濃度の年間上位10日の出現状況から、4~ 5月の高濃度0₃は越境輸送による広域的な汚染が支配的であり、7~8月の高濃度0₃は地域的な光化学生 成および海陸風循環での蓄積が支配的であることが示唆された(図2-17、図2-18、図2-19)。地域寄与 が大きい場合の高濃度に対する国内排出量減少の効果は、年間上位10日の場合よりもやや大きくなり、 越境輸送の影響を受けやすい関西で効果の上昇幅がより大きくなった(図2-20)。また、国内排出の部 門別でも年間上位10日の場合との違いがあり、NO_x排出量減少をもたらす自動車、大規模固定燃焼、そ の他部門の排出量経年変化による濃度低減の寄与が大きくなった。これは、地域寄与を考慮すること で、NO_xが関与する地域的な光化学生成および海陸風循環での蓄積の影響がより反映された結果である と考えられる。

サブテーマ2で実施した、2000~2020年の21年間にわたる長期間を対象とした大気質シミュレーションは他に例がなく、大気汚染物質濃度の長期的な変動傾向を解析できる貴重なデータセットとして 注目されており、既に行政や他の研究に計算結果を提供して活用されている。

(e) 本研究課題全体

最後に、本研究課題の全体目標に対して得られた成果をまとめる。本研究課題では、大気質シミュ レーションを用い、対策等による原因物質の排出量の変化に伴う過去の実際のオゾン濃度の経年変化を 表現できることが科学的に裏付けられた、対策効果の評価手法を開発することを目標に掲げていた。ア メリカ環境保護庁によるガイドラインでは、オゾン濃度環境基準の達成判定値に対し、シミュレーショ ンで対策有無の場合のオゾン濃度を予測し、年間上位10日において予測された平均的な濃度低減率を乗 じることで、対策による環境基準の達成を判定すると定められている。本研究課題においても、アメリ カ環境保護庁によるガイドラインを出発点とし、年間上位10日におけるオゾン濃度計算値の変化に着目 したところ、濃度絶対値とその経年変化がきわめて良好に再現された(図2-7)。この結果は、<u>日本に おいても、アメリカ環境保護庁によるガイドラインと同様の評価手法を適用できる</u>ことを示すもので ある。ただし、注意を要する点が2つある。一つは、年間上位10日におけるオゾン濃度の年々変動に対 する気象条件の影響が大きく(図2-13)、その変動幅は排出量の変化によるオゾン濃度の変化幅を上回 ることである(図2-15)。したがって、気象場の特徴を解析したり、複数年における気象場を用いて評 価を行ったりすることにより、**評価に用いる気象場が特異的ではないことを示すことが好ましい**。も う一つの注意点は、越境輸送の影響である。アメリカ環境保護庁によるガイドラインでは、濃度低減率 を乗じることとされており、濃度の相対的な変化が重視されている。仮に、評価の対象日が越境輸送の 影響の大きい日であれば、国内発生源の排出量削減の影響は相対的に小さくなり、オゾン濃度の低減効 果が過小評価されてしまうことになる(図2-20)。国内発生源への対策効果を正当に評価するために は、予め感度実験などを行い、<u>越境輸送の影響の大きい日を評価対象日から除外することが好まし</u> い。

今後の対策のあり方として、まずは上記の評価手法に基づき、具体的に想定される対策について、 オゾン濃度の低減効果を評価することが望まれる。サブテーマ2で実施した長期大気質シミュレーショ ンの結果によれば、これまでに行われてきたVOC自主的取組や自動車排出ガス規制などの対策が高濃度 オゾンの低減に寄与しており、さらなる排出削減は高濃度オゾンの低減に有効であると考えられる。中 でも、VOCの削減は都市部、NO_xの削減は周辺部でのオゾン濃度の低減に有効であることがサブテーマ2 の長期大気質シミュレーションで示されており、サブテーマ3、4がそれぞれ地上分光計測と衛星計測 で見出したオゾン感度レジームの傾向とも一致している。長期的にVOC-sensitiveからNOx-sensitiveに 推移する傾向も各サブテーマで共通して見られており、今後はNO_xの排出削減の重要性が増すことが想 定される。ただし、特に光化学反応が活発ではない季節においては、NO_xの排出削減によるNOタイトレ ーションの抑制により、オゾン平均濃度が上昇することは不可避であると思われる。バックグラウンド において既に現在の環境基準(60 ppb)に近い濃度が観測されており(図2-3)、NOタイトレーション の抑制によりその濃度値に回帰するのは必然である。平均的なオゾン濃度を低減させる必要があるとす れば、バックグラウンド濃度を低減させることが重要であり、周辺各国で協調して濃度低減に取り組む ことが望まれる。 5-2. 研究目標の達成状況

<全体の達成状況>・・・・・・・・・・ <u>2. 目標を上回る成果をあげた</u>

「対策によるオゾン濃度低減効果の裏付けと標準的な将来予測手法の開発」

全体目標	全体の達成状況
 (アウトプット) 大気質シミュレーションを用い、対策等による原因物質の排出量の変化に伴う過去の実際のオゾン 濃度の経年変化を表現できることが科学的に裏付けられた、対策効果の評価手法を開発する。 (アウトカム) 今後の行政による対策立案における対策効果の標準的な評価手法として確立させ、対策によるオゾン ン濃度の確実な低減に貢献する。 	本研究課題で構築した長期排出インベントリを用 いた長期排出シミュレーションにより、対策など による原因物質の排出量の変化に伴う過去の実際 のオゾン濃度の経年変化を表現できることが科学 的に裏付けられ、今後の行政による対策効果の評 価手法としての有効性が実証された。また、下記に 示すように、サブテーマ毎に目標を上回る成果が 得られたことから、本研究課題全体としても、 <u>目標</u> を上回る成果をあげたと評価した。

<【サブテーマ1】達成状況>・・・・・・ <u>2. 目標を上回る成果をあげた</u>

「対策効果を表現可能な長期排出インベントリの開発」

サブテーマ1目標	サブテーマ1の達成状況
2000年以降の長期間を対象に、過去の対策や社会 要因等による排出量の経年変化を明示的かつ整合 的に表現し、シミュレーションによるオゾン濃度 の経年変化の再現を実現する排出インベントリを 新たに開発する。	1.2000年以降の長期間を対象に、過去の対策や 社会要因等による排出量の経年変化を明示的かつ 整合的に表現できる排出インベントリを新たに開 発し(成果番号3、図1-3)、オゾン濃度の経年変 化を良好に再現できることを実証できた。 2.2020年以降のCOVID-19蔓延の影響による特異 的な排出量の低下についても表現できるようにし た(成果番号5、図1-7)。 3.本研究で構築した長期排出インベントリが国 際共同研究プロジェクトにも組み込まれた(成果 番号4、6)。
	1. での目標達成に加え、2. と3. でも貴重な 知見が得られたことから、 <u>目標を上回る成果をあ</u> <u>げた</u> と評価した。

<【サブテーマ2】達成状況>・・・・・・ <u>2. 目標を上回る成果をあげた</u>

「長期大気質シミュレーションに基づく対策効果評価手法の確立」

サブテーマ2目標	サブテーマ2の達成状況
2000年以降の長期間を対象に、オゾン濃度変化の 諸要因を考慮したシミュレーションを実行し、常 時監視による光化学オキシダントならびにNO _x や非 メタン炭化水素等の関連物質濃度の経年変化との 整合性を裏付けることにより、標準的な対策評価 手法として確立させる。 VOC自主的取組、自動車排ガス対策、固定燃焼発 生源対策、越境輸送、気象条件といった各要因の オゾン濃度の経年的な変化に対する寄与を定量化 することで、今後の対策のあり方とシミュレーシ ョンの有効性を示す。	 長期大気質シミュレーションが、国内発生源 からの排出量、越境輸送、気象条件といった各要 因のオゾン濃度の経年的な変化に対する寄与の評 価に適用可能であることを示すことができた(図 2-12、図2-13)。 越境輸送や気象条件の影響に留意しつつ、亜 アメリカのガイドラインに準じた手法が、日本に おける対策効果の評価手法として適用可能である ことを示すことができた。 長期大気質シミュレーションの計算結果が、 大気汚染物質濃度の長期的な変動傾向を解析でき る貴重なデータセットとして活用されている。 と2. での目標達成に加え、3. でも成果を 上げることができたことから、目標を上回る成果 をあげたと評価した。

<【サブテーマ3】達成状況>・・・・・・ <u>2. 目標を上回る成果をあげた</u>

「地上分光計測に基づいた排出対策効果の検証」

サブテーマ3目標	サブテーマ3の達成状況
都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分光計 測(MAX-DOAS法)からリトリーバルされた大気境 界層内のNO ₂ 、HCHO、オゾン濃度の直近10年間もの 長期連続データセットを構築し、各成分の年々変 動を明らかにすると共に、実大気におけるオゾン 感度レジームを導出し、オゾン濃度低減に対する NO _x とVOCの排出削減の有効性を地上分光計測から 定量的に検証する。	 都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分 光計測(MAX-DOAS法)からリトリーバルされた大 気境界層内のNO₂、HCHO、オゾン濃度の直近11年間 (当初計画は10年間)の長期連続データセットを 構築した。加えて、当初の計画を超えて、越境汚 染の影響を比較的強く受ける福岡県春日市につい ても直近10年間の長期連続データセットを構築す ることができた(成果番号8を拡張、図3-5、図3- 6)。 各成分の年々変動を明らかにすると共に、実 大気におけるオゾン感度レジームを導出できた。 加えて、当初の計画を超えて、直近を含む独自の 長期連続データを活かし、機械学習等を組み合わ せてCOVID-19の影響や地球沸騰化との関連も議論 した(成果番号14、成果番号16、図3-7、図3- 8)。 オゾン濃度低減に対するNO_xとVOCの排出削減 の有効性を地上分光計測から定量的に検証でき た。 全ての項目における目標達成に加え、1.と2. では目標を超える貴重な知見が得られたことか ら、<u>目標を上回る成果をあげた</u>と評価した。

< 【サブテーマ4】 達成状況>・・・・・・ 2

<u>2. 目標を上回る成果をあげた</u>

「衛星計測に基づいた排出対策効果の検証」

 衛星計測によるNO₂とHCHO鉛直積算濃度の比から、 実大気におけるオゾン感度レジームを導出し、時 空間的な変動を解明することで、オゾン濃度低減 に対するNO_xとVOCの排出削減の有効性を衛星計測 から定量的に検証する。 1. 衛星計測データを解析し、東アジアスケール でオゾン感度レジームが緩やかにNOx-sensitive へと推移したことを明らかにできた(成果番号 18、図4-2)。 シミュレーションと衛星計測データとを統合 的に解析し、地表面近傍と鉛直積算濃度を対応づける比は時空間的に一様であることを明らかにで さた(成果番号100、図4-9、図4-10)。 COVID=10の影響による批出量の変化だけでけ 	サブテーマ4目標	サブテーマ4の達成状況
3. confb 150 影響による排出量の変化だけでは なく、気象条件などによるオゾン濃度変化の時空 間的な変化傾向を明らかにできた(図4-15)。 1. での目標達成に加え、2. と3. でも貴重な 知見が得られたことから、 <u>目標を上回る成果をあ</u>	衛星計測によるNO ₂ とHCHO鉛直積算濃度の比から、 実大気におけるオゾン感度レジームを導出し、時 空間的な変動を解明することで、オゾン濃度低減 に対するNO _x とVOCの排出削減の有効性を衛星計測 から定量的に検証する。	 衛星計測データを解析し、東アジアスケール でオゾン感度レジームが緩やかにNOx-sensitive へと推移したことを明らかにできた(成果番号 18、図4-2)。 シミュレーションと衛星計測データとを統合 的に解析し、地表面近傍と鉛直積算濃度を対応づける比は時空間的に一様であることを明らかにで きた(成果番号100、図4-9、図4-10)。 COVID-19の影響による排出量の変化だけでは なく、気象条件などによるオゾン濃度変化の時空 間的な変化傾向を明らかにできた(図4-15)。 での目標達成に加え、2.と3.でも貴重な 知見が得られたことから、目標を上回る成果をあ ばをし辺伝した

5-3. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献

<得られた研究成果の学術的意義>

本研究課題において最も学術的意義の大きい研究成果は、対策によるオゾン濃度の低減効果を評価 するための手法を確立させたことである。大気質シミュレーションの結果から、オゾンの平均濃度と高 濃度では原因物質の排出量の変化による応答が異なること、季節によっても応答が異なることなど、原 因物質の排出量とオゾン濃度の関係は複雑であることが示された。よって、手法の違いによって、結果 に大きな違いが生じてしまうことが懸念される。本研究で確立した統一的な手法に基づいて、対策効果 の評価が行われるようになれば、手法の違いによる問題を回避し、オゾンの濃度変化に対する理解がよ り深まり、結果として有効な濃度低減策の立案に貢献することが期待される。

サブテーマ1が新たに開発した、2000~2021年という22年間の長期間を対象とし、日本国内の全て の発生源から排出される大気汚染原因物質の排出量を高解像度(1×1 km)で取り揃え、さらには対策 と活動量の変化による影響を別個に評価できるようにした排出インベントリは、日本国内ではこれまで に存在しないものであり、学術的にも意義が大きいものである。これによってはじめて、対策による原 因物質の排出量の変化が、大気汚染物質の濃度にどう影響を及ぼしてきたのか、評価することが可能と なった。その意義は国際的にも評価されており、複数の国際共同研究プロジェクトで整備が進められて いる排出インベントリにも組み込まれている。今後、これらのプロジェクトの学術的な目的の達成にも 貢献することが期待される。

サブテーマ1が開発した長期排出インベントリを使用して、サブテーマ2が実行した長期大気質シ ミュレーションも、日本国内ではこれまでに例のないものであり、学術的に意義が大きい。アジア域か ら関東域・関西域までの4領域を対象とし、各要因の影響を切り分けるために複数ケースについて実行 したシミュレーションにより、長期的なオゾン濃度の経年変化に対する各要因の影響とその空間的・時 間的な違いを、本研究ではじめて明らかにすることができた。

サブテーマ3では、MAX-DOAS法による地上分光計測を継続して行い、独自のアルゴリズムによっ て、HCH0、NO₂、オゾンなどの濃度の長期連続データセットを構築することができた。また、サブテー マ4では、衛星計測データに独自のスクリーニング手法を適用するなどして、HCH0、NO₂などの濃度の 長期的な傾向を明らかにすることができた。いずれも、HCH0とNO₂の比で表現されるオゾン感度レジー ムの経年変化を評価する上で、学術的に有用であることを示すことができた。地上分光計測では地点は 限られるが連続的にデータが得られること、衛星計測では面的な濃度分布が得られるが軌道の通過時間 に限られるなどの長所と短所があるが、両者を組み合わせることにより短所を補い、より有意義なデー タを得ることが可能となった。さらに、大気質シミュレーションの計算結果も組み合わせることによ り、地表面とカラム濃度との関係をサブテーマ4において明らかにすることができ、地上分光計測と衛 星計測、さらに大気質シミュレーションを結びつける重要な知見を得ることができた。

COVID-19の蔓延に伴う経済活動や人々の移動の制限による排出量の減少は、急激な排出量の削減に よる大気汚染物質濃度への影響を実大気で評価できる貴重な機会でもある。本研究では、COVID-19の蔓 延が始まった2020年以降を対象に、サブテーマ1における排出インベントリの構築、サブテーマ3にお ける地上分光計測とその解析、サブテーマ4における大気質シミュレーションによる解析を行い、期間 中のオゾン濃度変化について概ね整合的な傾向を得ることができた。排出量の変化によるオゾン濃度へ の影響を評価する上で、それぞれの要素が学術的に有用であることを示すことができた。

<行政等に既に貢献した成果>

研究代表者の茶谷は、環境省の光化学オキシダント等総合対策推進業務に係る光化学オキシダント 等総合対策推進検討会の検討委員、およびその下に設置された有識者ワーキンググループにおいては座 長を務め、本検討会において光化学オキシダント等総合対策を検討するために実行した大気質シミュレ ーションに対して、本研究課題で得られた知見を基に助言を行い、シミュレーションによる過去および 将来の対策の有効性の評価に貢献した。

研究代表者の茶谷は、環境省の大気汚染物質排出インベントリ検討会およびインベントリ検討WGの 検討委員を務め、本研究課題で得られた知見を基に助言を行い、環境省の大気汚染物質排出インベント リ(旧PM2.5排出インベントリ)およびVOC排出インベントリの改良と拡張に貢献した。

研究代表者の茶谷と研究分担者の板橋が2022年9月に開催された第9回大気汚染に関する日中韓三カ 国政策対話、研究代表者の茶谷が2023年9月に開催された第10回同政策対話に出席して、本研究課題に おける実施内容と成果について紹介するとともに、日中韓における大気環境上の課題について中韓両国 の専門家と議論を行い、その結果は日中韓三カ国環境大臣会合にも報告された。また、研究代表者の茶 谷は、北東アジアクリーン・エアー・パートナーシップ(NEACAP)が主催し、2023年9月に韓国ソウル で開催されたSymposium on Air Pollutant Emissions Inventory and Air Quality Managementにおい ても、本研究課題における実施内容と成果について紹介した。これらにより、大気環境改善に向けた日 中韓三カ国間の協力関係の強化に貢献した。

サブテーマ2で実行した長期大気質シミュレーションの計算結果は、長期的な大気質の変動傾向を 解析するために貴重なデータであるとして、環境省の越境大気汚染・酸性雨対策検討会の大気モニタリ ングデータ解析WGから要請を受けてデータを提供し、その解析内容が2023年度末にとりまとめられた越 境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書に掲載された。

<行政等に貢献することが見込まれる成果>

本研究課題において確立させた、対策によるオゾン濃度の低減効果を評価するための手法は、オゾ ン濃度を有効に低減させる対策の立案に大いに貢献しうるものである。既に環境省の検討会において、 大気質シミュレーションを実行し、過去や将来の対策によるオゾン濃度の低減効果が検討されている が、評価手法が定まっていないために、濃度再現性の評価や、計算結果の解釈などに労力を要し、想定 する結果がうまく得られないなどの問題が生じている。確立させた手法に則って評価が行われるように なれば、より効率的かつ有効に、対策の立案に資する知見を得ることができるようになることが見込ま れる。

また、本研究課題において実行した大気質シミュレーションによって得られた知見も、今後の有効 な対策を立案する上で重要な知見となり得る。これまでに、VOC自主的取組の目標を満たす排出削減が 行われたにもかかわらず、オゾン濃度が思うように低減せず、これまでの対策の実効性が問われてい た。しかしながら、本研究において、VOC自主的取組や自動車の排出ガス規制によってオゾンの高濃度 が確実に低減されたことが示され、これらの対策の有効性が実証された。

本研究で開発した長期排出インベントリも、対策効果を評価する上で重要である。これまでの対策 による排出削減への効果を評価するために、環境省の大気汚染物質排出インベントリ(旧PM2.5排出イ ンベントリ)においても、排出量の遡及改訂に関する検討が行われているが、まだ過去の排出量の公表 には至っていない。本研究で得られた知見を提供することにより、行政においても対策効果の評価に資 する長期排出インベントリが整備されることが期待される。

本研究において、HCHOとNO₂の比で評価されるオゾン感度レジームが、サブテーマ2の長期大気質シ ミュレーション、サブテーマ3の地上分光計測、サブテーマ4の衛星計測の間で傾向が整合しているこ とが明らかになった。今後もHCHOとNO₂の計測を継続し、評価されるオゾン感度レジームから、対策に よるNO_xとVOCの排出削減がどの地域のオゾン低減に有効であるかを明らかにすることができると考えら れる。

本研究で実行した長期大気質シミュレーションの入出力データは、全て一般に公開する予定であ る。大気質シミュレーションを実行するための入力データの作成には、多大な労力を要する。本研究で 得られた入力データを利用することにより、入力データの作成に要する労力を減らし、シミュレーショ ンの実行の敷居を下げることが期待される。また、出力データも公開することにより、自分自身でシミ ュレーションを実行しなくても、これまでの長期的な大気汚染物質の濃度の傾向を明らかにすることが できる。これによって、常時監視局の適正配置など、さまざまな行政課題や研究課題の解決に資するこ とができると考えられる。

現在、気候変動に関する政府間パネル(IPCC)においては、短寿命気候強制因子(Short-lived Climate Forcers; SLCF)に関する排出インベントリの構築に向けた方法論の報告書の策定を進めよう としており、研究代表者の茶谷は報告書執筆者としてノミネートされている。執筆者に選定されれば報 告書に直接貢献できるが、選定されなくても、環境省の委員会や、国立環境研究所が外部の関係者と連 携して組織している排出インベントリに関する連携研究グループを通して、本研究課題で得られた成果 を以て貢献することが見込まれる。

6. 研究成果の発表状況の概要

6-1. 成果の件数

成果の種別	件数
査読付き論文:	19
査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野):	0
その他誌上発表(査読なし):	4
口頭発表(国際学会等・査読付き):	17
ロ頭発表(学会等・査読なし):	61
知的財産権:	0
「国民との科学・技術対話」の実施:	8
マスコミ等への公表・報道等:	4
研究成果による受賞:	3
その他の成果発表:	1

6-2. 主な査読付き論文等の主要な成果

-

成果 番号	主要な成果(10件まで)
2	北山響,茶谷聡(2023). 自動車排出ガス規制による大気汚染物質の排出量削減効果の評価. 土木学会論文集,79(5),22-00216. https://doi.org/10.2208/jscejj.22-00216
3	Chatani, S., Kitayama, K., Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H. (2023). Effectiveness of Emission Controls Implemented Since 2000 on Ambient Ozone Concentrations in Multiple Timescales in Japan: An Emission Inventory Development and Simulation Study. Science of the Total Environment, 894, 165058. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058
4	Crippa, M., Guizzardi, D., Butler, T., Keating, T., Wu, R., Kaminski, J., Kuenen, J., Kurokawa, J., Chatani, S., Morikawa, T., Pouliot, G., Racine, J., Moran, M.D., Klimont, Z., Manseau, P.M., Mashayekhi, R., Henderson, B.H., Smith, S.J., Suchyta, H., Muntean, M., Solazzo, E., Banja, M., Schaaf, E., Pagani, F., Woo, J.H., Kim, J., Monforti-Ferrario, F., Pisoni, E., Zhang, J., Niemi, D., Sassi, M., Ansari, T., Foley, K. (2023). The HTAP_v3 Emission Mosaic: Merging Regional and Global Monthly Emissions (2000-2018) to Support Air Quality Modelling and Policies. Earth System Science Data, 15 (6), 2667-2694. https://doi.org/10.5194/essd-15-2667-2023
5	北山響, 茶谷聡 (2023). 排出量の時間変動・月変動・COVID-19パンデミック時の変動を評価 するための活動量の周期変動解析. 大気環境学会誌, 58 (6), 87-98. https://doi.org/10.11298/taiki.58.87
6	Li, M., Kurokawa, J., Zhang, Q., Woo, JH., Morikawa, T., Chatani, S., Lu, Z., Song, Y., Geng, G., Hu, H., Kim, J., Cooper, O.R., McDonald, B.C. (2024). MIXv2: A Long-Term Mosaic Emission Inventory for Asia (2010–2017). Atmospheric Chemistry and Physics, 24, 3925–3952. https://doi.org/10.5194/acp-24-3925-2024, 2024.
8	Irie, H., D. Yonekawa, A. Damiani, H. M. S. Hoque, K. Sudo, and S. Itahashi, Continuous multi-component MAX-DOAS observations for the planetary boundary layer ozone variation analysis at Chiba and Tsukuba, Japan from 2013 to 2019, Progress in Earth and Planetary Science, 8, 31, https://doi.org/10.1186/s40645-021-00424-9, 2021.
14	Damiani, A., H. Irie, D. A. Belikov, S. Kaizuka, H. M. S. Hoque, and R. R. Cordero, Peculiar COVID-19 effects in the Greater Tokyo Area revealed by spatiotemporal variabilities of tropospheric gases and light-absorbing aerosols, Atmos. Chem. Phys., 22, 12705–12726, https://doi.org/10.5194/acp-22-12705-2022, 2022.
16	Damiani A., H. Irie, D. Belikov, R. Cordero, S. Feron, and N. N. Ishizaki, Air quality and urban climate improvements in the world's most populated region during the COVID-19 pandemic, Environmental Research Letters, 19, 3, https://doi.org/10.1088/1748-9326/ad25a2, 2024.
17	Itahashi, S., Irie, H. (2022). Surface and Aloft NO ₂ Pollution over the Greater Tokyo Area Observed by Ground-Based and MAX-DOAS Measurements Bridged by Kilometer- Scale Regional Air Quality Modeling. Progress in Earth and Planetary Science (PEPS), 9, 15. https://doi.org/10.1186/s40645-022-00474-7
18	Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H., Chatani, S. (2022). Fifteen-Year Trends (2005-2019) in the Satellite-Derived Ozone-Sensitive Regime in East Asia: A Gradual Shift from VOC-Sensitive to NOx-Sensitive. Remote Sensing, 14, 4512. https://doi.org/10.3390/rs14184512

7. 国際共同研究等の状況

<国際共同研究等の概要>

長距離越境大気汚染条約のTask Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP) で は、大気質シミュレーションなどを利用して越境大気汚染の解析を行っている。その新たなフェーズが 開始されようとしており、2024年5月に詳細について議論される予定になっている。それに先立ち、 Helmholtz Centre PotsdamのDr. ButlerやJoint Research CentreのDr. Crippaが中心となって、必要 となるHTAP排出インベントリのversion 3を新たに整備するにあたり、先方から研究代表者の茶谷に対 する依頼に基づき、本研究で開発した長期排出インベントリを提供し、日本部分を代表する排出量デー タとして組み込まれた。

東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia; EANET) の活動の一環として行われている、アジアにおける大気質モデル・化学気候モデル間相互比較 研究 (Model Inter-Comparison Study for Asia (MICS-Asia)) では、2021年から第4期が開始され、ア ジア域におけるモデル間相互比較が行われている。そのために必要な排出インベントリであるMIXv2 を、University of ColoradoのDr. Liが中心となって整備するにあたり、先方から研究代表者の茶谷に 対する依頼に基づき、本研究で開発した長期排出インベントリを提供し、日本部分を代表する排出量デ ータとして組み込まれた。

韓国のKonkuk UniversityのProf. Wooと国際応用システム分析研究所 (IIASA) のDr. Klimontが主 導し、北東アジアにおける将来の気候変動と大気汚染対策シナリオについて研究を行うDevelopment of a collaborative, integrated management framework to improve future air quality in Northeast Asia (AQNEA) プロジェクトが行われており、研究代表者の茶谷がIIASAからの委託の形で参加してい る。本研究で開発した長期排出インベントリを提供し、日本を代表する排出量データとして組み込まれ た。

University of North Carolina at Chapel Hillに設立され、本研究でも使用した領域化学輸送モデ ルCMAQの普及を行っているCommunity Modeling and Analysis System (CMAS) Centerでは、アジア域に おけるCMAQの展開を図るための国際会議を開催している。本研究においてもアジア域の研究者に対して 成果を展開するために、CMASと共催の形で、2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacificを 2023年7月に埼玉県さいたま市において開催した。アジア内外から121名の参加を得て、有益な研究交流 の機会を設けることができた。

機関名	国·地域名(本部所在地等)
Helmholtz Centre Potsdam (RIFS)	ドイツ連邦共和国
Joint Research Centre	イタリア共和国
University of Colorado	アメリカ合衆国
Konkuk University	大韓民国
国際応用システム分析研究所(IIASA)	オーストリア共和国
University of North Carolina at Chapel Hill	アメリカ合衆国

<相手機関·国·地域名>

8. 研究者略歴

<研究代表者略歴>

代表者氏名	略歴(学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等)
茶谷聡	名古屋大学大学院環境学研究科修了 博士(理学) 株式会社豊田中央研究所主任研究員を経て、 現在、国立研究開発法人国立環境研究所主幹研究員 専門は大気環境科学、研究テーマは排出インベントリと大気質シミュレーション

<研究分担者(サブテーマリーダー)略歴>

分担者氏名	略歴(学歴、学位、現職、研究テーマ等)	参画期間
1) 嶋寺光	大阪大学大学院工学研究科修了 博士(工学) 電力中央研究所特別契約研究員、 大阪大学特任助教、大阪大学助教を経て、 現在、大阪大学准教授 主に数値シミュレーションによる環境動態解析を研究	
2)入江仁士	名古屋大学大学院理学研究科修了 博士(理学) 国立環境研究所NIESポスドクフェロー、 海洋研究開発機構ポストドクトラル研究員、同研究員、 千葉大学特任准教授、同准教授を経て、 現在、千葉大学教授 主に、リモートセンシング技術を活用し地球大気環境変動研 究を推進	
3)板橋秀一	九州大学総合理工学府修了 博士(理学) 一般財団法人電力中央研究所環境科学研究所研究員を経て、 現在、一般財団法人電力中央研究所サステナブルシステム研 究本部主任研究員 主に数値モデル・衛星計測を用いて東アジアスケールの大気 環境変動を研究	

Ⅱ. 成果の詳細

Ⅱ-1 サブテーマ1「対策効果を表現可能な長期排出インベントリの開発」

[サブテーマ1要旨]

サブテーマ1では、2000年以降の長期間を対象に、過去の対策や社会要因等による排出量の経年変 化を明示的かつ整合的に表現し、シミュレーションによるオゾン濃度の経年変化の再現を実現する排出 インベントリを新たに開発することを目標とした。日本国内の主要発生源である自動車、大規模固定燃 焼発生源、VOC蒸発発生源のうち、自動車については、車両登録年別の排出係数と活動量を乗じて各年 の排出量を簡易的に推計し、得られた経年変化割合を、単年を対象に詳細な排出量推計が行われている 環境省PM2.5排出インベントリの排出量に乗じることによって、各年の排出量を算出した。大規模固定 燃焼発生源については、各年の排出量を本研究で独自に新たに推計した。必要となる排出係数の経年変 化については、環境省による大気汚染物質排出量総合調査などを解析して求めた。VOC蒸発発生源につ いては、環境省のVOC排出インベントリを利用したが、対策と活動量の変化による排出量への影響を別 個に評価できるようにするために、発生源別に定めた活動量で排出量を除することにより、排出係数を 算出した。自動車については、段階的な排出ガス規制の強化により、排出量が有効に削減されたことが 示された。大規模固定燃焼発生源とVOC蒸発発生源については、それぞれの対策に加えて、東日本大震 災やリーマンショックなどの社会的要因による活動量の変化も、排出量の経年変化に影響を及ぼしたこ とが示唆された。これらの主要発生源だけではなく、国内外の全ての発生源について、2000~2019年の 排出インベントリを取り揃え、サブテーマ2に提供した。2020年以降については、COVID-19の蔓延に伴 い、緊急事態宣言などが発令され、人々の移動や経済活動が制限されたことから、活動量に対して周期 変動解析を行い、通常時の月変動と、COVID-19蔓延の影響による特異的な活動量の減少量を抽出した。 特異的な活動量の減少は2020年5月頃に最も大きくなったことが示され、最初の緊急事態宣言が発出さ れて経済活動や人々の移動が制限された時期と一致した。本期間を対象とする排出インベントリは、サ ブテーマ2と4による解析に供した。2000~2021年を対象とする全ての発生源の長期排出インベントリ と、それらを全て大気質シミュレーションの入力ファイルの形式に変換したものを取り揃え、それぞれ の説明文書と併せて、一般に公開できるようにした。

本研究により、COVID-19蔓延の影響を受けた期間を含む2000~2021年の長期間を対象に、過去の対 策や社会要因等による排出量の経年変化を明示的かつ整合的に表現できる排出インベントリを新たに開 発し、オゾン濃度の経年変化を良好に再現できることがサブテーマ2と4のシミュレーションにより実 証された。このような長期排出インベントリはこれまで国内に実例がなく、国際的な研究プロジェクト で整備されている排出インベントリにも組み込まれた。このことから、目標を上回る成果が得られたと 評価できる。

1. サブテーマ1研究開発目的

本研究課題では、対策によるオゾン濃度の低減効果を大気質シミュレーションで評価するための標 準的な手法の開発と、現在まで蓄積されてきている地上・衛星計測に基づいた実際の大気質の経年変化 に基づき、評価手法の有効性を科学的に裏付けることを目的としている。サブテーマ1では、そのため に必要な長期排出インベントリを新たに開発することを目的とする。

2. サブテーマ1研究目標

サブテーマ1	「対策効果を表現可能な長期排出インベントリの開発」
サブテーマ1実施機関	国立研究開発法人国立環境研究所
サブテーマ1目標	2000年以降の長期間を対象に、過去の対策や社会要因等による排出量の経 年変化を明示的かつ整合的に表現し、シミュレーションによるオゾン濃度 の経年変化の再現を実現する排出インベントリを新たに開発する。

3. サブテーマ1研究開発内容

サブテーマ1では、過去の対策や社会要因などによる大気汚染原因物質の排出量の経年変化を明示 的かつ整合的に表現できる排出インベントリの構築を目標に掲げた。次式のように、排出量 E は活動 量 A と排出係数(単位活動量あたりの排出量) EF の積で表現されるものとした。

$E = A \times EF$

過去の対策による排出削減効果は排出係数の経年変化、社会要因等による影響は活動量の経年変化とし て表現し、2000年以降の排出量の経年変化の推計を行った。

1年目(令和3年度)には、VOC自主的取組と越境輸送について、過去の長期排出インベントリを構築 した。このうち、VOC自主的取組については、その進捗を評価するために、VOC蒸発発生源を対象とする VOC排出インベントリを環境省が整備しており、2000年以降のVOC排出量が報告されている。ただし、対 策と活動量の変化の影響は明示されておらず、それぞれの影響を個別に評価することができない。その ため、VOC排出インベントリの報告書や、VOC排出インベントリを利用している日本国温室効果ガスイン ベントリ報告書などを参考にして、発生源別に溶剤使用量などの代表的な活動量を定めて各年のデータ を収集し、VOC排出インベントリで報告されている排出量を割り戻すことによって、各年における排出 係数を算出した。

越境輸送の経年変化を表現するために、日本以外を対象とする長期排出インベントリを整備した。 日本以外のアジア各国の人為発生源には、Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 3.2.1 (Kurokawa and Ohara, 2020) を用いた。本インベントリで対象とされていない2016年以降につ いては、既往文献 (Zheng et al., 2018; Zheng et al., 2021) などを基に、各国別に2015年の排出量 に年次補正を施した。アジア以外の各国の人為発生源および日本以外の航空機と船舶には、Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) version 5.0 (本研究後半でversion 6.1に更 新) (Crippa et al., 2020) を用いた。日本以外の森林火災や野焼きなどのバイオマスバーニングに は、Global Fire Emissions Database (GFED) version 4.1s (van der Werf et al., 2017) を用い た。植物起源には、サブテーマ2より提供された2000年以降の気象データを入力とし、Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN) version 2.1 (Guenther et al., 2012) で1 時間毎の排出量を推計した。

1年目から2年目(令和4年度)にかけては、日本国内の自動車と固定燃焼発生源について、過去の長 期排出インベントリを構築した。自動車については、環境省が整備しているPM2.5排出インベントリに おいて、詳細な排出量推計が行われているが、対象年は単年に限られている。本研究では、以下の方法 によって簡易的に推計される排出量の経年変化割合を、2015年を対象とするPM2.5排出インベントリの 自動車排出量に乗じることによって、排出量の経年変化を表現した。自動車からの排出過程として、走 行時、始動時、Running Loss (RL)、Diurnal Breathing Loss (DBL)、Hot Soak Loss (HSL)、巻き 上げ粉塵、タイヤ摩耗を考慮した。それぞれの排出過程と車種について、排出量の推計は以下の式で行 った。

25

$$E_{tkp} = \sum_{i=t-20}^{t} A_{ikp} \times EF_{ik}$$

ここで、i は車両登録年、t は排出量集計対象年、k は車種、p は都道府県を表す。活動量は排出過程 によって異なり、走行時、RL、巻き上げ粉塵、タイヤ摩耗は1台あたりの年間走行距離と車両保有台数 の積、始動時は1台あたりの年間始動回数と車両保有台数の積、DBLとHSLは車両保有台数を活動量とし た。車種は、大きく分けて、乗用車、軽乗用車、軽貨物車、小型貨物車、普通貨物車、バス、特種車、 二輪車とした。排出量は車両の登録年別の集計とし、登録年に対応する活動量と排出係数の積をとり、 その集計対象年までの和を対象年の集計値とした。集計する車両の登録年は集計対象年の20年前までと した。排出係数は段階的な自動車排出ガス規制の強化(図1-1)により低下する。走行時と始動時には 自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査報告書、RL、HSL、巻き上げ粉塵、タイヤ摩耗にはJapan Auto-Oil Program (JATOP) 技術報告書、DBLには環境省PRTR届出集計結果の排出量から逆算して得られ た排出係数を用いた。それぞれ車両登録年に対応する自動車排出ガス規制の排出係数を適用した。軽自 動車には全国軽自動車協会連合会の市区町村別軽自動車車両数、小型二輪を除く二輪車は総務省の軽自 動車税に関する調査に基づく車両数、その他の車種の車両保有台数には自動車検査登録情報協会の自動 車車両数を使用した。二輪車以外の車両の走行距離には国土交通省の自動車輸送統計および自動車燃料 調査、二輪車の走行距離にはJATOP技術報告書を使用した。車両の始動回数には自動車輸送統計の日輸 送回数を使用した。なお、この自動車排出量推計の内容の詳細については、査読付き論文(成果番号 2)にまとめて公表した。自動車以外の特殊自動車(建設機械、産業機械、農業機械)と航空機につい ても、自動車と同様の考え方に基づき、2015年を対象とするPM2.5排出インベントリの排出量に年次補 正を施した。

車種			車両登録年																			
			2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019
乗用	乗用車				H12			H17			H21					н	30					
		Light (-660cc)	н	10	H14			H19			H21					H30						
ガソリン車	トラック・バフ	GVW -1.7t			H12	2			H17				H21							H30		
	F J997 MX	GVW 1.7-3.5t	H10		H13			H17					H21							H30		
		GVW 3.5t-	H10		H13			H17					H21									
● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ●	乗用車	-1265kg	H	19	H14			H17			H21						H30					
	乗用車	1265kg-	н	10		H14			H17			H21						H30				
	トラック・バス	GVW -1.7t	H	19		H14		H17			H21						H30					
		GVW 1.7-2.5t		H9		H15		H17				H22					H30					
ティービル単		GVW 2.5-3.5t	H9			н	15	H17				H21						H30				
		GVW 3.5-7.5t		H10		H15			H17			H22					H30					
		GVW 7.5-12t		H10		H15			H17			H22			H28							
		GVW 12t-		H11			H16		H17				H21				H28					
ガソリン車	二輪車	-50cc	H10						H1			18			H24			H28				
		50-125cc		H11									H19			H24			H28			
		125-250cc		H10					н			18			H24				H28			
		250cc-	H11							H19				H24					H28			

図1-1 自動車排出ガス規制の推移

(本報告書では、赤を長期、緑を新短期、青を新長期規制としてまとめて示す)

大規模固定燃焼発生源については、推進費課題5-1601などで単年を対象に構築を行ってきたJapan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM) 排出インベントリ(茶谷ら, 2019)を拡張 し、2000年以降の各年の排出量を新たに独自に推計した。本排出インベントリにおいては、上記と同様 に、活動量と排出係数の積として排出量を推計する。排出量の経年変化を表現するためには、対策による排出係数の経年変化を表現する必要がある。そこで、対象年 Y_t における排出係数 EF_tを、以下のように年に対する回帰式で表現することとした。

$EF_t = aY_t + b$

a と b は回帰式の傾きと切片である。環境省が実施している大気汚染物質排出量総合調査の2011、 2014(本研究後半で追加)、2017年度実績の調査票データを解析して得られたNO_x、SO_x、ばいじんの排 出係数と、同調査票データを解析して得られた排出係数がデータベースとしてまとめられている固定発 生源NO_x、SO_x、PM排出係数データベース(EF-JASS)による1996、1999、2002、2005年における排出係 数を、業種別(電気業とそれ以外)、燃料種別、施設種別に整理して、年に対する回帰分析を行い、減 少傾向が有意な場合に得られた a と b を用いて各年の排出係数を算出した。有意ではない場合は平 均値を用いた。NO_x、SO_x、ばいじん以外の物質の排出係数には、文献値を適用した。業種別、燃料種 別、施設種別の活動量は、総合エネルギー統計から得られた各年の業種別、燃料種別のエネルギー消費 量に、大気汚染物質排出量総合調査票データから得られた然料消費量の施設種別割合を乗じて求めた。 大規模固定燃焼発生源以外の固定発生源についても、各発生源の年別の活動量を収集し、排出量を推計 した。全ての発生源について、都道府県別エネルギー消費量、工業生産高、就業者数など、各発生源の 空間分布状況を表現する各年別の統計データを収集し、全国の排出量を都道府県、市区町村、さらには 地域メッシュ(約1×1 km)の高解像度に分解した。

その他、日本国内の火山については、2000年以降を対象に、各火山の活動状況についての気象庁の情報を収集して、排出量データを作成した。日本以外の火山には、Fioletov et al. (2023)を用いた。 日本周辺の船舶には、2015年を対象とするGLIMMS-AQ (Study on Global Limit for Marine Fuels Sulphur to better Air Quality) (Sakurai et al., 2021)を用い、EDGAR version 5.0の船舶排出量 の経年変化割合を乗じて各年のデータを作成した。全ての発生源について、排出インベントリを大気質 シミュレーションの入力ファイルの形式に変換し、サブテーマ2に提供した。

2年目には、COVID-19などの社会的要因の影響を受けた活動量データを収集し、排出量の推計を行った。2020年初頭からのCOVID-19の蔓延に伴い、緊急事態宣言などが発令され、人々の移動や経済活動が制限された。その結果として、大気汚染原因物質の排出量も減少したと考えられる。このような排出量の減少を表現するためには、移動や経済活動の制限による活動量の特異的な変化を表現する必要がある。本研究では、活動量のデータに対して周期変動解析を行い、通常時の活動量の月変動と、COVID-19 蔓延の影響による減少量を評価した。解析の対象とする活動量は、火力発電量、固定燃焼発生源のエネルギー消費量、自動車の走行距離の3種類とした。火力発電量には経産省資源エネルギー庁の電力調査統計発電実績、固定燃焼発生源のエネルギー消費量には経産省の石油等消費動態統計年報、自動車の走行距離には国土交通省の自動車燃料消費量調査の走行キロを用いた。いずれのデータも月単位の集計値で、解析する期間を2013年4月から2022年3月までとした。周期変動解析においては、月別の活動量 Y が以下の式のように分解されるとした。

$Y = T \times S \times e$

T はトレンド成分、S は月変動の比率、e は残差変動の比率を示す。このうち、S を通常時の月変 動、2020年以降に e として現れる残差を、COVID-19の蔓延に伴う活動量低下の影響とみなした。な お、この活動量の変動解析の内容の詳細については、査読付き論文(成果番号5)にまとめて公表し た。2020年以降の活動量の変化を考慮した排出インベントリと大気質シミュレーションへの入力ファイ ルを作成し、サブテーマ2とサブテーマ4に提供した。

3年目(令和5年度)には、サブテーマ2、3、4で得られた知見に基づき、排出インベントリに必要な改良を施した。サブテーマ2で実行された長期大気質シミュレーションによる計算値と、サブテー

マ3、4による成果を含む観測値との比較結果などから顕在化した課題について、以下の改良を施した。

- ▶ 特殊自動車のSO_x排出量推計における燃料中硫黄分含有量の修正。
- ▶ 固定燃焼発生源のNMVOCとCOの排出係数の見直し。
- 2014年実績の大気汚染物質排出量総合調査票データの考慮。
- ▶ EDGAR version 5.0からversion 6.1への更新。

これらの修正を施した上で、全発生源について2000~2021年の長期排出インベントリを取り揃えた。ま た、対策の評価のために排出インベントリに求められる適切な経年変化の表現方法ならびに対策の反映 手法として、行政や一般のユーザーに役立ててもらえるように、本研究で実施した排出量推計の詳細に ついて説明文書にとりまとめた。排出インベントリから大気質シミュレーションへの入力ファイルへの 変換には、推進費課題5-1601や5-1903で構築した排出量データ変換ツールを使用しており、その構成を 図1-2に示す。データを変換するためには、この変換ツールだけではなく、排出量の経年変化を表現す るための成長係数、排出量変化による影響を評価するための排出倍率、排出量の月変動を表現するため の月分解係数、排出量の週内変動を表現するための曜日分解係数、排出量の時刻変動を表現するための 時刻分解係数、排出インベントリの対象成分を大気質シミュレーションが必要とする成分に変換するた めの組成分解係数、排出インベントリの水平解像度別のデータを大気質シミュレーションの対象領域の メッシュに分解するための水平分解係数、排出量を大気質シミュレーションの対象領域の鉛直層に分解 するための鉛直分解係数が必要になる。全ての発生源の排出インベントリを変換できるように、これら の係数類を全て取り揃えるとともに、その説明文書もとりまとめた。



図1-2 排出量データ変換ツールの構成

4. サブテーマ1結果及び考察

日本国内の自動車、大規模固定燃焼発生源、VOC蒸発発生源だけではなく、全ての国内外の発生源に ついて、2000年以降の長期排出インベントリを構築した。その内容の詳細は査読付き論文(成果番号 3)にまとめて公表した。オゾンの前駆物質であるNO_xと非メタン揮発性有機化合物(Non-Methane Volatile Organic Compound; NMVOC)だけではなく、大気質シミュレーションが必要とする全ての大気 汚染原因物質について推計した、2000~2019年の日本国内の全発生源の排出量総量の経年変化を図1-3 に示す。NO_x排出量は、2000年から2019年にかけて56%減少している。自動車とその他人為発生源に含ま





図1-3 2000~2019年の日本国内の全発生源の排出量の経年変化(成果番号3)

れる特殊自動車が減少傾向に大きく影響しており、2019年には大規模固定燃焼発生源が53%の寄与を占めている。NMVOC排出量は、2000年から2019年にかけて31%減少し、そのうち人為起源の排出量は53%減少している。2019年にはVOC蒸発発生源の減少が2000年に対して51%に達し、VOC自主的取組の目標値

(対2000年比30%減)を大きく上回っている。代わって、2019年には植物起源の寄与が全体の58%と最も大きくなっている。NO_xとNMVOCだけではなく、CO、SO_x、PM_{2.5}の排出量にも減少傾向が見られる。COに

対しては自動車の寄与が大きく、排出ガス規制の強化の効果が現れている。SO_xに対しては大規模固定 燃焼発生源の寄与が大きく、脱硫などの対策の効果が現れている。PM_{2.5}についても自動車や大規模固定 燃焼発生源への対策の効果が減少傾向に現れている。一方、NH₃については、その他人為発生源に含ま れる施肥や家畜などの農業起源の寄与が大きく、NH₃削減に特化した対策は行われていないため、排出 量の減少傾向はほとんど見られない。

図1-4には、自動車のNOxとNMVOC、大規模固定燃焼発生源のNOx、VOC蒸発発生源のNMVOC排出量につい て、2000年以降の減少に対する対策と活動量の変化の影響を明示的に示した。自動車については、新車 に対する排出ガス規制が段階的に強化されており、市場を走行する古い車両が新しい規制に対応した車 両に置き換わることによって、排出量が効果的に減少していることがわかる。2000年から2019年にかけ て、長期規制、新短期規制、新長期規制によって、NOx排出量がそれぞれ13%、32%、21%、NMVOC排出量 がそれぞれ18%、49%、14%減少している。一方、自動車の活動量に相当する車両台数や走行距離の経年 変化は比較的小さいため、排出量の経年変化に対する影響は限定的である。大規模固定燃焼発生源の NO_x排出量については、排出対策によって2000年から2019年にかけて10%減少しているのに加えて、産業 部門におけるエネルギー消費量の削減努力などによっても20%減少している。ただし、2012年頃には活 動量の影響による排出量の一時的な増加も見られる。東日本大震災による原子力発電所の稼働停止によ り電力がひっ迫し、火力発電所の稼働が増えた影響を受けたものである。VOC蒸発発生源のNMVOC排出量 については、自主的取組などに伴う対策の強化によって2000年から2019年にかけて35%減少しているの に加え、リーマンショックが発生した2008年頃に溶剤などの生産量や消費量が落ち込んだ影響が続いて いることにより、さらに16%減少する結果となっている。このように、本研究ではじめて、2000年以降 の長期的な排出量の経年変化を引き起こした原因を明示的に表現することが可能となり、さらなる対策 の必要性や効果を検討する上で貴重な知見になりうる。



図1-4 2000~2019年の排出量の経年変化に対する対策と活動量の変化の影響(成果番号3)

大規模固定燃焼発生源については、環境省が3年おきに実施している大気汚染物質排出量総合調査に おいても、排出量の集計値が公開されている。本研究によるSO_x、NO_x、ばいじんの排出量の推計値と、 大気汚染物質排出量総合調査による排出量の集計値の比較を、業種別および施設種別に図1-5に示す。 排出量総量と業種別・施設種別割合の経年変化は概ね表現できているものの、細かく見れば差異も存在



図1-5 大気汚染物質排出量総合調査による集計値(各年左側)と本研究による大規模固定燃焼 発生源排出量推計値(各年右側)との比較(上:業種別、下:施設種別)

する。大気汚染物質排出量総合調査は、一定規模以上の固定燃焼発生源に調査票を配布して得られた回 答をまとめたものであるが、集計にあたって回答率は考慮されていない。また、調査票データには異常 値や単位間違いなどの問題点が数多く含まれており、解析するにあたってそのスクリーニングに大きな 困難が伴う。特に、排出係数の算出に必須である燃料使用量には非常に多くの問題が含まれている。結 果として、本研究による推計値と集計値の両方に大きな不確実性が含まれており、両者を完全に一致さ せるのは困難である。とはいえ、図1-5からはいくつかの問題点が示唆される。例えば、NO_xの排出量の 推計値の方が集計値よりも少なく、その差異は年を遡るにつれて大きくなっている。その主な要因とな っているのが、業種別に見れば電気業、施設種別に見ればディーゼル機関であることがわかる。大気汚 染物質排出量総合調査の結果によると、以前は電気業のディーゼル機関からの排出が多かった傾向が見 られる。その傾向を再現するためには、電気業で使用される燃料のうち、ディーゼル機関で使用される 割合が以前は多かったことを表現する必要があるが、燃料消費量の施設種別割合について、その経年変 化を表現できるデータは存在しない。収集可能なデータの範囲では、これ以上の精度向上には限界があ ると言える。

図1-6には例として、2018年の関西と関東におけるNO_xとNMVOCの排出量分布を示す。約1×1 kmの高解 像度での分布状況が表現されていることがわかる。基本的に、NO_xとNMVOCともに、人口の多い東京、名 古屋、大阪などの大都市圏を中心に排出が多くなっている。また、NO_xについては自動車の寄与が比較 的大きいことから、高速道路沿いでも排出が多い傾向がうかがえる。NMVOCについては、PRTRの届出排









図1-6 2018年の関西と関東におけるNOxとNMVOCの排出量分布(成果番号3)

出量データも利用して分布を与えており、排出の多い施設などが点在している分布となっている。この ような高解像度での分布についても、2000年以降の経年変化が表現された排出インベントリが本研究に よって新たに構築されたことになる。

周期変動解析により得られた通常時の月変動と、COVID-19の蔓延に伴う活動量低下分を用いて推計 された、2019年と2020年のNO_xとVOCの月別排出量と、2019年に対する比を図1-7に示す。2019年がほぼ 通常時の月変動を表しており、NO_xは夏よりも冬の方が排出量が多くなっている。気温の低い冬の方が 自動車の始動時の排出量が多いためである。植物起源のNMVOCは気象条件の影響により月変動がかなり 大きく、夏に排出が多くなっている。人為発生源のNMVOC排出量の月変動はNO_xと同様である。2020年に は2019年に対して排出量が少なくなっており、NO_x排出量は5月には最大約14%減少している。COVID-19 の蔓延により、2020年の4月から5月にかけて最初の緊急事態宣言が発出され、経済活動や人々の移動が



図1-7 2019年と2020年の月別排出量と2019年に対する比率(成果番号5を改良)

著しく制限された。その影響により、自動車および大規模固定燃焼発生源の排出量が大きく減少している。植物起源のNMVOCは年々の気象条件の違いに大きく影響される。人為発生源のNMVOC排出量に限れば、NO_xと同様に、5月に最大10%減少している。このように、COVID-19の蔓延に伴う特異的な排出量の減少についても表現できる排出インベントリを本研究において新たに構築することができた。

最終的に、2000年~2021年の22年間にもわたる長期間を対象に、国内外の全ての発生源について排 出インベントリを構築するだけではなく、22年間の全ての日の大気質シミュレーションを実行できるよ うに、入力データの形式に変換したファイルを取り揃えた。改めて、構築した長期排出インベントリの 対象発生源の一覧と、その時間解像度を表1-1に示す。各発生源について、時間解像度のうち、時間別 以外の変動を表現するために、個別のファイルを作成した。1ファイル中に全ての物質について24時間 分の排出量データが含まれており、その中で時間別の変動を表現した。化学反応メカニズムはSAPRC07 とCB6の2種類とした。Morino et al. (2023) に従い、半揮発性のVOCの排出も考慮できるようにした。 構築した長期排出インベントリと変換のためのデータ、および変換後のファイルについては、それぞれ の説明文書とともに、準備ができ次第、ウェブサイト上で一般に公開する予定である。

対象発生源	出典	時間解像度					
アジア人為発生源	REAS version 3.2.1	月別					
アジア以外人為発生源 日本以外船舶、航空機	EDGAR version 6.1	年間一律					
日本以外バイオマスバーニング	GFED version 4.1s	日別、3時間別					
植物起源	MEGAN version 2.1	日別、時間別					
火山	Fioletov et al.(日本以外) 気象庁(日本)	年間一律 日別					
国内自動車	環境省PM2.5排出インベントリ	月別、平日休日別、時間別					
国内特殊自動車、航空機	環境省PM2.5排出インベントリ	月別、時間別					
国内固定発生源	J-STREAM(本研究)	月別、時間別					
日本周辺船舶	GLIMMS-AQ	曜日別、時間別					

表1-1 本研究で構築した長期排出インベントリの対象発生源の一覧と時間解像度

本研究で構築した、2000年から2021年までの22年間にもわたる長期の排出インベントリは日本国内で もこれまでに例がなく、注目されている。本研究に限らず国際的にも、過去の対策による効果を評価す るために、排出量の変化による大気質への影響を評価しようという動きがあり、本研究で構築した排出 インベントリを提供している。その一例として、長距離越境大気汚染条約のTask Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP) では、大気質シミュレーションなどを利用して 越境大気汚染の解析を行っており、そのために必要となるHTAP排出インベントリのversion 3が新たに 整備された。日本の自動車、特殊自動車、航空機についてはPM2.5排出インベントリに準じたデータ、 固定発生源と鉄道については本研究で構築したJ-STREAM排出インベントリが組み込まれている(成果番 号4)。もう一つの例として、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(Acid Deposition Monitoring Network in East Asia; EANET)の活動の一環として行われている、アジアにおける大気質 モデル・化学気候モデル間相互比較研究(Model Inter-Comparison Study for Asia (MICS-Asia))で は、2021年から第4期が開始され、アジア域におけるモデル間相互比較が行われている。そのために必 要な排出インベントリであるMIXv2が新たに整備され、HTAPと同様に、日本の自動車、特殊自動車、航 空機についてはPM2.5排出インベントリに準じたデータ、固定発生源と鉄道については本研究で構築し たJ-STREAM排出インベントリが組み込まれている(成果番号6)。さらに、韓国のKonkuk Universityと 国際応用システム分析研究所(IIASA)が主導し、北東アジアにおける将来の気候変動と大気汚染対策 シナリオについて研究を行うDevelopment of a collaborative, integrated management framework to improve future air quality in Northeast Asia (AQNEA)プロジェクトにおいても、本研究で構築し た長期排出インベントリが日本部分の排出量として組み込まれている。このように、本研究で構築した 長期排出インベントリが、日本を代表する排出インベントリとしての存在感を得ており、国際共同研究 プロジェクトの推進と本研究の成果の展開に大いに貢献している。

【参考文献】

- 茶谷聡, Cheewaphongphan Penwadee, 小林伸治, 田邊潔, 山地一代, 高見昭憲. 2019. 日本国内大規模
 固定発生源の業種別・施設種別・燃料種別大気汚染物質排出インベントリの構築. 大気環境学会
 誌, 54, 62-74. https://doi.org/10.11298/taiki.54.62.
- Crippa, M., Solazzo, E., Huang, G.L., Guizzardi, D., Koffi, E., Muntean, M., Schieberle, C., Friedrich, R., Janssens-Maenhout, G. 2020. High resolution temporal profiles in the emissions database for global atmospheric research. Sci. Data. 7, 121. https://doi.org/10.1038/s41597-020-0462-2.
- Fioletov, V. E., McLinden, C. A., Griffin, D., Abboud, I., Krotkov, N., Leonard, P. J. T., Li, C., Joiner, J., Theys, N., Carn, S. 2023. Version 2 of the global catalogue of large anthropogenic and volcanic SO₂ sources and emissions derived from satellite measurements. Earth Syst. Sci. Data. 15, 75–93. https://doi.org/10.5194/essd-15-75-2023.
- Guenther, A.B., Jiang, X., Heald, C.L., Sakulyanontvittaya, T., Duhl, T., Emmons, L.K., Wang, X. 2012. The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions. Geosci. Model Dev. 5, 1471–1492. https://doi.org/10.5194/gmd-5-1471-2012.
- Kurokawa, J., Ohara, T. 2020. Long-term historical trends in air pollutant emissions in Asia: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3. Atmos. Chem. Phys. 20, 12761-12793. <u>https://doi.org/10.5194/acp-20-12761-2020</u>.
- Morino, Y., Iijima, A., Chatani, S., Sato, K., Kumagai, K., Ikemori, F., Ramasamy, S., Fujitani, Y., Kimura, C., Tanabe, K., Sugata, S., Takami, A., Ohara, T., Tago, H., Saito, Y., Saito, S., Hoshi, J. 2023. Source apportionment of anthropogenic and biogenic organic aerosol over the Tokyo metropolitan area from forward and receptor models. Sci. Total Environ. 904, 166034.

https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.166034

- Sakurai, T., Ito, M., Hanayama, S. 2021. Development of air pollutants emission inventories for ships around Japan on a high geographical resolution. Asian J. Atmos. Environ. 15, 2020096. https://doi.org/10.5572/ajae.2020.096.
- van der Werf, G.R., Randerson, J.T., Giglio, L., van Leeuwen, T.T., Chen, Y., Rogers, B.M., Mu, M.Q., van Marle, M.J.E., Morton, D.C., Collatz, G.J., Yokelson, R.J., Kasibhatla, P.S. 2017. Global fire emissions estimates during 1997-2016. Earth Syst. Sci. Data. 9, 697-720. https://doi.org/10.5194/essd-9-697-2017.
- Zheng, B., Tong, D., Li, M., Liu, F., Hong, C.P., Geng, G.N., Li, H.Y., Li, X., Peng, L.Q., Qi, J., Yan, L., Zhang, Y.X., Zhao, H.Y., Zheng, Y.X., He, K.B., Zhang, Q. 2018. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions. Atmos. Chem. Phys. 18, 14095–14111. https://doi.org/10.5194/acp-18-14095-2018.
- Zheng, B., Zhang, Q., Geng, G.N., Chen, C.H., Shi, Q.R., Cui, M.S., Lei, Y., He, K.B. 2021. Changes in China's anthropogenic emissions and air quality during the COVID-19

pandemic in 2020. Earth Syst. Sci. Data 13, 2895-2907. https://doi.org/10.5194/essd-13-2895-2021.

5. サブテーマ1研究目標の達成状況

サブテーマ1では、2000年以降の長期間を対象に、過去の対策や社会要因等による排出量の経年変 化を明示的かつ整合的に表現し、シミュレーションによるオゾン濃度の経年変化の再現を実現する排出 インベントリを新たに開発することを目標とした。COVID-19蔓延の影響を受けた期間を含む2000~2021 年の長期間を対象に、過去の対策や社会要因等による排出量の経年変化を明示的かつ整合的に表現でき る排出インベントリを新たに開発し、オゾン濃度の経年変化を良好に再現できることがサブテーマ2 (図2-5、図2-6、図2-7)とサブテーマ4 (図4-11)のシミュレーションにより実証された。このよう な長期排出インベントリはこれまで日本国内に実例がなく、国際的な共同研究プロジェクトで整備され ている排出インベントリにも組み込まれた。このことから、目標を上回る成果が得られたと評価でき る。
Ⅱ-2 サブテーマ2「長期大気質シミュレーションに基づく対策効果評価手法の確立」

[サブテーマ2要旨]

大気質シミュレーションがオゾン(0₃)濃度低減対策評価において有効であることを示すことを目的 として、2000~2020年の長期間を対象に、日本の主要都市圏を含む関西・関東域において、0₃濃度変化 の諸要因を考慮して実施したシミュレーションと、観測された0₃および関連物質濃度の経年変化の整合 性を評価した。まず、気象場の経年変化が良好に再現されていること、越境輸送の影響を反映するバッ クグラウンド0₃濃度がおおむね再現されていることを確認した。関西・関東域における二酸化窒素

(N0₂)濃度は、系統的に過小評価となったものの、経年的な減少が良好に再現された。関西・関東域 における0₃濃度の年・季節別平均値については、系統的に過大評価となったものの、冬季における経年 的な増加傾向、春季における微増〜横ばい傾向、夏季における大きな年々変動および経年的な減少傾向 が良好に再現された。また、原因物質であるホルムアルデヒド濃度とN0₂濃度の比に基づく0₃感度レジ ームについても、暖候期において地域差がおおむね再現された。アメリカ環境保護庁によるガイドライ ンで高濃度0₃対策効果の評価に用いられる0₃濃度の年間上位10日平均値については、関西・関東域とも に濃度絶対値がほとんどの年できわめて良好に再現され、年々変動および経年的な減少傾向についても 良好に再現された。以上より、大気質シミュレーションは、各種対策等による国内排出量の経年変化の 影響を含む0₃および関連物質濃度の経年変化を再現できており、対策効果評価に適用可能であると判断 した。

国内のVOC蒸発、自動車、大規模固定燃焼、その他部門からの排出量、越境輸送、気象場といった各 要因のオゾン濃度の経年的な変化に対する寄与を定量化するために、排出量条件を変更した複数の長期 大気質シミュレーション結果の解析を行った。関西・関東域における年平均NO2濃度の経年的な減少に 対しては、国内の自動車およびその他部門のNOx排出量減少の寄与が支配的であった。関西・関東域に おけるO3濃度の季節別平均値の経年変化について、冬季の経年的増加に対しては、自動車およびその他 部門のNOx排出量減少に伴うNOタイトレーション効果減少の寄与が支配的であった。春季の2000年代の 増加に対しては、冬季同様のNOx排出量減少効果と越境輸送が同程度に寄与していた。夏季における 年々変動については気象場の寄与、経年的な減少傾向にはVOC蒸発排出量減少の寄与が支配的であっ た。関西・関東域における年間上位10日平均03濃度の経年変化については、夏季平均と同様に、年々変 動については気象場の寄与、経年的な減少傾向にはVOC蒸発排出量減少の寄与が支配的であった。VOC蒸 発排出量減少の寄与をVOC排出量30%削減に換算すると、関西域と関東域でそれぞれ約12%と約24%の年間 上位10日平均03濃度の低減効果に相当した。また、NOx排出量減少が大きい自動車排出量の経年変化に ついても、年間上位10日平均03濃度低減に寄与しており、主要都市圏の風下地域ではVOC蒸発排出量減 少よりも寄与が大きくなった。

日本における高濃度0₃に対しては春季を中心に越境輸送の影響も大きい。そこで、地域寄与上位10日 平均0₃濃度値の経年変化についても、国内排出量の経年変化による寄与を評価した。関西域と関東域に おける0₃濃度の経年変化に対する国内排出量の経年変化の寄与は、年間上位10日平均ではそれぞれ-0.56 ppb/yと-1.13 ppb/yであったのに対し、地域寄与上位10日平均ではそれぞれ-0.77 ppb/yと-1.20 ppb/yと、越境輸送の影響を受けやすい関西で濃度低減効果がより大きく上昇した。また、国内各部門 のNo_x排出量減少による濃度低減効果がより大きくなった。これは、地域寄与を考慮することで、NO_xが 関与する地域的な光化学生成および海陸風循環での蓄積の影響がより強く反映された結果であると考え られる。

1. サブテーマ2研究開発目的

2000年以降の東アジア広域~日本の主要都市圏を対象に、サブテーマ1で構築された排出インベン トリを用いて長期大気質シミュレーションを実施する。その結果について、原因物質である窒素酸化物 (NO_x)や揮発性有機化合物(VOC)の排出量変化に対するオゾン濃度変化の妥当性を評価する。また、 サブテーマ3、4で得られたオゾン感度レジームとの整合性を評価する。その上で、対策効果評価手法 に必要な改良を施す。また、排出量条件を変更した複数のシミュレーション結果を解析し、国内のVOC 蒸発、自動車排ガス、大規模固定燃焼などからの排出量、越境輸送、気象条件といった各要因のオゾン 濃度の経年的な変化に対する寄与を定量化する。

2. サブテーマ2研究目標

サブテーマ2	「長期大気質シミュレーションに基づく対策効果評価手法の確立」
サブテーマ2実施機関	大阪大学
サブテーマ2目標	2000年以降の長期間を対象に、オゾン濃度変化の諸要因を考慮したシミュ レーションを実行し、常時監視による光化学オキシダントならびにNOxや 非メタン炭化水素等の関連物質濃度の経年変化との整合性を裏付けるこ とにより、標準的な対策評価手法として確立させる。 VOC自主的取組、自動車排ガス対策、固定燃焼発生源対策、越境輸送、気象 条件といった各要因のオゾン濃度の経年的な変化に対する寄与を定量化 することで、今後の対策のあり方とシミュレーションの有効性を示す。

3. サブテーマ2研究開発内容

3.1 オゾン濃度変化の諸要因を考慮した長期大気質シミュレーション

オゾン(0₃)濃度変化の諸要因、すなわち気象条件、越境輸送、各種対策等による国内排出量の経年 変化を考慮して、2000~2020年の長期大気質シミュレーションを実施した。その結果と各種観測データ を比較することで、大気質シミュレーションと実大気で濃度経年変化が整合的であるかを評価した。以 下に、各種シミュレーション条件について述べる。なお、シミュレーション条件の多くは、推進費課題 5-1601の成果(茶谷ら, 2019)に基づいて設定した。

計算領域は、図2-1に示すアジア域(D1)、日本域(D2)、関西域(D3)、関東域(D4)の4領域と した。水平格子数はそれぞれ170×157、141×147、69×48、51×57、水平解像度はそれぞれ45 km、15 km、5 km、5 kmとした。鉛直層は、地表~上空50 hPaを30層に分割し、地表に接する第1層の厚さは約 30 mに設定した。長期大気質シミュレーションの主要条件を表2.1に示す。気象場は、気象モデルWRF v4.3を用いて作成した。その初期・境界条件には、欧州中期予報センターによって長期間継続的なデー タが整備されているERA5を3時間間隔で用いた。アジア域境界濃度については、全球化学輸送モデル CAM-Chem (2018年以前)、WACCM (2019年以降)の結果を用いて作成した。これらのデータとサブテー マ1で整備された排出量データを領域化学輸送モデルCMAQ v5.3.3に入力し、2000~2020年の各年(そ れぞれ前年12月を助走期間)の大気質シミュレーションを行った。





表2-1 オゾン濃度変化の諸要因を考慮した長期大気質シミュレーションの主要条件

		設定
WRF v4.3	地形、土地利用	GMTED2010 (30 sec), MODIS (30 sec) / J-IBIS (1km)
	初期・境界条件	ECMWF ERA5 (0.25 deg, 3 hr)
		Grell 3D (D1, D2), Morrison, RRTMG, MYNN3, Noah LSM,
	物理過程	FDDA: $G_{t, q} = 5.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1} (D1) / 3.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1} (D2) / 1.0$
		x 10^{-5} s ⁻¹ (D3, D4 over PBL), G _{uv} = 1.0 x 10^{-4} s ⁻¹
CMAQ v5.3.3	アジア域境界濃度	CAM-Chem (-2018) / WACCM (2019-) (Gas, $PM_{2.5}$)
	排出量	サブテーマ1
	化学過程	SAPRC07tc & AER07 with Aqueous chemistry

大気質シミュレーションの再現性評価には、図2-1に示す各地点における観測データを用いた。バッ クグラウンド03濃度の再現性評価には、隠岐(EANET)、与那国島、南鳥島(気象庁大気・海洋環境観 測年報)における観測データを用いた。日本の主要都市圏における03濃度の再現性評価には、関西・関 東域の一般環境大気測定局(一般局)(2000年以降継続的にデータが利用できる茨城県、栃木県、群馬 県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、愛知県、三重県、京都府、大阪府、兵庫県、奈良県に限る) において紫外線吸収法で観測された光化学オキシダント濃度(= 03濃度)を用いた。なお、紫外線吸収 法の導入は主に2000年代に進んだため、再現性評価対象の一般局数は計算期間中で大きく変化してい る。また、Araki et al.(2017)の手法により、空間的外れ値に基づいて一部の一般局を除外した。そ の結果、再現性評価対象の関西・関東域の一般局数は、2000年で28局・69局、2015年で229局・293局と なった。なお、03濃度の評価においては、光化学オキシダント濃度の長期的な改善傾向を評価するため の新指標やアメリカの環境基準などで用いられる8時間値の日最高値(MDA8)を対象とした。03の前駆 物質である二酸化窒素(N02)濃度の再現性評価についても、これらの一般局における観測値を用い た。また、気象場の再現性評価には、03濃度再現性評価対象の一般局が存在する都府県の気象官署にお ける観測データを用いた。

3.2 長期大気質シミュレーションに基づくオゾン感度レジームの解析

 0_3 感度レジームの再現性評価には、サブテーマ3の千葉およびつくばにおける地上分光計測データを 用いた。その評価に際しては、サブテーマ3とサブテーマ4で導入したホルムアルデヒド(HCHO)と NO₂の濃度比(FNR = HCHO/NO₂)を用いた日別O₃感度レジーム判定に基づく出現頻度を用いた。FNRに基 づくO₃感度レジームの境界値には、VOC-sensitiveにFNR < 1、Transitionに1 < FNR < 2、NO_xsensitiveに2 < FNRを用いた。

03感度レジームの再現性評価においては上記のFNRに基づくレジーム境界値を使用したが、このレジ ーム境界値について、それ自体の日本の主要都市圏における経年変化や、FNRを算定する際の参照高度 (一般局が参照する地表付近、サブテーマ3における地上分光計測が参照する地上0~1 km、サブテー マ4で用いた衛星計測が参照する大気全層)による違いを把握しておく必要がある。そこで、Du et al. (2022)を参考に、NOxおよびVOC排出量変化に伴う地上03濃度の変化と参照高度別のFNRの関係に基 づいて、大気質シミュレーションにおけるレジーム境界値を推計した。その推計のため、2000、2005、 2010、2015、2020年のD2~D4を対象に、NOxあるいはVOC排出量をそれぞれ2割削減したシミュレーショ ンを追加実施した。

3.3 長期大気質シミュレーションに基づくオゾン濃度経年変化に対する諸要因の寄与評価 過去再現計算である03濃度変化の諸要因の経年変化を考慮した長期大気質シミュレーションを基準ケ ース(Ebase)とし、Ebaseにおける濃度経年変化に対する各要因の寄与を、表2-2に示す排出量条件等 を変更した複数のシミュレーション結果を用いて評価した。Ea112015では、国内排出および越境輸送は2015年で固定し、気象場のみ経年変化を考慮した。ここで、越境輸送は国外排出とアジア域境界濃度を指し、気象場は気象条件そのものに加えてその影響を強く受ける植物起源VOC、海塩、土壌性ダストの排出を指す。Ejpn15では、国内排出は2015年で固定し、気象場と越境輸送の経年変化を考慮した。 EjpnVOC15、EjpnVeh15、EjpnLPS15、Ejpn0thr15では、国内のVOC蒸発、自動車、大規模固定燃焼あるいはこれら3部門以外に由来する排出を2015年で固定し、それ以外の要因の経年変化を考慮した。計算期間・領域については、Ea112015では2000~2020年のD1~D4を対象とし、Ejpn15、EjpnVoC15、EjpnVeh15、Ejpn0thr15では2000~2020年のD2~D4を対象とした。

ケース名	国内排出	気象場	越境輸送
Ebase	経年変化	経年変化	経年変化
Ea1115	2015年	経年変化	2015年
Ejpn15	2015年	経年変化	経年変化
EjpnVOC15	VOC蒸発を2015年/その他経年変化	経年変化	経年変化
EjpnVeh15	自動車を2015年/その他経年変化	経年変化	経年変化
EjpnLPS15	大規模固定燃焼を2015年/その他経年変化	経年変化	経年変化
EjpnOthr15	上記3部門以外を2015年/その他経年変化	経年変化	経年変化

表2-2 オゾン濃度経年変化に対する諸要因の寄与評価のためのシミュレーション条件

各要因の寄与は、Ebaseにおける各年の濃度の対2015年偏差(ΔEbase)

$$\Delta \text{Ebase} = [\text{Ebase}]_{\gamma} - [\text{Ebase}]_{2015} \tag{2.1}$$

に対して推計した。ここで[Case]_yは、あるシミュレーションケースにおけるy年の濃度である。 Δ Ebaseに 対する国内全部門排出(Δ Ejpn)、気象場(Δ Met)、越境輸送(Δ TBP)の寄与は、

$$\Delta E jpn = \Delta E base - \Delta Met - \Delta T B P$$
(2.2)

$$\Delta Met = [Eall15]_y - [Eall15]_{2015}$$
(2.3)

$$\Delta \text{TBP} = [\text{Ejpn15}]_y - [\text{Ejpn15}]_{2015} - \Delta \text{Met}$$
(2.4)

により推計した。国内VOC蒸発排出(Δ EjpnVOC)、国内自動車排出(Δ EjpnVeh)、国内大規模固定燃焼排 出(Δ EjpnLPS)、国内その他排出(Δ EjpnOthr)の寄与は、

$\Delta EjpnVOC = \Delta Ebase -$	([EjpnVOC15]	_y – [EjpnVOC15] ₂₀₁₅) (2.5)
-----------------------------------	--------------	--	---------

$$\Delta E jpnVeh = \Delta E base - ([E jpnVeh15]_y - [E jpnVeh15]_{2015})$$
(2.6)

$$\Delta EjpnLPS = \Delta Ebase - ([EjpnLPS15]_y - [EjpnLPS15]_{2015})$$
(2.7)

$$\Delta E jpnOthr = \Delta E base - ([E jpnOthr15]_y - [E jpnOthr15]_{2015})$$
(2.8)

により推計した。

3.4 日本特有の状況を踏まえた高濃度オゾン対策評価手法改良の検討

アメリカ環境保護庁によるガイドライン(U.S. EPA, 2018)では、0₃濃度環境基準の達成判定値に対 し、対策による原因物質の排出量の変化を推計した上で、シミュレーションで対策有無の場合の濃度を 予測し、年間上位10日における対象地域周辺の平均的な濃度低減率を乗じることで、対策による環境基 準の達成を判定するという手法が定められている。すなわち、高濃度地域の高濃度日における対策によ る相対的な変化を表現できることが重要視されている。本研究では、日本における高濃度オゾン対策効 果評価に対する同様の手法の適用可能性を確認するために、MDA8 0₃濃度の年間上位10日平均値につい て、長期大気質シミュレーションによる濃度絶対値および原因物質排出量などの諸要因の経年変化に対 する濃度経年変化の再現性を評価した。その上で、年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の経年変化に対する 各要因の寄与を定量的に評価した。

日本における高濃度0₃に対しては春季を中心に越境輸送の影響も大きいため、年間上位10日平均MDA8 0₃濃度をそのまま適用すると、国内の原因物質の対策効果を適切に評価できない可能性がある。そこ で、国内の原因物質排出量の経年変化による寄与を、春季(3・4・5月)上位10日、夏季(6・7・8月) 上位10日、地域寄与年間上位10日でも評価し、日本特有の状況を踏まえた高濃度オゾン対策評価手法改 良について検討した。地域寄与を評価するために、2000~2020年のD3~D4を対象に人為起源排出を Ebaseから2割削減したシミュレーションを実施し、Ebaseとの差分を地域寄与として判定した。

4. サブテーマ2結果及び考察

4.1 オゾン濃度変化の諸要因を考慮した長期大気質シミュレーション

03濃度の経年変化に対する気象場の経年変化の影響を評価する際には、気象場の経年変化が良好に再 現されている必要がある。図2-2に、関西・関東域における気象官署平均での気温、風速、降水量の年 間値の全期間平均に対する偏差および各年における再現性の経年変化を示す。再現性の評価指標には、 Mean Bias (MB) とIndex of Agreement (IA;地点別・日別の計算値と観測値の組で評価)を用いた。 年平均気温、風速はそれぞれ系統的にやや過小、過大評価となっており、年積算降水量はやや過大評価 となる年が多いが、いずれも経年変化は非常に良好に再現された。また、IAは概ね横ばいで推移してい ることから、期間を通して気象場の再現性に大きな変化はない。ここでは年間値の経年変化のみ示した が、季節別での経年変化についての再現性も良好であることを確認している。したがって、作成した気 象場は本研究の遂行に適したものである。



 図2-2 関西域(左)と関東域(右)における気象官署平均での気温(上)、風速(中)、降水量 (下)の年間値の全期間平均に対する偏差(Δ)の経年変化(Sim.:計算、Obs.:観測)と
 各年における再現性の経年変化

日本における0₃濃度は越境輸送の影響も強く受けるため、関西・関東域における濃度変化を評価する 際には、バックグラウンド濃度が再現されている必要がある。図2-3に、隠岐、与那国島、南鳥島にお ける月平均MDA8 0₃濃度の時系列変化を示す。また、再現性の評価指標として、月平均濃度についての 相関係数(r)と全期間平均値についてのNormalized Mean Bias(NMB)を示す。いずれの地点でも計算 期間を通して月平均濃度の変化が良好に再現された。アジア大陸から本州への輸送経路に位置する隠岐 は、濃度が比較的高く、アジア大陸からの越境輸送の影響が示唆された。比較的NMBが高いが、主に低 濃度期間における過大評価によるものであり、暖候期における越境輸送の影響は、概ね良好に再現され ていると考えられる。アジア域の東側境界に近い南鳥島は、濃度が比較的低く、NMBも小さいことか ら、東側境界からの比較的清浄な空気塊の流入の影響が良好に再現されていると考えられる。



図2-3 バックグラウンド地点(隠岐:上、与那国島:中、南鳥島:下)における月平均MDA8 0₃濃度
 (Sim.: Ebase計算、Obs.:観測)

関西・関東域におけるNO₂濃度およびMDA8 0₃濃度の再現性評価として、図2-4にそれぞれの一般局平 均での月平均濃度の時系列変化、図2-5にそれぞれの一般局平均での各年平均値の全期間平均に対する 偏差を示す。また、図2-6にMDA8 0₃濃度の一般局平均での各季節(冬季:1・2・12月、春季:3・4・5 月、夏季:6・7・8月)における各年平均値の全期間平均に対する偏差を示す。NO₂濃度については、関 西・関東域ともに系統的に過小評価となったが、経年的な減少傾向および減少幅、寒候期に高く暖候期 に低い季節変動の傾向は良好に再現された。MDA8 0₃濃度については、関西・関東域ともに系統的に、 特に寒候期に過大評価となったが、年平均値の微増~横ばい傾向や年々変動については良好に再現され た。季節別には、冬季においては、やや増加幅が過大評価されたものの経年的な増加傾向が概ね再現さ れた。春季においては、2000年代の関西における増加幅が大きく、その他は横ばい~微増傾向であるこ とが良好に再現された。夏季においては、他の季節より大きな年々変動および長期的な減少傾向が良好 に再現された。



図2-4 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均でのNO₂濃度(上)およびMDA8 O₃濃度(下) の月平均値(Sim.: Ebase計算、Obs.: 観測)



図2-5 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均でのNO₂濃度(上)およびMDA8 O₃濃度(下) の年平均値の全期間平均に対する偏差の経年変化(Sim.: Ebase計算、Obs.: 観測)

関西・関東域における高濃度0₃の再現性評価として、図2-7に一般局平均での年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の経年変化およびその全期間平均に対する偏差の経年変化を示す。関西・関東域ともに濃度絶対 値がほとんどの年できわめて良好に再現され、経年変化についても良好に再現された。2013年の関西で 15%程度過大評価となったが、これは2013年7~8月に発生した越境輸送による高濃度の影響が過大評価 されたことによるものである。夏季平均の場合と概ね同様に、大きな年々変動とともに長期的な減少傾 向を示しており、特に関東で減少幅が大きくなった。

図2-8に2005年および2015年における年、季節、年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の空間分布を示す。季節変動については、冬季は広域的に比較的濃度が低く、特にNO_x排出量が多い主要都市圏においてNOタ イトレーション効果を反映して濃度が低くなっている。春季は越境輸送の影響を反映して広域的に他季



図2-6 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均でのMDA8 0₃濃度の冬季(1・2・12月)
 (上)、春季(3・4・5月)(中)、夏季(6・7・8月)(下)平均値の全期間平均に対する
 偏差の経年変化(Sim.: Ebase計算、Obs.: 観測)



図2-7 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均での年間上位10日平均(Top10) MDA8 0₃濃度の経年変化(上)およびその全期間平均に対する偏差の経年変化(下)
 (Sim.: Ebase計算、Obs.: 観測)

[5-2105]



図2-8 2005年(左)と2015年(右)におけるMDA8 0₃濃度の空間分布(上から年、冬季(1・2・12月)、春季(3・4・5月)、夏季(6・7・8月)、年間上位10日平均値)(Ebase計算)

節よりも濃度が高くなっている。夏季は太平洋からの清浄大気の流入を反映してバックグラウンド濃度 は春季よりも低くなっているが、地域的な光化学生成および海陸風循環での蓄積を反映して原因物質の 排出量が多い主要都市圏周辺で他季節よりも濃度が高くなっている。年間上位10日平均についても、夏 季平均同様に主要都市圏周辺で濃度が高く、高濃度日が主に夏季に発生していることを示している。経 年変動については、主要都市圏周辺においてはおおむね一般局平均と同様に、年平均で横ばい~微増、 冬季平均で増加、春季平均で横ばい~微増、夏季平均で減少、年間上位10日平均で減少という傾向を示 した。

以上の結果より、気象条件、越境輸送、各種対策等を反映した国内排出量といった諸要因の経年変 化を考慮した長期大気質シミュレーションは、実大気と整合的な年平均・季節平均・高0₃濃度の経年変 化を表現できており、諸要因の寄与を評価するための基準として適切であると判断した。

4.2 長期大気質シミュレーションに基づくオゾン感度レジームの解析

 0_3 感度レジームの再現性評価として、図2-9に、サブテーマ3で地上分光計測が実施された千葉およびつくばにおける暖候期(4~9月)のレジーム出現頻度の経年変化を示す。 0_3 感度レジームは、FNRに基づいて日別にVOC-sensitive (FNR < 1)、Transition(1 < FNR < 2)、NO_x-sensitive(2 < FNR)と判定した。計算結果については、水平方向に10 km、鉛直方向に地上0~1 km、各日13~14時の値を平均化して用いた。千葉・つくばともに、計算の方が観測に比べてVOC-sensitiveの頻度が高い。これは、計算で一貫して過小評価となっていたNO₂濃度よりも、HCHO濃度がやや大きく過小評価されていることを意味している。一方、千葉ではVOC-sensitiveの頻度が高く、つくばではNO_x-sensitiveの頻度が高いという地域差については計算で再現できている。サブテーマ3の観測結果と比較可能な2013~2020年は 0_3 感度レジームの経年変化は観測・計算ともに不明瞭であるが、計算においては期間全体としてはVOC-sensitiveからNO_x-sensitiveに移行しつつある。これは、サブテーマ1で推計された国内排出量において、NO_xの方がVOC(植物起源含む)よりも経年的な減少率が高い(図1-3)ことによると考えられる。



図2-9 暖候期(4~9月)の千葉(上)およびつくば(下)における0₃感度レジーム出現頻度の経年変化(Sim.: Ebase計算、Obs.: 観測)

03感度レジーム境界値の推計について、図2-10に、2005年および2015年の大気質シミュレーション結 果に基づく、N0xあるいはVOC排出量の2割変化に対する地上03濃度の感度と参照高度別(第1層:地上0 ~約30 m、地上0~1 km、大気全層:地上0~約20 km)のFNRの関係を示す。03感度およびFNRは、関 西・関東域の各一般局に対応する各計算格子における暖候期(4~9月)の各日13~14時の月平均値から 算出した。2015年の方が2005年よりも全体的にFNRが高く、VOC-sensitiveの地点・期間が減少し、N0xsensitiveの地点・期間が増加している。また、参照高度が高くなるほどFNRが高くなっている。これ は、N02の方がHCH0よりも相対的に地表付近で濃度が高い鉛直分布となっていることを意味している。 これらの結果を基に推計した03感度レジーム境界値を表2-3に示す。Du et al. (2022)と同様に、VOCsensitiveのレジーム境界値は、各年でVOC-sensitive(N0x排出量変化に対する地上03濃度の感度が 負)を示した地点・月におけるFNRの95%値として推計した。また、N0x-sensitiveのレジーム境界値



 図2-10 大気質シミュレーションに基づいて推計した関西・関東域の各一般局における2005年(左) および2015年(右)の暖候期(4~9月)におけるNOxあるいはVOC排出量の2割変化に対する地 上O3濃度の感度(各日13~14時の月平均値)と参照高度別FNR(上:第1層、中:地上0~1 km、下:大気全層)の関係

	FNR (貨	第1層)	FNR (‡	也上0~1 km)	FNR(大	気全層)
左	VOC-	NOx-	VOC-	NOx-	VOC-	NOx-
+	sensitive	sensitive	sensitive	sensitive	sensitive	sensitive
2000	0.58	0.79	0.93	1.77	1.47	2.49
2005	0.56	0.88	0.91	1.77	1.50	2.53
2010	0.55	0.86	0.91	1.71	1.49	2.60
2015	0.53	0.69	0.92	1.37	1.61	2.34
2020	0.49	0.68	0.90	1.25	1.72	2.16

表2-3 大気質シミュレーションに基づいて推計した各年の日本の主要都市圏における参照高度別FNR の03感度レジーム境界値

は、各年でNO_x-sensitive (NO_x排出量変化に対する地上O₃濃度の正の感度が、VOC排出量変化に対する地 上O₃濃度の正の感度よりも大きい)を示した地点・月におけるFNRの5%値として推計した。FNRのレジー ム境界値は、参照高度が高くなるほどが高い値をとった。O₃感度レジーム再現性評価に用いたVOCsensitiveのFNR < 1およびNO_x-sensitiveの2 < FNRと比べると、地上O~1 kmではやや小さく、大気全 層ではやや大きくなった。このレジーム境界値推計結果は大気質シミュレーションのみによるものであ り、必ずしも実大気と一致するとは限らないが、ある程度上空まで参照したFNRを用いることで既往研 究とも比較可能であることが示唆された。一方、経年変化については、年別に差異はあるものの、高度 による差異に比べると小さく、明確な傾向は見いだせない。したがって、2000~2020年の日本の主要都 市圏においては、ある一定のFNR値を用いて03感度レジームの時間方向、水平方向の相対変化を議論す ることができると考えられる。

4.3 長期大気質シミュレーションに基づくオゾン濃度経年変化に対する諸要因の寄与評価

図2-11に、関西・関東域における一般局平均でのN02濃度およびMDA8 03濃度の年平均値の経年変化に 対する各要因、すなわち国内全部門排出、気象場、越境輸送、国内VOC蒸発排出、国内自動車排出、国 内大規模固定燃焼排出、国内その他排出の寄与の推計結果を示す。年平均N02濃度の経年的な減少は、 ほぼ全て国内排出量の経年的な減少の寄与によって説明できる。サブテーマ1の国内排出量推計結果に おいて自動車およびその他部門のN0x排出量減少が大きい(図1-3)ことを反映して、これらの寄与が N02濃度減少に対して支配的となった。年平均MDA8 03濃度の経年的な微増傾向に対しては、国内排出と 越境輸送が同程度に寄与している。越境輸送については、主に2000年代に増加に寄与しており、2010年 代はほぼ横ばいである。国内排出については、VOC蒸発排出量の減少は03濃度減少に寄与しているが、 自動車およびその他部門のN0x排出量減少に伴うN0タイトレーション効果の減少が03濃度増加に寄与 し、正味で増加となった。

図2-12に、関西・関東域における一般局平均でのMDA8 03濃度の季節別平均値の経年変化に対する各 要因の寄与を示す。冬季の明瞭な経年的増加について、地域的な03生成量が少ないためVOC蒸発排出量 の減少の03濃度変動への寄与が小さく、自動車およびその他部門のNOx排出量減少に伴うNOタイトレー ション効果減少による03濃度増加の寄与が支配的であった。また、越境輸送の増加も寄与していた。春 季の増加傾向について、国内排出と越境輸送が同程度に寄与している。国内排出については、冬季に比 べるとVOC蒸発排出量の減少による03濃度減少は大きく、NOタイトレーション効果減少による03濃度増 加は小さくなったが、それでも正味では03濃度増加となった。夏季における経年的な減少傾向は、ほぼ 国内排出量の経年的な減少の寄与であり、部門別にはVOC蒸発の寄与が支配的であった。夏季における 年々変動については、気象場の寄与の年々変動と概ね対応した。気象要因としては、広域的な輸送場、 地域的な循環・滞留、光化学反応、植物起源VOC排出量などが含まれるため、それらの要因の各寄与を 分離するためにはさらなる解析が必要である。

図2-13に、関西・関東域における一般局平均での年間上位10日平均MDA8 03濃度の経年変化に対する 各要因の寄与を示す。夏季平均MDA8 03濃度の場合と同様に、経年的な年間上位10日平均03濃度減少は ほぼ国内排出量の経年的な減少によるものであり、年々変動はほぼ気象場の年々変動によるものであ る。国内排出の部門別にはVOC蒸発排出量減少の寄与が支配的ではあるが、自動車排出量減少について も夏季平均に比べると寄与率が高くなった。また、図2-14に、年間上位10日平均MDA8 03濃度の経年変 化およびそれに対する各要因の寄与のトレンド(2000~2020年の経年変化に対する単回帰直線の傾き) の空間分布を示す。主要都市圏周辺においては、03濃度減少に対する寄与は、一般局平均と同様に、 VOC蒸発排出量減少が最も大きく、次いで自動車排出量減少が大きくなっている。一方で、自動車排出 量減少はより広域的に03濃度減少効果が確認でき、主要都市圏中心部におけるNOx排出量減少が、風下 地域における03生成量減少につながっていることが示唆された。同様の傾向は、N0x排出量減少が大き いその他部門の寄与からも読み取ることができる。また、気象場の経年変化は年間上位10日平均MDA8 03濃度の経年的な増加に寄与しているが、上述の通り気象場は03濃度の年々変動に対する寄与が大き く、期間後半の2013年や2015年の高濃度日には広域的な輸送場の年々変動により生じたと考えられる越 境輸送の影響を強く受けている日も含まれている。したがって、2000~2020年の気象場の経年変化が真 に高濃度日における03濃度の経年的な増加に寄与しているかを判断するためにはさらなる解析が必要で ある。



図2-11 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均での年平均NO2濃度(上)およびMDA8 O3濃度 (下)の経年変化(対2015年偏差)の再現計算結果(ΔEbase)に対する国内全部門排出(Δ Ejpn)・気象場(ΔMet)・越境輸送(ΔTBP)の経年変化の寄与と国内VOC蒸発排出(Δ EjpnVOC)・国内自動車排出(ΔEjpnVeh)、国内大規模固定燃焼排出(ΔEjpnLPS)、国内そ の他排出(ΔEjpnOthr)の寄与(図中の数値は再現計算および各寄与の経年変化に対する単 回帰直線の傾き(ppb/y))



図2-12 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均での冬季(1・2・12月)(上)、春季(3・4・5月)(中)、夏季(6・7・8月)(下)平均MDA8 0₃濃度の経年変化(対2015年偏差)の再現計算結果(ΔEbase)に対する国内全部門排出(ΔEjpn)・気象場(ΔMet)・越境輸送(ΔTBP)の経年変化の寄与と国内VOC蒸発排出(ΔEjpnVOC)・国内自動車排出(ΔEjpnVeh)、国内大規模固定燃焼排出(ΔEjpnLPS)、国内その他排出(ΔEjpnOthr)の寄与(図中の数値は再現計算および各寄与の経年変化に対する単回帰直線の傾き(ppb/y))



図2-13 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均での年間上位10日平均(Top10) MDA8 0₃濃 度の経年変化(対2015年偏差)の再現計算結果(ΔEbase)に対する国内全部門排出(Δ Ejpn)・気象場(ΔMet)・越境輸送(ΔTBP)の経年変化の寄与と国内VOC蒸発排出(Δ EjpnVOC)・国内自動車排出(ΔEjpnVeh)、国内大規模固定燃焼排出(ΔEjpnLPS)、国内そ の他排出(ΔEjpnOthr)の寄与(図中の数値は再現計算および各寄与の経年変化に対する単 回帰直線の傾き(ppb/y))



 図2-14 年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の経年変化の再現計算結果(ΔEbase)およびそれに対する国内 全部門排出(ΔEjpn)・気象場(ΔMet)・越境輸送(ΔTBP)・国内VOC蒸発排出(Δ
 EjpnVOC)・国内自動車排出(ΔEjpnVeh)、国内大規模固定燃焼排出(ΔEjpnLPS)、国内そ の他排出(ΔEjpnOthr)の寄与のトレンド(2000~2020年の経年変化に対する単回帰直線の 傾き)の空間分布 03濃度の年々変動に対する気象場の年々変動の寄与を定量的に示すため、図2-15に、関西・関東域に おける一般局平均での年、各季節、年間上位10日平均MDA8 03濃度の年々変動に対する気象場の寄与の 年々変動(2000~2020年の経年変化についての単回帰直線と年別値の偏差)を示す。年々変動が大きい 夏季平均や年間上位10日平均においては、03濃度全体の年々変動と気象場の寄与の年々変動に強い相関 (r = 0.95~0.97)があり、気象場の寄与は03濃度全体の年々変動の大部分(76~89%)を占めた。図 2-16に、年間上位10日平均MDA8 03濃度の経年変化およびそれに対する各寄与の年々変動の大きさ

(2000~2020年の経年変化に対する単回帰直線と年別値のRMSE)の空間分布を示す。気象場の寄与が支 配的であり、0₃濃度全体とおおむね同様の空間分布となっている。一方で、主要首都圏周辺においては 国内排出、特にVOC蒸発の寄与も見られ、バックグラウンドでは越境輸送の寄与も見られる。ただし、 ここでは年々変動を期間全体の回帰直線からの偏差で評価しているため、期間中にトレンドに変化があ ったことを示している場合もある。また、主要都市圏周辺における気象場の年々変動による年間上位10 日平均MDA8 0₃濃度の年々変動は、国内排出量減少による年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の一年あたりの 減少幅よりも数倍大きい。したがって、単年の気象場を用いて対策効果の評価を行う場合には、慎重に 対象年を選定する必要がある。

ここで、本研究で推計した0₃対策効果と、国内における既往の推計事例であり、VOC自主的取組の目 標値設定の根拠とされた、「NO_xの排出を変化させずVOCの排出を30%削減(平成12年度排出量を基準) した場合、17箇所を平均した改善効果の試算結果は光化学オキシダント濃度で約24%の低減」(環境 省,2003)を簡易的に比較する。サブテーマ1で推計された国内VOC蒸発排出量削減率は2000年の国内 総VOC排出量に対して約1.0%/yである。年間上位10日平均MDA8 0₃濃度について、2000年の関西域と関東 域における一般局平均値はそれぞれ92.1 ppbと105.7 ppb(Ebase)、関西域と関東域における一般局平 均での経年変化に対するVOC蒸発排出量減少の寄与は-0.38 ppb/yと-0.83 ppb/y(図2-13)である。こ れらをVOC排出量約30%削減に換算すると、関西域と関東域でそれぞれ約12%と約24%の年間上位10日平 均MDA8 0₃濃度の低減効果となる。したがって、本研究におけるVOC排出削減による0₃濃度低減効果の推 計結果は、関東域の高濃度に対しては環境省(2003)と同程度である。一方で、関西域の高濃度に対す る低減効果はその半分程度である。また、年平均濃度に対する低減効果は図2-11で示した通り限定的で



図2-15 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均での年、冬季(1・2・12月)、春季(3・4・5月)、夏季(6・7・8月)、年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の経年変化における再現計算結果(ΔEbase)と気象場の寄与(ΔMet)の年々変動の大きさ(2000~2020年の経年変化に対する単回帰直線と年別値の偏差)の比較

(図中の数値は年々変動間の相関係数(r)およびΔMet年々変動/ΔEbase年々変動比)



 図2-16 年間上位10日平均MDA8 0₃濃度の経年変化の再現計算結果(ΔEbase)およびそれに対する国内 全部門排出(ΔEjpn)・気象場(ΔMet)・越境輸送(ΔTBP)・国内VOC蒸発排出(Δ
 EjpnVOC)・国内自動車排出(ΔEjpnVeh)、国内大規模固定燃焼排出(ΔEjpnLPS)、国内そ の他排出(ΔEjpnOthr)の経年変化の寄与の年々変動の大きさ(2000~2020年の経年変化に 対する単回帰直線と年別値のRMSE)の空間分布

ある。環境省(2003)の推計でも大気質シミュレーションが用いられたが、本研究とは大気質モデル、 入力データ、対象期間・領域など、様々な面で対策効果推計手法に違いがある。特に対象期間は、環境 省(2003)では夏季・冬季各1日が対象とされており、2000~2020年の全ての日を対象とした本研究と は大きく異なる。本研究においては、諸要因の経年変化を考慮した長期大気質シミュレーションが観測 された03濃度の経年変化を良好に再現しており、長期大気質シミュレーションに基づいて得られた対策 効果推計結果の信頼性も高いと考えられる。

4.4 日本特有の状況を踏まえた高濃度オゾン対策評価手法改良の検討

本研究で実施した長期大気質シミュレーションは関西・関東における年間上位10日平均MDA8 03濃度 の濃度絶対値、経年変化をともに良好に再現できた。したがって、日本の主要都市圏における高濃度03 対策評価においても、アメリカ環境保護庁によるガイドラインの手法を適用することができると考えら れる。一方で、日本における高濃度03に対しては春季を中心に越境輸送の影響も大きいため、ここで は、地域的な高濃度03に対する国内の原因物質の対策効果を評価する手法について検討した。まず、対 象期間全体でのMDA8 03濃度の年間上位10日の出現状況として、図2-17にEbaseと観測における関西・関 東域の一般局での月別出現状況、図2-18にEbaseにおける月別出現状況の空間分布を示す。一般局での 月別出現状況について、関西・関東ともに春季の出現頻度がやや過小評価され、夏季の出現頻度はやや 過大評価されたが、春季における越境輸送の影響を受けやすい関西の方が5月の出現頻度が高くなるな ど、おおむね傾向は再現された。空間分布については、主要都市圏では5~8月に出現頻度が高くなって いるが、バックグラウンドでは4~5月に出現頻度が高く、7~8月の出現頻度は低くなっている。これら の結果は、4~5月の高濃度03は越境輸送による広域的な汚染が支配的であり、7~8月の高濃度03は地域 的な光化学生成および海陸風循環での蓄積が支配的であることを示唆している。

[5-2105]



図2-17 対象期間全体での関西域(左)と関東域(右)の一般局におけるMDA8 0₃濃度の年間上位10日 の出現日に占める各月の割合(Sim.: Ebase計算、Obs.: 観測)



図2-18 対象期間全体でのMDA8 0₃濃度の年間上位10日の出現日に占める各月の割合の空間分布 (Ebase計算)

次に、図2-19にEbaseにおける関西・関東域の一般局でのMDA8 03濃度の年別春季上位10日、夏季上位 10日、地域寄与年間上位10日の月別出現状況を示す。年間上位10日の出現状況からも推測できる通り、 春季上位10日は5月に集中し、夏季上位10日については6~8月に分散した。一方、地域寄与年間上位10 日は関西・関東域ともに地域的な光化学生成および海陸風循環での蓄積の影響が大きくなる7~8月に集 中した。最後に、図2-20に関西・関東域における一般局平均での年別春季上位10日、夏季上位10日、地 域寄与年間上位10日MDA8 03濃度の経年変化に対する国内排出量の経年変化の寄与を示す。越境輸送の 影響が大きい春季の高濃度に対しては、国内排出量減少による効果が限定的である。夏季の高濃度に対 する国内排出量減少の効果は、年間上位10日の場合(図2-13)と同程度かわずかに大きい程度となっ た。一方、地域寄与が大きい場合の高濃度に対する国内排出量減少の効果は、年間上位10日の場合より もやや大きくなり、越境輸送の影響を受けやすい関西で効果の上昇幅がより大きくなった。また、国内 排出の部門別でも年間上位10日の場合との違いがあり、NO_x排出量減少をもたらす自動車、大規模固定 燃焼、その他部門の排出量経年変化による濃度低減の寄与が大きくなった。これは、地域寄与を考慮することで、NO_xが関与する地域的な光化学生成および海陸風循環での蓄積の影響がより反映された結果であると考えられる。



図2-19 関西域(左)と関東域(右)の一般局におけるMDA8 0₃濃度の年別春季上位10日、夏季上位10 日、地域寄与上位10日の出現日に占める各月の割合(Ebase計算)



 図2-20 関西域(左)と関東域(右)における一般局平均での春季(上)、夏季(中)、地域寄与 (下)上位10日平均MDA8 0₃濃度の経年変化(対2015年偏差)に対する国内全部門排出(Δ
 Ejpn)・国内VOC蒸発排出(ΔEjpnVOC)・国内自動車排出(ΔEjpnVeh)、国内大規模固定燃
 焼排出(ΔEjpnLPS)、国内その他排出(ΔEjpn0thr)の寄与
 (図中の数値は各寄与の経年変化に対する単回帰直線の傾き(ppb/y))

【参考文献】

Araki et al., 2017, Effect of spatial outliers on the regression modelling of air pollutant concentrations: A case study in Japan, Atmospheric Environment, 153, 83-93

- 茶谷ら,2019,環境研究総合推進費「大気中の二次汚染物質に対する発生源寄与推計と対策立案に資す る規範的モデルの確立(5-1601)」終了研究成果報告書
- Du et al., 2022, Modeling of spatial and temporal variations of ozone-NO x -VOC sensitivity based on photochemical indicators in China, Journal of Environmental Sciences, 114, 454-464
- 環境省, 2003, 揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制について 一検討結果一, https://www.env.go.jp/council/former2013/07air/y075-01/ref01.pdf
- U.S. EPA, 2018, Modeling Guidance for Demonstrating Air Quality Goals for Ozone, PM2.5, and Regional Haze, https://www.epa.gov/sites/default/files/2020-10/documents/o3-pm-rhmodeling_guidance-2018.pdf

5. サブテーマ2研究目標の達成状況

2000~2020年の関西・関東を対象に03濃度変化の諸要因を考慮して実施した長期大気質シミュレーションが、原因物質であるNO2濃度の経年的な減少、季節別に異なる03濃度の経年変化の傾向、高濃度03の 濃度絶対値および経年変化を良好に再現できることを示した。また、原因物質であるHCHO濃度とNO2濃 度の比に基づく03感度レジームについても、地域差を再現できることを示した。これらにより、大気質 シミュレーションが、国内のVOC蒸発、自動車、大規模固定燃焼からの排出量、越境輸送、気象条件と いった各要因の03濃度の経年的な変化に対する寄与の評価に適用可能であることを示した。また、高濃 度03対策評価手法については、アメリカ環境保護庁によるガイドラインの手法が、日本の主要都市圏に おいても適用可能であることを示した。関西・関東における高濃度03の経年変化に対する寄与として、 対象期間全体で、気象条件が年々変動に大きく寄与し、VOC蒸発排出量の減少が長期的な濃度低減に寄 与してきたこと、NOx排出量の減少についても主要都市圏周辺地域や地域汚染時には濃度低減に寄与し てきたことなどを明らかにした。以上より、計画に掲げた研究目標は十分に達成したと判断できる。

また、2000~2020年の21年間にわたる長期間を対象とした大気質シミュレーションは他に例がな く、大気汚染物質濃度の長期的な変動傾向を解析できる貴重なデータセットとして注目されている。既 に環境省の検討会に計算結果を提供して活用されている他、準備ができ次第、大気質シミュレーション の全ての入出力データを一般に公開する予定にしている。このことから、サブテーマ2全体として、目 標を上回る成果が得られたと評価できる。 Ⅱ-3 サブテーマ3「地上分光計測に基づいた排出対策効果の検証」

[サブテーマ3要旨]

サブテーマ3では、地上分光計測を用いて、大気中のホルムアルデヒド(HCHO)と二酸化窒素 (N02)の濃度比に着目し、有効な対策の判断材料となり得る、オゾン生成のNOxとVOCへの依存性(感 度レジーム)の検証を行う。この目的を達成するために、我々が2013年以降、都市域(千葉)と郊外 (つくば) において独自の多軸差分吸収分光法 (Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy; MAX-DOAS法)を用いて実施してきた長期連続地上分光計測を本プロジェクト期間中に継 続し、MAX-DOAS法からリトリーバルされた大気境界層内(高度0~1 km)のNO2、HCHO、オゾン濃度の直 近11年間の長期連続データセットを構築した。加えて、我々が主導している国際リモートセンシング観 測網(A-SKY)の枠組みを活用し、越境汚染の影響を比較的強く受ける福岡県春日市についても直近10 年間の長期連続データセットを構築した。これらのサイトについて、NO2、HCHO、オゾンの各成分の 年々変動を明らかにすると共に、実大気におけるオゾン感度レジームを導出した。千葉においてNO₂と HCHOの濃度は年率6~10%の速度で急激に減少したことが分かった。NO₂とHCHOはそれぞれNO_xとVOCのプ ロキシと考えてもよいので、それらの濃度減少を強く支持する。しかしながら、千葉においてはオゾン の濃度には有意な減少は認められないことも分かった。このことから、NOタイトレーションがオゾン濃 度を決定する上で顕著な役割を果たしていること、さらには、オゾンの生成がVOCで律速されているこ とが分かった(VOC-sensitiveの領域)。他方、つくばにおいては、本研究以前の期間ではオゾン濃度 には有意な変化は認められなかったが、本研究で構築した11年間のデータから有意な減少トレンドが見 出された。減少トレンドを示したことから、つくばはNO_x-sensitiveの領域にあると考えられた。千葉 とつくばの観測結果は春日サイトのデータによって支持された。本研究では、これらの証拠をモデルシ ミュレーションや排出インベントリを使用せずに観測から示すことができた。さらには、VOCsensitive領域においてMAX-DOASデータから見積もられた大気境界層内のHCHO/NO2濃度比は1以下の値を 示すこと、NO_x-sensitive領域では2以上という高い値を示すこと、さらには、2013年以降、千葉の HCH0/NO₂濃度比が減少から増加に転じ、オゾンの生成領域がNO_x-sensitive領域にシフトする傾向があ ることも分かった。これらの結果はサブテーマ2のシミュレーションが示す傾向と整合的であることも 分かった。このように、オゾン濃度低減に対するNOxとVOCの排出削減の有効性を地上分光計測から検証 することできた。さらには、直近を含む独自の長期連続データを活かし、機械学習等を組み合わせて COVID-19の影響や地球沸騰化とオゾン感度レジーム解析の関連も議論した。また、衛星計測データに基 づくオゾン感度レジーム解析(サブテーマ4)に及ぼす雷起源N02の影響はかなり小さいことが分かっ た。本研究においてこれらの独自の地上分光計測をベースに得られた結果は、より一層の国内の大気汚 染対策が必要なことを示唆した。そういった対策の結果として都市域でもオゾン濃度の減少が見込まれ るため、特にNO_xの排出規制の強化に取り組む努力の継続が奨励される。以上のように、サブテーマ3 は総じて目標を上回る成果をあげることができたと考える。

1. サブテーマ3研究開発目的

わが国では目標を上回る排出削減を達成したにもかかわらず、大気中の光化学オキシダントの濃度 はほぼ横ばいで推移しており、光化学オキシダントの環境基準の達成率は低いままである。その問題点 のひとつとして、オゾン濃度の絶対値だけではなく、NO_xやVOCの排出量の変化によるオゾン濃度の変化 をシミュレーションが正確に計算できるかどうかという観点での検証が十分になされていなかったこと が挙げられる。このような背景のもと、本研究課題全体では、対策によるオゾン濃度の低減効果をシミ ュレーションで評価するための標準的な手法の開発と、現在まで蓄積されてきている地上・衛星計測に 基づいた実際の大気質の経年変化に基づき、評価手法の有効性を科学的に裏付けることを目的とする。 そのうち、サブテーマ3では、都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分光計測(MAX-DOAS法)から リトリーバルされた大気境界層内のNO₂、HCHO、オゾン濃度の直近10年間もの長期連続データセットを 構築する。そのデータセットから各成分の年々変動を明らかにすると共に、大気中のHCHOとNO₂の濃度 比に着目し、有効な対策の判断材料となり得る、オゾン生成のNO_xとVOCへの依存性(感度レジーム)の 検証を行うことを目的とする。

2. サブテーマ3研究目標

サブテーマ3	「地上分光計測に基づいた排出対策効果の検証」	
サブテーマ3実施機関	千葉大学	
サブテーマ3目標	都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分光計測(MAX-DOAS法)からリ トリーバルされた大気境界層内のNO ₂ 、HCHO、オゾン濃度の直近10年間もの 長期連続データセットを構築し、各成分の年々変動を明らかにすると共 に、実大気におけるオゾン感度レジームを導出し、オゾン濃度低減に対す るNOXとVOCの排出削減の有効性を地上分光計測から定量的に検証する。	

3. サブテーマ3研究開発内容



図3-1 本研究において地上分光計測(MAX-DOAS法)が行われた千葉とつくばの観測サイトの地理的 位置。各サイトにおいて、MAX-DOAS観測の視線方位が矢印で示されている。線の長さは、典 型的な観測の空間スケール(10 km)を表している。千葉では4台のMAX-DOAS装置が設置さ れ、視線をそれぞれ異なる方位(東西南北)に向け(4-different-azimuth-viewing MAX-DOAS; 4AZ-MAXDOAS)、都市大気であっても4方位のデータを平均して空間代表性を高めた解析 ができるよう工夫した。図の下部に本研究開始時の観測状況を示す。

我々は2013年以降、都市域(千葉;北緯35.63度、東経140.10度、標高21 m)と郊外(つくば;北緯 36.06度、東経140.13度、標高35 m) (図3-1)において独自の多軸差分吸収分光法(Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy; MAX-DOAS法)を用いた地上分光計測を実施してき た。サブテーマ3では、この長期連続計測を本プロジェクト期間中に継続した。後述するように、MAX-DOAS測定から、従来の他の測定手法とは異なる大気境界層内(高度0~1 km)の平均濃度データが導出 される。このMAX-DOASの大気境界層内平均濃度データは地表測定に比べ空間代表性が高く、得られた結 果の解釈が容易になるなどの利点がある。

MAX-DOAS法の原理は差分吸収分光法(Differential Optical Absorption Spectroscopy; DOAS) に 基づく。DOAS法は高波長分解能で測定したハイパースペクトル(素子チャンネル数1024以上)に含まれ る観測対象物(微量気体)の特徴的な吸収スペクトル構造を利用し、Lambert-Beerの法則に基づいて微 量気体の濃度を導出する方法である。測定されるハイパースペクトルには微量気体だけでなくレイリー 散乱やミー散乱等による影響も含まれるが、そういった微量気体の吸収構造よりも低周波(波長方向に 緩やかな構造)の影響は多項式で近似して除去する。これにより、0.1%以下のわずかな吸収をも同定し 微量気体の濃度を高精度で導出できる点が特徴である。DOAS法は、アクティブDOAS法とパッシブDOAS法 に大別される。パッシブDOAS法であり、複数の低仰角測定機能を加えた方法がMAX-DOAS法である。比較 的シンプルな装置ながら、複数の仰角で測定された天空光ハイパースペクトルを、フラウンホーファー 線を利用した高精度な波長キャリブレーション、大気の球面効果などを考慮した放射伝達モデル、非線 形の逆問題をベイズ定理に基づいてLevenberg-Marquardt法で解くなどして精密に解析し、下部対流圏 のエアロゾルや微量気体の高度分布情報を同時に導出できる。本プロジェクトで使用した観測装置は主 に高分解能紫外可視分光器 (Ocean Insight社製Maya2000Pro; 素子チャンネル数2048、波長分解能0.2-0.4 nm) ・受光テレスコープ部(株式会社プリード社製)・光ファイバーで構成される。この装置で測 定された天空光のハイパースペクトルは、我々が独自に開発したJM2 (Japanese MAX-DOAS profile retrieval algorithm, version 2) アルゴリズム (Irie et al., 2011, 2015, 2019, 2021a) (図3-



JM2リトリーバルアルゴリズム

図3-2 我々が開発したA-SKY/MAX-DOASの解析に用いたJapanese MAX-DOAS profile retrieval algorithm, version 2 (JM2) アルゴリズムの概要。

2)を用いて解析され、8成分(2波長のエアロゾル消散係数、二酸化窒素NO2、ホルムアルデヒドHCHO、 グリオキサールCHOCHO、二酸化硫黄SO2、水蒸気H2O、オゾンO3濃度)の高度分布およびその対流圏カラ ムを同時にリトリーバルした。我々はMAX-DOAS法に関わる20年近い経験から、他の研究グループと異な り、MAX-DOASの測定仰角は2度、3度、4度、6度、8度、および70度を基本としている。リファレンスと して90度の代わりに70度の仰角を採用している。これにより、分光器の積分時間を一定に保ちつつ、異 なる全ての仰角で測定された信号強度の変動範囲を抑えることができる利点がある。また、リファレン ス以外の低仰角測定設定は10度未満としている。これにより、酸素の衝突錯体(04;02-02)がDOASフィ ッティング結果に及ぼし得る系統的誤差を最小化させ、さらには、リトリーバルされる高度プロファイ ルの高高度の測定感度を低下させて雲の干渉影響を抑えつつ、低高度の測定感度を高く保つことができ る(Irie et al., 2015)。高高度にも一定量が存在するオゾンについては、太陽天頂角(SZA)が50度 未満のデータのみを解析した。これは、仰角が10度未満であっても、上部対流圏上部/下部成層圏に存 在するオゾンの差分スラントカラム密度への寄与が無視できないためである(Irie et al., 2011)。 このため、オゾンデータは3~10月の期間に限定される。

1回の観測(千葉では15分毎、つくばでは30分毎)について、ランダム誤差と系統誤差の両方を含めた合計の不確かさは、15%(NO₂)、24%(HCHO)、26%(オゾン)と見積もられた。雲の干渉の影響を最小化させるために相対湿度が90%未満のデータのみを解析した。季節に依らす一貫した解析を行うために、現地時刻9~15時に得られたデータから日ごとの中央値を計算した。そのデータをもとに、季節変動や経年変動の解析を行った。

こういった我々独自のMAX-DOAS法による観測は、A-SKY国際地上リモートセンシング観測網(Irie, 2021b)の枠組みで行われた。他のMAX-DOAS法と区別するために、A-SKY/MAX-DOASとも呼ばれる。A-SKY/MAX-DOASは越境汚染の影響を比較的受けやすい福岡県春日市にも設置されており、2014年以降、観測を継続している。本研究では、このA-SKY春日サイトのデータも越境汚染の影響などを評価するために活用した。我々はさらなる試みとして、千葉においてA-SKY/MAX-DOAS装置を4方位(東西南北)に向けたシステム(4AZ-MAXDOAS)(Irie et al., 2021)で観測を行い、都市大気であっても4方位のデータを平均して空間代表性を高めた観測が行えるよう工夫を施した。東京オリンピック/パラリンピックが開催された2021年夏季にはもう1台装置を追加し、5方位の観測も実施した。本課題において、リトリーバルされた濃度データは他サブテーマと共有した。高度分布データのうち、精度が高く本研究と関わりが最も深い大気境界層内(高度0~1 km)のデータを主に解析した。ここで、NO₂とHCHOは、それぞれNO_xとVOCのプロキシとして用いた。各成分の大気境界層内平均濃度の年々変動を明らかにすると共に、HCHO/NO₂の濃度比を用いて実大気におけるオゾン感度レジームを導出し、オゾン濃度低減に対するNO_xとVOCの排出削減の有効性をMAX-DOAS法による観測から評価した。

本研究ではこういったMAX-DOASの長期観測の視点からの評価に加え、COVID-19の影響を受けた期間 に着目した解析も実施した。COVID-19の影響については、具体的には、独自の長期の観測データセット を活かし、それをインプットとした機械学習アプローチにより、COVID-19の影響を受けていないと考え られる濃度の日ごとの変動(ビジネス・アズ・ユージュアル(BAU)モデル、あるいは、BAUシナリオと呼 ぶ)を見積もり、COVID-19影響下で測定されたデータとの差分を計算した。データは、訓練データとし て2014~2019年、テストデータとして2020年のデータに分けた。また、テストデータをCOVID-19発生前 の年に設定して同様にBAUシナリオを見積もり、その年の測定データとの差分を求めて不確実性を推定 し、機械学習から得られた結果を解釈可能とした。同様の機械学習アプローチはAEROS(そらまめく ん)データにも適用し、サブテーマ4の結果と比較できるよう、解析を面的にも拡張させた。さらなる サブテーマ4の衛星観測データの解析結果との整合性評価のために、MAX-DOASの対流圏No₂カラム濃度 データと衛星観測データ(TROPOMI)との相関解析を行った。先行研究として、Dimitropoulou et al. (2020)はTROPOMIの対流圏NO₂カラムデータが都市域において季節に関係なく40~50%過小評価したと報 告している。また、Verhoelst et al.(2021)はMAX-DOASとTROPOMIの比較を行い、様々な地域における TROPOMIの過小評価の度合いを調査し、NO₂カラム濃度が低い地域では過小評価の程度が小さくなる一 方、都市域では過小評価が顕著となり、50%まで達することを報告している。こういった傾向を確認す

60

ると共に、対流圏NO_xの重要な発生源のひとつであるが衛星観測等の対流圏NO₂カラム濃度への影響の定 量的評価が限られている雷起源NO₂の寄与を推定し、衛星観測のHCHO/NO₂濃度比を用いたレジーム評価 への影響を議論した。

4. サブテーマ3結果及び考察

図3-3に、千葉とつくばの両A-SKYサイトでMAX-DOAS法によって観測された大気境界層内(高度0~1 km)のNO₂濃度、HCHO濃度、オゾン濃度の時系列プロットを示す。両サイトのデータが、本研究期間を 含め、11年間にも及ぶ長期のデータセットとなったことが直ちに分かる。なお、オゾン濃度データにつ いては、上述のとおり、大気境界層内濃度の導出に対する高高度(特に上部対流圏および下部成層圏) のオゾンの影響を最小に抑えるために、太陽天頂角が50度未満のデータのみが解析可能である(Irie et al., 2011, 2021)。そのため、データは3~10月の期間に限定されている。



図3-3 (左)千葉と(右)つくばでMAX-DOAS法によって観測された大気境界層内(高度0~1 km)の NO₂濃度、HCHO濃度、オゾン濃度の時系列プロット。日ごとの中央値が点で、67%のデータ範囲 がエラーバーで示されている。本研究により2013年から2023年までの11年間のデータセット を構築することができた(成果番号8を拡張)。

図3-4は、2013~2023年の千葉とつくばのMAX-DOAS観測から得られたNO2濃度、HCHO濃度、HCHO/NO2濃度比、オゾン濃度の季節変化を示す。期待されるように、NO2濃度は、千葉とつくばの両サイト共に冬季に極大を示した。これは主に、冬季は光化学活性が低いため、NO2の寿命が長くなるためであると考えられる。千葉における年平均NO2濃度はつくばよりも高かった。これは、千葉が東京湾岸の強い排出源の近くに位置していることを反映している(図3-1)。0~1 km層の年平均HCHO濃度は、千葉よりもつくばのほうが高かった。HCHO濃度の月中央値はどの月でも1 ppbv以上の値を示した(図3-4)。リモートの海洋大気中のHCHO濃度は1 ppbv以下であると報告されている(Weller et al 2000; Singh et al. 2004)。季節変化は夏季に極大、冬季に極小を示した。これは夏季の光化学反応によるHCHOの二次生成が他の季節に比べて起きやすいためであると考えられる。さらに、周囲温度の上昇に伴って排出量が増加するイソプレンなどの生物起源VOCs(BVOCs)の酸化によって、より多くのHCHOが生成されたものと思われる。つくばのHCHO濃度が高いのは、つくば周辺でBVOCの排出量が多いためと考えられる(Chatani et al., 2015, 2018)。オゾン濃度は、7月と8月を除き、千葉とつくばで同程度であった(図3-4)。7月と8月は通常、北太平洋高気圧が日本付近を覆うように張り出して南風が卓越し、千葉

を含む東京湾岸に清浄な海洋性気団をもたらす。その後、気塊は東京湾上空を通過し、千葉の風下約50 kmに位置するつくばに到達する。この輸送過程のあいだ、夏には活発な光化学反応によりオゾンが二次 的に生成され、つくばではオゾンの濃度が高くなることが考えられる。このように、MAX-DOASの観測か ら得られたNO₂、HCHO、オゾン濃度の季節変動は合理的であることが分かった。



 図3-4 千葉(赤)とつくば(黒)のMAX-DOAS観測から得られた大気境界層内(高度0~1 km)のNO₂と HCHO濃度、HCHO/NO2濃度比、オゾン濃度の季節変化。2013~2023年の11年間における月平均の 中央値を示す。オゾンのデータは大気上層のオゾンの影響が少ない(太陽天頂角が50度以 下)の3~10月のデータのみが示されている。網掛けは67%の範囲を表す(成果番号8を拡 張)。

図3-5に、千葉とつくばにおける大気境界層内のNO2濃度、HCHO濃度、HCHO/NO2の濃度比、オゾン濃度の経年変動を示す。3~10月の中央値が年毎に示されている。千葉においてNO2とHCHOの濃度は年率6~ 10%の速度で急激に減少したことが分かった。NO2とHCHOはそれぞれNOxとVOCのプロキシと考えてもよいので、それらの濃度減少を強く支持する。しかしながら、千葉においてはオゾンの濃度には有意な減少は認められないことも分かった。他方、人工衛星等のデータ解析から、MAX-DOASによる長期観測が実施 された期間は中国を含む東アジア上空の対流圏NO₂カラム濃度が急激に減少しており、アジア大陸を起 源とするオゾンの越境輸送が抑制された、あるいは、変化していない可能性が高い(Irie et al., 2021)。このオゾンの越境汚染の影響の経年変動を考慮すると、千葉では、NO_xやVOC濃度減少に伴って 起きたであろうオゾンの光化学的生成の減少分が、NOタイトレーションによるオゾン減少が起きにくく なった増加分で打ち消されたと考えられる。このように、NOタイトレーションがオゾン濃度を決定する 上で顕著な役割を果たしていること、さらには、オゾンの生成がVOCで律速されていることが分かった (VOC-sensitiveの領域)。他方、つくばにおいては、本研究以前の期間ではオゾン濃度には有意な変 化は認められなかった(Irie et al., 2021)が、本研究で構築した11年間のデータから有意な減少ト レンドが見出された(図3-5)。減少トレンドを示したことから、つくばはNO_x-sensitiveの領域にある と考えられる。以上の証拠を、モデルシミュレーションや排出インベントリを使用せずに、観測から示 すことができた。さらには、VOC-sensitive領域においてMAX-DOASデータから見積もられた大気境界層 内のHCH0/NO₂濃度比は1以下の値を示すこと、NO_x-sensitive領域では2以上という高い値を示すこと、 さらには、2013年以降、千葉のHCH0/NO₂濃度比が減少から増加に転じ(図3-5、右図)、オゾンの生成



 図3-5 千葉とつくばでMAX-DOAS法によって観測された大気境界層内(高度0~1 km)のN02濃度、HCHO 濃度、HCHO/N02濃度比、オゾン濃度の経年変動。3~10月の中央値が示されている。網掛けは 67%の範囲を表す。(右)HCHOとN02の相関プロット。色は年を示す。基本的に、2013~2023年 の11年間のあいだで両成分の濃度は減少したので、左下に向かって時間の進行を示す(黒矢 印)。2021~2022年、2022~2023年の濃度変動は赤矢印で示されている(成果番号8を拡 張)。

領域がNO_x-sensitive領域にシフトする傾向があることも分かった。

他方、サブテーマ2のレジーム出現頻度解析では、つくばは千葉に比べNO_x-sensitiveレジームであること、また、両サイトとも長期的によりNO_x-sensitiveレジームに傾向していることを示した(図2-9)。これらのシミュレーションが示した傾向は、本研究で観測から見出された傾向と定量的に整合していることが分かった。このように、オゾン濃度低減に対するNO_xとVOCの排出削減の有効性を地上分光 計測から定量的に検証することできた(詳細はサブテーマ2を参照)。 2013~2023年の11年間では上記のような重要な長期傾向が見出された。そのうえで、本研究課題が 実施された直近3年間について考察してみると、2021~2022年のあいだでは、NO₂、HCHO共に有意な減少 は認められなかった。これは、この期間にNO_xやVOCの継続的な対策による濃度減少を打ち消すほどの経 済活動回帰による濃度増加が起きたことで説明される。しかし、HCHO/NO₂比は有意な変化を示さなかっ たので、オゾンの変動傾向にも有意な変化は生じなかった。さらに、2022~2023年のあいだでは、継続 的な対策の結果としてNO₂濃度は減少した。しかしながら、HCHO濃度が千葉とつくばの両サイトで増加 したことは大変興味深い。2023年夏季は「地球沸騰化」として注目されるほどの猛暑であった。この猛 暑の影響により、植物起源VOCが増加し、HCHO濃度も増加した可能性がある。こういった植物起源VOCが 増加すると、HCHO/NO₂濃度比は高くなり、やはり、NO_x-sensitive領域へのシフトをもたらすと予期さ れる。このことを裏付けるために、今後も継続的なMAX-DOAS等による観測が望まれる。

本研究では、上記のように千葉とつくばでの観測を継続し、新しい観測事実を得ることができた。 加えて、我々が主導しているA-SKY国際リモートセンシング観測網の枠組みにおいて、越境汚染の影響 を千葉などの東日本よりも強く受ける福岡県春日市(春日サイト;北緯33.52度、東経130.48度、標高 28 m)においてもMAX-DOASによる観測を継続した。これにより、春日サイトにおいても直近10年間の長 期連続データセットを構築することができ、越境汚染の影響の議論が可能となった。図3-5と同様に解 析した春日サイトの結果を図3-6に示す。図3-6には、比較のため、千葉サイトのデータも重ねてプロッ トされている。この図より、春日サイトにおいてもN0²とHCHO濃度が千葉サイトと同様に長期的に減少 していたことが分かった。また、HCHO/N0²濃度比についても1以下の値を示し、近年は増加に傾向し て、N0^x-sensitive領域へのシフトが起きていることを支持する結果を示した。他方、2014~2019年の 期間では春日サイトと千葉サイトのあいだにオゾン濃度の顕著な違いが見られた(図3-6)。春日サイ トのオゾン濃度は千葉よりも約10 ppbv、系統的に高かったことが分かる。春日サイトが大陸に近いこ と、また、COVID-19が発生した2020年にオゾン濃度が急に減少したことから、この10 ppbvの差のうち



図3-6 図3-5と同様だが、A-SKY国際リモートセンシング観測網の枠組みにおいて福岡県春日市(春日サイト)でMAX-DOAS法によって観測された大気境界層内(高度0~1 km)のデータを示す。 比較のために、千葉のデータが重ねて示されている。

少なくとも一部は、中国など大陸からの越境汚染の寄与と考えられる。その期間よりも越境汚染の影響 が小さいと考えられる2020~2023年の4年間においてはオゾン濃度の年々変動が千葉やつくばと同様に 横ばいを示した。このことは、本研究で主として実施した千葉とつくばの観測から得られた結果を支持 するものである。

こういった10年間を越える長期的観測から得られた結果を確認するために、COVID-19の影響を強く 受けたCOVID-19発生直後の期間にも着目した。その解析において、MAX-DOAS観測に加え、衛星観測 (OMI、TROPOMI)、現場観測、再解析データ、および、ボックスモデルシミュレーションを組み合わせ て、首都圏におけるNO₂、HCHO、オゾン濃度の時空間変動を調べた。2020年1年間ではNO₂濃度は約10% 減少し、緊急事態宣言下では40%を超える減少を示した地域もあったことが分かった(Damiani et al., 2022)。他方、HCHOとオゾンの変化は小さかったことも分かった。さらに、2020年の都市域で は、NO₂とHCHOのウィークエンド効果(日曜日と平日の値の差)が顕著に大きくなったことが見出され た(図3-7)。この顕著なウィークエンド効果は近年稀であり、他国と違って異常なほど減少した日本 の週末のモビリティ(人流)と同期していることが分かった(図3-7)。これは、日本では厳しい法的 規制がなされなかったにもかかわらず、COVID-19パンデミックの拡大を抑えるための自主規制が強く働 き、一般的な習慣が変化した結果、独特の大気質の変化が生じたものと考えられる。



図3-7 (左) 2019年と2020年のTROPOMI衛星センサーの対流圏NO₂カラム濃度のウィークエンド効果(日 曜日と平日の値の差)の空間分布。赤が100%減、白が0%、青が100%増を示す。(右) COVID-19の影響を強く受けた世界の大都市圏について、場所カテゴリー「Transit stations」の Googleモビリティデータの2020年2月7日~12月31日とCOVID-19以前(2020年1月3日~2月6 日)のあいだの変化割合の週内変化。日本とイタリアについては、それぞれ9都市(東京、神 奈川、埼玉、千葉、京都、奈良、大阪、福岡、長崎)と4都市(ミラノ、ローマ、ナポリ、ト リノ)の平均値が太線で示されている(成果番号14)。

このように、COVID-19の影響で我が国の大気質が明らかに変化した。この機会を活用し、対策とオ ゾン化学の理解を深めるために、機械学習を用いて日スケールでの変動についても解析を行った。図3-8は、人流(モビリティ)が著しく低下した2020年前半において、千葉のMAX-DOASが観測した大気境界 層(高度0~1 km)のN02濃度と千葉周辺の複数のAEROS(そらまめくん)観測地点で測定された地表付 近のN02濃度の時系列を示す。加えて、各種気象データを説明変数として機械学習で計算されたBAUモデ ルの値(BAUシナリオ)も示されている。BAUシナリオはMAX-DOASのN02濃度の変動を良く再現できてい ることが分かる。非常事態宣言が発令された期間以前は、BAUシナリオは観測値とよく一致する傾向が 認められ、MAX-DOASとAEROSのいずれもNO2の減少は起きていたとしてもわずかであることが分かる。こ の結果を踏まえてBAUシナリオよりも有意にNO2濃度が低濃度となった期間を考察すると、それは4月下 旬からで、ゴールデンウィークが始まるタイミングであったことが分かった。この濃度減少は5月末ま で続き、その後一旦濃度が戻ったが、6月に再び減少した。AEROSデータも同様の特徴を示した。しかし ながら、AEROSについては対応するBAUシナリオの特に2月の変化の再現性には課題がありそうである。 大きなエラーバーはこの期間と測定地点ではBAUシナリオが一般的に高い精度で計算されることが難し



図3-8 2020年1月20日から6月28日までの期間において、千葉でMAX-DOASが観測した高度0~1 km層の N02濃度(緑)とAEROS(そらまめくん)が測定した地表付近のN02濃度(赤)の時系列プロット。 太線は観測値、細線は機械学習でモデル化された濃度(BAUシナリオ)を示す。Googleのモビリ ティデータ(灰色)のスケールは右側の軸で示されている(成果番号16)。

いことを意味する。このような課題が認められたが、非常事態宣言下ではBAUシナリオと観測値の差は 誤差よりも大きいこと、5月と6月の各月において25%ものNO₂濃度の有意な減少が2週間程度続いたこと が分かった(図3-8)。

千葉に着目して機械学習を用いて得られた結果を面的に拡張するために、図3-9のように、各AEROS サイトにおいて、緊急事態発生時(4月7日から5月25日)の地表NO₂とオゾン濃度の変化量(観測値から BAUモデル値(BAUシナリオ)を差し引いた値)の空間分布を解析した。NO₂濃度の変化はほぼ全域でマ イナスの値を示した。NO₂濃度は東京都心部で最大を示し、その結果、絶対変化量も最大を示した。NO₂ 濃度はほとんどの地点で20~30%減少した。NO₂排出量の減少は、道路沿いの測定地点の方が他の測定地 点に比べて顕著であったが、東京都心での変化は均質に分布していた。他方、オゾンの変化はほとんど の地点で認められなかった。しかしながら、主要な市街地ではプラスの変化、郊外や地方ではマイナス の変化の傾向が見られた。東京都心部など、オゾン濃度の増加とNO₂濃度が高い場所は空間的に一致す ることが分かった(図3-9)。上述したMAX-DOASによる長期観測から得られた都市域(千葉)はVOCsensitiveのオゾン生成領域であるという結果と整合する結果である。さらに、サブテーマ4の衛星デ ータの結果とも整合的であったことが分かった。

これらの観測事実は、より一層の国内の大気汚染対策が必要なことを示唆する。その対策の結果として都市域でもオゾン濃度減少が見込まれるため、特にNO_xの排出規制の強化に取り組む努力の継続が 奨励される。この重要な結論に加え、本研究で活用したMAX-DOAS法は、大気汚染対策に役立つHCHOと NO₂の濃度比の指標に加えて、大気境界層内のオゾン変動を解析するためのユニークな多成分連続観測 データを提供することも分かった。

本研究では、上記の長期観測に加え、2021年7月26日~8月8日に集中観測(千葉キャンペーン2021) を千葉大学で実施し、通常4台のMAX-DOASに1台(北東の視線方位)追加し、合計5台による同時計測な



図3-9 緊急事態宣言時(2020年4月7日~5月25日)の各AEROSサイトにおける地表NO₂濃度とオゾン濃度の絶対変化量。ここで、変化量とは2020年の測定値から機械学習でモデル化された値(BAU シナリオ)を差し引いた値を意味する(成果番号16)。

どから観測誤差を評価した。追加した北東の濃度データは、既存の北と東のあいだの数値を取ることが 多く、他の4台のデータに比べて逸脱する傾向も示さなかった。このことは長期実施してきた4台のシス テムによる観測の千葉周辺の空間代表性を担保する。図3-10にMAX-DOASの対流圏NO₂カラム濃度データ の時系列を示す。NO₂濃度は朝方に高く、日中に減少、夕方に再上昇するという特徴的な日変化を示し た。また、市街地や工場が多く存在する南方向に観測視線を向けたMAX-DOASのデータ(図3-10中のMAX-DOAS4)は系統的に高い濃度を示した。7月26日、27日、31日、8月7日、8日では、1日を通してMAX-DOAS



図3-10 千葉大学で実施した集中(千葉キャンペーン2021)期間におけるMAX-DOASとTROPOMIの対流圏 NO₂カラム濃度データの時系列。TROPOMIのデータが黒で示されている。異なる方位(北、西、 東、南、北東)に観測視線を向けたMAX-DOASのデータは異なる色(水色、紫色、緑、青、オ レンジ)で示されている。

のNO₂データが比較的低い値を示した。これは、人為起源などによるNO₂排出の影響が非常に小さかった ためである。それらの日のうち、衛星データ(TROPOMI)の値がMAX-DOASの値よりも顕著に高い事例を7 月31日に見出した。実際、同じ観測時刻における比較を行うと、TROPOMIの対流圏NO₂カラム濃度がMAX-DOASの値のおよそ2倍に達していることが分かった。この要因を調べるために、気象庁の雷監視システ ム(LIghtning DEtection Network system; LIDEN)の雷フラッシュデータと後方流跡線を解析した。す ると、この事例の観測前1日以内に雷活動が非常に活発であった領域から空気塊が千葉上空に輸送され ていることが分かり、同定されたTROPOMIのNO₂濃度の増大は雷起源NO_xによることが強く示唆された。

このことを確認し、さらにはLIDENの雷フラッシュ見落としの影響や後方流跡線の不確実性を最小化 させるために、2019~2022年の長期間に解析を拡張し、図3-11で示されているように、MAX-DOASと TROPOMIの相関解析を行った。この相関解析において、簡単のため、MAX-DOASの対流圏N0₂カラム濃度を M-N0₂、TROPOMIの対流圏N0₂カラム濃度をT-N0₂と定義する。もし、雷起源N0_xの影響やTROPOMIの過小評 価の影響がない場合、T-N0₂: M-N0₂=1:1の関係を示すと考えられる。Verhoelst et al. (2021)に より報告されているようにT-N0₂が50%の過小評価をする場合は、データはT-N0₂: M-N0₂=1:2の関係を 示すと考えられる。ここで、雷起源N0_xの影響が無い、あるいはほとんど無い日におけるT-N0₂を導出 し、T-N0₂*と定義した。T-N0₂*は千葉サイトを中心とした800 km × 800 kmの範囲において1日当たりの フラッシュ総数が閾値2941回以下であった日のデータから算出された。この閾値はフラッシュ総数の中 央値に相当する。中央値の代わりに30%タイル値を閾値としてもT-N0₂*はほとんど変わらなかったの で、データ数がより多い中央値を閾値に採用した。MAX-DOASによる観測は中上部対流圏への感度が低い ため、このT-N0₂*からの偏差 Δ T-N0₂*は中上部対流圏のN0₂カラム濃度の増加量とみなすことができる。



図3-11 (左)相関解析を用いた衛星データの検証と雷起源NO_xの影響評価方法の概念図。(右)2019 ~2022年夏季(7月と8月)におけるT-NO₂とM-NO₂の相関プロット。雷起源NO_xの影響の可能性 のあるデータが見やすいように、軸の最大値は1x10¹⁶ molecules cm⁻²として、対象領域を拡大 した。雷起源NO_xの影響が無い、あるいはほとんど無いと考えられる日のデータが水色で、そ れ以外のデータが青でプロットされている。T-NO₂*を赤で示す。

衛星の観測誤差も考慮し、 $\Delta T-NO_2 \dot{n}T-NO_2^*+2\sigma$ を上回った事例として4日間のデータが抽出された (表3-1、図3-11)。2021年7月31日の事例については、後方流跡線解析の結果とも整合し、雷起源NO_x の影響を受けている可能性が高いことが分かった。この事例における雷起源NO₂量は(1.6±1.5)×10¹⁵ molecules cm⁻²と定量化できた。また、雷起源NO₂は最大でも3×10¹⁵ molecules cm⁻²程度であり、衛星 観測の誤差に相当する大きさであることも分かった。なお、この鉛直カラム濃度は、高度 5km、厚さ 2(4) kmの層を想定すると、0.2(0.4) ppbvの体積混合比に相当する。このように、衛星計測データに基づくオゾン感度レジームの議論(サブテーマ4)への雷起源NO₂の影響はかなり小さいことが分かった。

表3-1 抽出された ΔT-NO₂がT-NO₂*+2σを上回った事例

	日付	Δ T-NO $_2(10^{15}$ molecules cm $^{-2})$
1	2019年7月15日	1.8 ± 1.8
2	2021年7月31日	1.6 ± 1.5
3	2021年8月5日	1.3 ± 1.7
4	2021年8月26日	2.6 \pm 2.7

今後、気候変動の結果として雷活動が増加することに伴って、こういった有意な事例が増加するこ とが予想される。このように、ΔT-NO₂をモニタリングすることで、1フラッシュあたりのNO_x生成量の 精度向上だけでなく、物質の観点から気候変動に伴う雷活動の活発化を検出することにつながることが 期待される。

【参考文献】

- Chatani, S., S. Matsunaga, and S. Nakastuka, 2015. Estimate of biogenic VOC emissions in Japan and their effects on photochemical formation of ambient ozone and secondary organic aerosol. Atmos Environ 120:38–50. 10.1016/j.atmosenv.2015.08.086
- Chatani S., M. Okumura, H. Shimadera, K. Yamaji, K. Kitayama, S. N. Matsunaga, 2018. Effects of a detailed vegetation database on simulated meteorological fields, biogenic VOC emissions, and ambient pollution concentrations over Japan. Atmosphere 9(5):179. 10.3390/atmos9050179
- Dimitropoulou, E., F. Hendrick, G. Pinardi, G., M. M. Friedrich, A, Merlaud, F, Tack, H. De Longueville, C. Fayt, C. Hermans, Q. Laffineur, F. Fierens, and M. Van Roozendael, 2020. Validation of TROPOMI tropospheric NO₂ columns using dual-scan multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) measurements in Uccle, Brussels, Atmospheric Measurement Techniques, 13, 5165-5191, 10.5194/amt-13-5165-2020
- Irie, H., H. Takashima, Y. Kanaya, K. F. Boersma, L. Gast, F. Wittrock, D. Brunner, Y. Zhou, and M. Van Roozendael, 2021. Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations, Atmospheric Measurement Techniques, 4, 1027-1044, 10.5194/amt-4-1027-2011
- Irie, H., T. Nakayama, A. Shimizu, A. Yamazaki, T. Nagai, A. Uchiyama, Y. Zaizen, S. Kagamitani, and Y. Matsumi, 2015. Evaluation of MAX-DOAS aerosol retrievals by coincident observations using CRDS, lidar, and sky radiometer in Tsukuba, Japan, Atmospheric Measurement Techniques, 8, 2775-2788, 10.5194/amt-8-2775-2015
- Irie, H., H. M. S. Hoque, A. Damiani, H. Okamoto, A. M. Fatmi, P. Khatri, T. Takamura, and T. Jarupongsakul, 2019. Simultaneous observations by sky radiometer and MAX-DOAS for characterization of biomass burning plumes in central Thailand in January-April 2016, Atmospheric Measurement Techniques, 12, 599-606, 10.5194/amt-12-599-2019
- Irie, H., D. Yonekawa, A. Damiani, H. M. S. Hoque, K. Sudo, and S. Itahashi, 2021a. Continuous multi-component MAX-DOAS observations for the planetary boundary layer ozone variation analysis at Chiba and Tsukuba, Japan from 2013 to 2019, Progress in Earth and Planetary Science, 8, 31, 10.1186/s40645-021-00424-9
- Irie, H., 2021b. International air quality and sky research remote sensing network (A-SKY):

Its development and satellite atmosphere product validation, Journal of the Remote Sensing Society of Japan, 41, 5, 575-581, 10.11440/rssj.41.575

- Singh, H. B., L. J. Salas, R. B. Chatfield, E. Czech, A. Fried, J. Walega, M. Evans, B. D. Field, D. J. Jacob, D. Blake, B. Heikes, R. Talbot, G. Sachse, J. H. Crawford, M. A. Avery, S. Sandholm, and H. Fuelberg, 2004. Analysis of the atmospheric distribution, sources, and sinks of oxygenated volatile organic chemicals based on measurements over the Pacific during TRACE-P. J Geophys Res 109:D15S07. 10.1029/2003JD003883
- Verhoelst, T., S. Compernolle, G. Pinardi, J.-C. Lambert, H. Eskes, K.-U. Eichmann, A. M. Fjæraa, J. Granville, S. Niemeijer, A. Cede, M. Tiefengraber, F. Hendrick, A. Pazmiño, A. Bais, A. Bazureau, K. Bognar, A. Dehn, S. Donner, M. Gebetsberger, F. Goutail, M. Grutter de la Mora, A. Gruzdev, G. Hansen, H. Irie, N. Jepsen, Y. Kanaya, D. Karagkiozidis, R. Kivi, P. Levelt, C. Liu, M. Müller, M. N. Comas, A. Piters, J.-P. Pommereau, T. Portafaix, O. Puentedura, R. Querel, J. Remmers, A. Richter, J. Rimmer, C. R. Cárdenas, L. S. de Miguel, V. Sinyakov, K. Strong, M. V. Roozendael, P. Veefkind, T. Wagner, F. Wittrock, M. Y. Gonzalez, C. Zehner, M. Gratsea, A. Elokhov, K. Kreher, and K. F. Boersma, 2021. Ground-based validation of the Copernicus Sentinel-5P TROPOMI NO₂ measurements with the NDACC ZSL-DOAS, MAX-DOAS and Pandonia global networks, Atmos. Meas. Tech., 14, 481-510, 10.5194/amt-14-481-2021
- Weller R., O. Schrems, A. Boddenberg, S. Gab, and M. Gautrois, 2000. Meridional distribution of hydroperoxides and formaldehyde in the marine boundary layer of the Atlantic (48° N-35° S)measured during the Albatross campaign, J. Geophys Res. 105(14):401–14 412, 10.1029/1999JD901145

5. サブテーマ3研究目標の達成状況

サブテーマ3では、1)都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分光計測(MAX-DOAS法)からリ トリーバルされた大気境界層内のNO₂、HCHO、オゾン濃度の直近10年間もの長期連続データセットを構 築すること、2)各成分の年々変動を明らかにすると共に、実大気におけるオゾン感度レジームを導出 すること、3)オゾン濃度低減に対するNO_xとVOCの排出削減の有効性を地上分光計測から定量的に検証 することを目標に掲げた。これらの目標に対して、1)都市域(千葉)と郊外(つくば)において地上分光 計測(MAX-DOAS法)からリトリーバルされた大気境界層内のNO₂、HCHO、オゾン濃度の直近11年間の長 期連続データセットを構築し、越境汚染の影響を比較的強く受ける福岡県春日市についても直近10年間 の長期連続データセットを構築することができた。また、2)各成分の年々変動を明らかにすると共 に、実大気におけるオゾン感度レジームを導出すると共に、直近の独自データを活かし、COVID-19の影 響や地球沸騰化との関連も議論した。さらには、3)オゾン濃度低減に対するNOxとVOCの排出削減の有 効性を地上分光計測から定量的に検証した。このように、目標を上回る成果をあげることができた。 Ⅱ-4 サブテーマ4「衛星計測に基づいた排出対策効果の検証」

[サブテーマ4要旨]

サブテーマ4は衛星計測に基づいて排出対策効果を検証することが研究目標である。そのため、ま ず1年目に衛星計測データによるNO₂およびHCHO鉛直積算濃度からオゾン感度レジームを推定するための 解析手法を確立した。2005-2019年までの15年分の長期間にわたる衛星計測データの解析結果から、東 アジアスケールでオゾン感度レジームが緩やかにNO_x-sensitiveへと推移したことを解明した。2年目に はサブテーマ間の連携を通じ、シミュレーションと衛星計測データとを統合的に解析することで、地表 面近傍と対流圏の鉛直積算濃度との対応関係について考察した。自動車などの地表面近傍の発生源と製 造業・発電所等の排出高度を有する発生源の複雑な排出量変化にもよらず、地表面近傍と鉛直積算濃度 の変化傾向がよく一致したことから、両者を対応づける比は時空間的にほぼ一様であることを示した。 3年目には、排出対策効果を実大気で検証できる事例解析の一つとしてCOVID-19を取り上げ、劇的な排 出量変化時のオゾン濃度の応答を評価した。年々の気象場の変動はオゾン濃度にも影響を及ぼす要因で あり、特に2020年5月には日射量が2019年比で大きく減少したため、気象場の影響も受けてオゾン濃度 が減少していたことがわかった。COVID-19に伴う人間活動の制限に伴って、NO_{*}排出量の減少のために NO_xタイトレーションの効果が弱まり、月平均濃度としては都市域(東京・大阪・名古屋)ではオゾン 濃度が増加し、一方で郊外ではオゾン濃度が減少した。これに対して、高濃度(日中最大値の月最大 値)に着目をすれば、日本ほぼ全域でオゾン濃度が減少した。排出対策効果を計るためには、オゾン濃 度をさまざまな時間スケールで検証する重要性がCOVID-19の事例解析結果から導かれた。以上の3年に わたる研究成果を通じて、サブテーマ4は衛星計測に基づいて排出対策効果を検証したことに加え、衛 星計測から得られる鉛直積算濃度の地表面濃度との対応関係の導出や、COVID-19の劇的な大気環境変化 事例の解析にも着手しており、わが国の光化学オキシダント問題に寄与する研究を推進し、目標を上回 る成果をあげた。

1. サブテーマ4研究開発目的

本研究課題では、対策によるオゾン濃度の低減効果をシミュレーションで評価するための標準的な 手法の開発と、現在まで蓄積されてきている地上・衛星計測に基づいた実際の大気質の経年変化に基づ き、評価手法の有効性を科学的に裏付けることを目的としている。そのため、サブテーマ4では、大気 中のホルムアルデヒド(HCHO)と二酸化窒素(NO₂)の濃度比に着目し、有効な対策の判断材料の一つ となるオゾン生成の感度レジーム(前駆体のNO_xとVOCへの依存性)の検証を衛星計測データにより行 う。長年蓄積されているHCHOとNO₂の衛星計測データに基づき、空間的・経年的な感度レジームの変化 を判定し、また、COVID-19に代表される劇的な排出量変化事例を対象として、排出量変化がオゾン濃度 に及ぼす影響を評価することを目的とする。

サブテーマ4	「衛星計測に基づいた排出対策効果の検証」
サブテーマ4実施機関	電力中央研究所
サブテーマ4目標	衛星計測によるNO ₂ とHCHO鉛直積算濃度の比から、実大気におけるオゾン 感度レジームを導出し、時空間的な変動を解明することで、オゾン濃度低 減に対するNO _x とVOCの排出削減の有効性を衛星計測から定量的に検証す る。

2. サブテーマ4研究目標

3. サブテーマ4研究開発内容

1年目(令和3年度)には、2005年から現在まで継続しているOMI衛星計測データに基づき、NO₂および HCHO鉛直積算濃度の比を解析することにより、2005年から2019年までの15年分にも及ぶオゾン感度レジ ームを東アジアスケールで導出した。ここで、HCHO鉛直積算濃度については、NO₂鉛直積算濃度よりも 不確実性が大きいことが従来からの課題となっていたが、SO₂の衛星計測に用いられてきたスムージン グ法を応用することで、従来よりもノイズを小さくする工夫を行なった。

2年目(令和4年度)には、前年度に取り組んだ衛星計測データの解析に対して、サブテーマ3の MAX-DOAS地上観測のデータ、および、サブテーマ1で開発された長期排出インベントリに基づくサブテ ーマ2のモデルシミュレーションによる鉛直濃度分布の情報とを統合的に解析することで、地表面近傍 と対流圏鉛直積算濃度の対応関係を明らかにすることに着手した。

3年目(令和5年度)には、サブテーマ1で作成されたCOVID-19の影響を取り入れた排出インベント リをもとに、COVID-19という劇的な排出量変化事例を対象に、シミュレーションも用いてオゾン濃度の 変化を評価することで、排出対策効果を検証した。

4. サブテーマ4結果及び考察

2005年から継続して利用できるOMI衛星計測データのNO₂およびHCHO鉛直積算濃度のグリッド化データ (レベル3)を入手し、NO₂およびHCHO鉛直積算濃度の比(以下、FNR)に基づいて、2005年から2019年 までの15年間のオゾン感度レジームを導出することをまず実施した。0MIは2004年7月15日に打ち上げら れた極軌道衛星Auraに搭載された紫外・可視域のイメージングスペクトロメータである。OMIのレベル3 のプロダクトはNASAにより提供されているものを利用した。NO2鉛直積算濃度については、0.25°にグ リッド化されており、雲による計測誤差を低減するため、雲割合が30%以下の晴天条件のものを解析に は用いた。一方で、HCHO鉛直積算濃度については、0.1°にグリッド化された高解像度版を利用した が、NO₂鉛直積算濃度に比較すると、HCHO鉛直積算濃度にはノイズと考えられるような計測値も含まれ ていた。そのため、文献調査(Zhu et al., 2017)を元にまず1.0×10¹⁷ molecules/cm²以上の極めて大 きな値を除去することとした。その後に、SO2鉛直積算濃度の解析に用いられてきた空間スムージング の手法(Koukouli et al., 2016)をHCHO鉛直積算濃度にも応用した。これをNO₂鉛直積算濃度の0.25° の解像度に合わせることで、先行研究よりもノイズを軽減したHCHO鉛直積算濃度データを作成した。以 上のもと、HCHO鉛直積算濃度をNO2鉛直積算濃度で除することでFNRを導出した。このとき、NO2鉛直積 算濃度が極端に小さい場合にはFNRが極端に大きな値をとるため、NO2鉛直積算濃度が1.0×10¹⁵ molecules/cm²以上のグリッドに限定してFNRを導出した。FNRを用いたオゾン感度レジームの判定につ いては、先行研究 (Duncan et al., 2010) に準じて、FNR < 1.0をVOC-sensitive、1.0 < FNR < 2.0を



 図4-1 15年(2005-2019年)平均したOMI衛星計測データに基づくHCHO鉛直積算濃度、 NO2鉛直積算濃度、およびFNRの空間分布 (成果番号18(査読付き論文)より抜粋した上で日本語表記)
遷移領域、2.0 < FNRをNO_x-sensitiveと設定し判別に用いた。

図4-1には2005-2019年までの15年分のデータを平均したHCHO鉛直積算濃度、NO2鉛直積算濃度、FNRを まず示す。HCHO鉛直積算濃度は、中国中央東部から南部、また東南アジアにかけて濃度が高い。NO2鉛 直積算濃度は中国中央東部で特に濃度が高く、韓国のソウルや日本の首都圏でも濃度が高い。結果とし て、FNRは、NO2濃度が高い都心部で値が小さくVOC-sensitiveと判定され、郊外では遷移領域、そして リモート域ではNO_x-sensitiveと判定された。この結果は、これまでに確立されていたオゾン感度レジ ームの概念と一致するものであり、衛星計測データからもレジーム判定が可能であることが確認でき た。

このオゾン感度レジームの長期的な推移を評価するため、解析対象期間を2005-2009年、2010-2014 年、2015-2019年の5年毎に区切り、それぞれの5年間の年平均値に対して線形回帰分析によりトレンド を解析したものを図4-2に示す。まずHCHO鉛直積算濃度は、2010-2014年のトレンドはやや不明瞭であっ たが、他の期間は東アジアほぼ全域で概ね増加傾向を示していた。NO2鉛直積算濃度は、2005-2009年は 中国では増加、韓国と日本では減少傾向を示し、2010年以降は東アジアスケールで減少傾向を示した。 このことから、FNRとして見ると、2005-2009年は中国ではHCHO鉛直積算濃度の増加傾向が大きい場合に はFNRの増加傾向、韓国や日本ではHCHO鉛直積算濃度が増加しNO2鉛直積算濃度が減少するのでFNRとし ては増加傾向であった。すなわち、FNRの増加により、NO_x-sensitiveの方向にオゾン感度レジームが推



図4-2 2005-2009年、2010-2014年、2015-2019年の5年毎の0MI衛星計測データに基づく HCHO鉛直積算濃度、NO2鉛直積算濃度、およびFNRのトレンド解析の空間分布 (成果番号18(査読付き論文)より抜粋した上で日本語表記) 移したことがわかる。2010-2014年はHCHO鉛直積算濃度の傾向は不明瞭であったがNO2鉛直積算濃度が減 少したためにFNRとしては概ね増加傾向、2015-2019年は東アジアスケールでHCHO鉛直積算濃度が増加、 NO2鉛直積算濃度が減少したため、FNRは顕著な増加傾向を示した。したがって、2005-2019年の15年間 では、東アジアスケールで緩やかにNO_x-sensitiveへと推移したことが衛星計測データの解析から示さ れた。

さらには、日本の大都市圏(東京・大阪・名古屋)に注目し、衛星計測データの該当するグリッド において寒候期(10-3月)と暖候期(4-9月)別にオゾン感度レジームの出現頻度を解析した結果を図 4-3に示す。寒候期はVOC-sensitiveよりであることが従来から指摘されており、衛星計測データからも 2005-2010年あたりまではほぼVOC-sensitiveである(90%以上)ことが示されていた。しかし、東京・ 大阪・名古屋のどの大都市圏においても、2010年以降では遷移領域やNO_x-sensitiveの頻度がやや増え た(10-20%)ことがわかった。暖候期には寒候期に比較すると大都市圏でもNO_x-sensitiveとなる場合 も見られていた(20-30%程度)が、15年間の中で緩やかに遷移領域やNO_x-sensitiveの頻度が増えた (50%前後)ことが明らかとなった。以上のように、わが国の大都市圏においても、徐々にNO_x-

sensitiveへと推移したことが衛星計測データの解析結果から解明された。



図4-3 (左)寒候期と(右)暖候期における東京、大阪、名古屋でのOMI衛星計測データに基づく オゾン感度レジームの出現頻度の経年変化 (成果番号18(査読付き論文)より抜粋した上で日本語表記)

続いてこのようなオゾン感度レジームの長期的な変化と排出量変化の対応関係を検証する。図4-4に は人為起源排出量の経年変化を示す。ここで人為起源排出量については、2005-2015年まではアジア域 人為起源排出インベントリREAS、2015-2019年は中国清華大学が開発したMEICインベントリを利用し た。人為起源NO_xとNO₂鉛直積算濃度は対応関係が明瞭であり、韓国や日本では経年的な人為起源NO_x排出 量の減少に応じてNO₂鉛直積算濃度も減少傾向を示していた。中国についても、2011年までの人為起源 NO_x排出量の増加傾向に対応するようにNO₂鉛直積算濃度は2005-2009年においては増加していたが、そ



図4-4 2005-2019年までの人為起源NMVOCおよびNOx排出量(中国は左軸、韓国・日本は右軸) (成果番号18(査読付き論文)より抜粋した上で日本語表記)



図4-5 2005-2019年までの植物起源NMVOC(中国は左軸、韓国・日本は右軸) およびNMVOC排出量の植物起源・人為起源比 (成果番号18(査読付き論文)より抜粋した上で日本語表記)

れ以降は人為起源NO_x排出量が減少に転じたことに合わせてNO₂鉛直積算濃度も減少した。一方で、人為 起源NMVOC排出量とHCHO鉛直積算濃度は対応しない部分が見られた。中国では人為起源NMVOC排出量は 2015年まで増加した後、高止まりの傾向にある。日本の人為起源NMVOC排出量も経年的には減少傾向に ある。このような排出量の傾向にも関わらず、2015-2019年には東アジア全域でHCH0鉛直積算濃度の顕 著な増加傾向が見られた(図4-2)。この点を精査するために、植物由来NMVOC排出量を次に解析した。 植物由来排出量については、全球モデルCAMSの付随データとして公開されているインベントリを利用し た。図4-5には植物起源NMVOC排出量の経年変化と、人為起源NMVOC排出量との比を示す。図4-5の経年変 化からわかるように植物起源NMVOC排出量はほぼ横ばいで推移しており、総量としての経年変化の傾向 は見られなかった。しかし、着目すべき点として、人為起源排出量との比率の変化がある。日本を見て みると、人為起源NMVOC排出量は経年的に減少しており、そのために人為起源NMVOC排出量との比を見る と、2005年にはほぼ1(植物起源と人為起源が同程度)であったものが、2010年以降は1.5前後の値とな っており、相対的に植物起源NMV0C排出量の重要性が増していることがわかる。このような点から、 HCHO鉛直積算濃度を考える上で、植物起源NMVOC排出量も一つの重要な要素であることがわかる。図4-6 には図4-2に対応するように、人為起源NMV0CおよびNO,排出量と植物起源NMV0C排出量を5年毎のトレン ドとして解析した結果を示す。人為起源NMVOCとNO,排出量については、図4-4に見られたような中国全 体としてのトレンドが空間分布の変化からもわかるが、人為起源NMVOC排出量については、2015-2019年 には中国北部では減少傾向で南部では増加傾向という違いがあることがわかる。図4-2に見られたHCHO 鉛直積算濃度の増加傾向が特に中国南部で大きい点については、このような地域別の排出量変化が影響 している可能性もある。植物起源NMVOC排出量については、図4-5からは経年的な変化は明らかではなか ったが、図4-5からは中国中央東部や日本においては2015-2019年に増加傾向であったことがわかる。こ こに示す植物起源NMVOC排出量の傾向が、図4-2のHCHO鉛直積算濃度のこの期間の増加に影響していたこ とが示唆される。以上のように、衛星計測データの解析からは東アジアスケールでオゾン感度レジーム がNO_x-sensitiveに推移していたが、その要因としては人為起源NO_x排出量が減少したこと、人為起源



図4-6 2005-2009年、2010-2014年、2015-2019年の5年毎の人為起源NMVOC およびNOx排出量と植物起源NMVOC排出量のトレンド解析の空間分布 (成果番号18(査読付き論文)より抜粋した上で日本語表記)

NMVOC排出量が減少したために年々変動が大きいものの植物起源NMVOC排出量の重要性が相対的に増して おり、植物起源NMVOC排出量も影響したことが解明された。

以上に示したような十年以上の長期的なオゾン感度レジームの推移の解析に対して、サブテーマ4 では衛星計測データを利用したが、本研究課題では、サブテーマ1で長期排出インベントリの開発を、 サブテーマ2ではそのインベントリに基づいた大気質シミュレーションを実施している。図4-7には、 図4-2に示したHCHOおよびNO₂鉛直積算濃度とその比であるFNRについて、シミュレーションの結果に対 するトレンド解析の結果を示す。5年毎に見たトレンドは、衛星計測とシミュレーションで概ね一致し た傾向を示しており、特にNO_x排出量が減少傾向に転じる2010年以降にFNRの値が増加傾向にあること、 すなわち東アジアスケールで徐々にNO_x-sensitiveへと推移したことがシミュレーションでも同様に見 られた。このことから、サブテーマ1で構築された長期排出インベントリは、衛星計測から見られるオ ゾン前駆体の排出量推移を捉えられており、かつ、サブテーマ2で実施した数値シミュレーションも、 衛星計測から得られたトレンドを再現できることがわかった。



図4-7 2005-2009年、2010-2014年、2015-2019年の5年毎のシミュレーションに基づく HCH0鉛直積算濃度、N02鉛直積算濃度、およびFNRのトレンド解析の空間分布 (成果番号100(口頭発表)より抜粋)

以上のように、地表面濃度と鉛直積算濃度の再現性が検証できたシミュレーションの結果も援用することにより、以下に示すように衛星計測データから地表面濃度を推定することを検討した。ここで、シミュレーションに基づく地表面濃度(C) と鉛直積算濃度(Ω)の比をSurface to Column Ratio (SCR)と定義した。

$$\Omega_{\rm HCHO}({\rm satellite}) \times \frac{C_{\rm HCHO}({\rm model})}{\Omega_{\rm HCHO}({\rm model})} \approx C_{\rm HCHO}({\rm satellite}), \text{ where } SCR_{\rm HCHO} \equiv \frac{C_{\rm HCHO}({\rm model})}{\Omega_{\rm HCHO}({\rm model})}$$
$$\Omega_{\rm NO_2}({\rm satellite}) \times \frac{C_{\rm NO_2}({\rm model})}{\Omega_{\rm NO_2}({\rm model})} \approx C_{\rm NO_2}({\rm satellite}), \text{ where } SCR_{\rm NO_2} \equiv \frac{C_{\rm NO_2}({\rm model})}{\Omega_{\rm NO_2}({\rm model})}$$

以下では、このSCRの時空間変動を検討した結果について述べる。まず図4-8にはシミュレーションの15年平均値に基づいた地表面濃度(*C*)、鉛直積算濃度(Ω)、それらの比(SCR)をHCH0とN0₂について示す。地表面濃度および鉛直積算濃度は排出量に対応し、大陸上や都市圏で高濃度となるが、地表面 濃度と鉛直積算濃度とで対応がついていることから、その比であるSCRとしてみてみると、HCH0とN0₂ともに空間的にほぼ一様である特徴が得られた。しかしながら、このSCRの解析はシミュレーションの15 年平均値に基づくものであるため、より詳細な時間変化も検討をする必要がある。そのため、ここでは 一例として、東京に該当するグリッドにおいて、2005、2010、2015年の地表面濃度と鉛直積算濃度、そ れらから導出したSCRを月毎に解析した結果を図4-9にHCHOについて、図4-10にNO₂について示す。HCHO は地表面濃度も鉛直積算濃度も夏に極大となる季節変化を示したことから、その比であるSCRについて は、年間を通じてほぼ0.015程度と変動が小さく、さらには2005、2010、2015年の年々変動について、 地表面濃度も鉛直積算濃度も同様の減少傾向であったため、SCRの値は0.015程度と年々変動も小さかっ た。NO₂についても、冬に極大で夏に極小となる季節変化であったが、地表面濃度も鉛直積算濃度もそ の季節変化が同様であることから、SCRの値は0.05前後と月変動がなく、加えて年々変動も見られなか った。以上の結果は、サブテーマ4で取り組んだ衛星計測データの解析と、本研究課題のサブテーマで 実施した排出インベントリおよびシミュレーションを統合することにより、準リアルタイムで得られる 衛星計測データから地表面濃度を汎用的に推定できる可能性を示している。鉛直積算濃度として得られ ていた衛星計測データの新しい利用可能性を展開できる結果である。



図4-8 シミュレーションに基づいた2005-2019年の15年平均値による(上)HCHOと(ト)NO₂の (左)地表面濃度、(中央)鉛直積算濃度、(右)それらの比であるSNRの空間分布 (成果番号100(口頭発表)より抜粋)



図4-9 シミュレーションに基づいた東京都市圏における2005年、2010年、2015年のHCHO地表面濃度と 鉛直積算濃度、およびその比であるSCRの月別変動(成果番号100(ロ頭発表)より抜粋)



図4-10 シミュレーションに基づいた東京都市圏における2005年、2010年、2015年のNO₂地表面濃度と 鉛直積算濃度、およびその比であるSCRの月別変動(成果番号100(ロ頭発表)より抜粋)

以上のように、サブテーマ4では衛星計測データに基づきオゾン前駆体と感度レジームの長期変動 を明らかとし、サブテーマ間連携により排出対策効果との対応を検証してきた。これらに加えて、現実 に起こった劇的な排出量変化事例として、COVID-19を対象(図1-7参照)にオゾン濃度の変化を評価し た。この事例解析においては、サブテーマ2で実施するシミュレーション結果をサブテーマ間で共有す るとともに、排出量に対する感度実験も追加で実施した。オゾン濃度については、日中平均値の月平均 値と日中最大値の月最大値という異なる時間スケールを対象とした。まず図4-11に示すようにシミュレ ーションは、日中平均値の月平均値や日中最大値の月最大値のオゾン濃度を、米国での再現性のレビュ ー (Emery et al., 2017)に報告されている妥当な範囲内で再現できたことを検証した。また、4月に は2019年と2020年とで日中平均値の月平均値や日中最大値の月最大値のオゾン濃度に大きな差は見られ なかったが、5月には2019年と比して2020年にオゾン濃度が大きく減少しており、COVID-19の大気環境 への影響を示唆したものと考えられる。



図4-11 全国の常時監視測定局を用いたシミュレーションの再現性の検証結果 (左列)4月および(右列)5月における(上段)日中平均値の月平均値と (下段)日中最大値の月最大値について、(暖色)2019年と(寒色)2020年について示す

しかしながら、サブテーマ2の結果として得られたように、気象場の年々変動もオゾン濃度に大き な影響を及ぼす要因である。そのため、COVID-19による排出量変化の影響評価に先立ち、まずは同一排 出量条件(COVID-19の影響がない2019年の排出量を2020年の計算でも使用)とした上で、2019-2020年 の4-5月の気象場の変化によるオゾン濃度の変化を評価した。その結果について、領域2のシミュレーシ ョンに基づく評価を4月について図4-12に、5月について図4-13に示す。まず4月については、日中平均 値の月平均値と日中最大値の月最大値ともに、前年と比して増減があった。しかし一方で5月について



図4-12 シミュレーションによる2019年4月と2020年4月(ただし、排出量は2019年4月と同様)の (上段)日中平均値の月平均値と(下段)日中最大値の月最大値の空間分布と、 その差分から得られる気象場の変化によるオゾン濃度の変化量



図4-13 シミュレーションによる2019年5月と2020年5月(ただし、排出量は2019年5月と同様)の (上段)日中平均値の月平均値と(下段)日中最大値の月最大値の空間分布と、 その差分から得られる気象場の変化によるオゾン濃度の変化量

は、日本のほぼ全域で減少したことが示された。2019年と2020年の気象場の変化について、気温、日射 量、湿度、降水量、風向・風速、境界層高さ等を対象に解析したところ、図4-14に示すように、日射量 の変化が大きく影響した可能性が示唆された。4月に見られた西日本でのオゾン濃度増加と東北・北海 道でのオゾン濃度減少、また5月の日本全域でのオゾン濃度減少が、日射量の増加と減少にそれぞれお よそ対応していた。



図4-14 シミュレーションによる2019年と2020年の4月と5月の日射量とその変化

以上の結果から、図4-11に見られた5月の大幅な濃度減少の原因として、気象場の変化の影響が大き いことがわかった。最後に、COVID-19に伴う排出量変化がわが国のオゾン濃度に及ぼした影響を評価し た結果を図4-15に示す。ここでは、2020年の気象場を用いた上で、COVID-19の影響がない2019年の排出 量を利用した計算と、COVID-19の影響を考慮した排出量(図1-7参照)の差分濃度によりCOVID-19に伴 う排出量変化の影響を評価した。

まず日中平均値の月平均値については、一般にVOC-sensitiveである都市域においては、NO_x排出量減 少によってNOタイトレーションの効果が弱まってしまうため、オゾン濃度は増加してしまう結果となっ た。その一方で、郊外や遠隔域の広範囲にわたっては、前駆体の排出量減少のためにオゾン濃度は減少 した。また、日中最大値の月最大値を見ると、排出量減少が日本のほぼ全域でオゾン濃度の減少に寄与 したことが明らかとなった。COVID-19に関わる大気環境変化のレビュー論文(Gkatzelis et al., 2021)では、光化学オキシダントについては都市域で増加したという側面が報告されているものがほと んどであり、ここに示したように都市域と郊外・遠隔域とで異なりうる排出対策効果を評価する必要が あることは、排出対策効果に関する新しい知見を提示するものである。Chatani et al. (2023)は長期 にわたる排出対策効果を検証したが、COVID-19を対象とした劇的な排出量変化事例においても、排出量

削減がオゾン濃度に及ぼす影響については、平均値や最大値といった異なる時間スケールで多角的に評価をする必要があることが示された。

2020年4月 2020年5月 +0.75 日中平均値の月平均値 +0.4+0.3 D3濃度の変化量 +0.2+0.1 +0.05+0.01 0 -0.01 -0.05 -0.0 -0.1 -0.2 [ppbv] -0.3 -0.4 -0.5 -0.75 日中最大値の月最大値)3濃度の変化量 +0.1+0.01 0 -0.0 -0.1 .01 -0.2 -0.3 [ppbv] -1.0 -1.5 -2.0 -3.0

図4-15 シミュレーションに基づいた2020年4-5月のCOVID-19による排出量変化がもたらした オゾン濃度の変化量の評価結果

【参考文献】

- Chatani, S., Kitayama, K., Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H. (2023). Effectiveness of Emission Controls Implemented Since 2000 on Ambient Ozone Concentrations in Multiple Timescales in Japan: An Emission Inventory Development and Simulation Study. Science of the Total Environment, 894, 165058. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058
- Duncan, B. N., Yoshida, Y., Olson, J.R. et al. 2010. Application of OMI observations to a space-based indicator of NOx and VOC controls on surface ozone formation. Atmospheric Environment, 44, 2213-2223. http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.03.010
- Emery, C., Liu, Z., Russell, A.G. et al. 2017. Recommendations on statistics and benchmarks to assess photochemical model performance. Journal of the air & waste management association, 67:5, 582-598. http://dx.doi.org/10.1080/10962247.2016.1265027
- Gkatzelis, G.I., Gilman, J.B., Brown, S.S. et al. 2021. The global impacts of COVID-19 lockdowns on urban air pollution: A critical review and recommendations. Elementa Science of the Anthropocene, 9:1. https://doi.org/10.1525/elementa.2021.00176
- Koukouli, M.E., Balis, D.S., van der A, R.J. et al. 2016. Anthropogenic sulphur dioxide load over China as observed from different satellite sensors. Atmospheric Environment, 145, 45-59. http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.09.007
- Zhu, L., Mickley, L.J., Jacon, D.J. et al. 2023. Long-term (2005-2014) trends in formaldehyde (HCHO) columns across North America as seen by the OMI satellite instrument: Evidence of changing emissions of volatile organic compounds. Geophysical Research Letters, 44, 7079-7086. http://dx.doi.org/10.1002/2017GL073859

5. サブテーマ4研究目標の達成状況

サブテーマ4では衛星計測に基づいて排出対策効果を検証することを研究目標としていた。衛星計 測データに基づいて2005-2019年の15年間で東アジアスケールでNO_x-sensitiveに緩やかに推移したとい うオゾン感度レジームの長期的な変遷を解明し、人為起源排出量の対策効果や、それゆえの植物起源排 出量の重要性の顕在化を示した。これらに加え、衛星計測から得られる鉛直積算濃度に対して、サブテ ーマ間連携によって鉛直積算濃度と地表面濃度との対応関係を導出し、それらを対応づける比が時空間 的にほぼ一様であることを見出した。また、COVID-19の劇的な大気環境変化事例を対象に解析すること で、排出対策効果を評価する上では異なる時間スケールにおけるオゾン濃度を多角的に見る必要がある ことも示した。以上の研究成果が得られたことから、サブテーマ4は目標を上回る成果をあげたと判断 した。

Ⅲ.研究成果の発表状況の詳細

(1) 成果の件数

成果の種別	件数
査読付き論文:	19
査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野):	0
その他誌上発表(査読なし):	4
口頭発表(国際学会等・査読付き):	17
ロ頭発表(学会等・査読なし):	61
知的財産権:	0
「国民との科学・技術対話」の実施:	8
マスコミ等への公表・報道等:	4
研究成果による受賞:	3
その他の成果発表:	1

(2) 誌上発表

<査読付き論文>

成果 番号	【サブテーマ1】の査読付き論文
1	茶谷聡, 國分優孝, 高橋和清, 星純也(2022). 東京都内におけるVOC個別成分濃度観測に基 づく排出インベントリと大気質シミュレーションの検証. 大気環境学会誌, 57(2), 35-52. https://doi.org/10.11298/taiki.57.35
2	北山響, 茶谷聡 (2023). 自動車排出ガス規制による大気汚染物質の排出量削減効果の評価. 土木学会論文集, 79 (5), 22-00216. https://doi.org/10.2208/jscejj.22-00216
3	Chatani, S., Kitayama, K., Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H. (2023). Effectiveness of Emission Controls Implemented Since 2000 on Ambient Ozone Concentrations in Multiple Timescales in Japan: An Emission Inventory Development and Simulation Study. Science of the Total Environment, 894, 165058. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058

	Crippa, M., Guizzardi, D., Butler, T., Keating, T., Wu, R., Kaminski, J., Kuenen,
4	J., Kurokawa, J., Chatani, S., Morikawa, T., Pouliot, G., Racine, J., Moran, M.D.,
	Klimont, Z., Manseau, P.M., Mashayekhi, R., Henderson, B.H., Smith, S.J., Suchyta,
	H., Muntean, M., Solazzo, E., Banja, M., Schaaf, E., Pagani, F., Woo, J.H., Kim,
	J., Monforti-Ferrario, F., Pisoni, E., Zhang, J., Niemi, D., Sassi, M., Ansari, T.,
	Foley, K. (2023). The HTAP_v3 Emission Mosaic: Merging Regional and Global Monthly
	Emissions (2000-2018) to Support Air Quality Modelling and Policies. Earth System
	Science Data, 15 (6), 2667-2694. https://doi.org/10.5194/essd-15-2667-2023
	北山響,茶谷聡(2023).排出量の時間変動・月変動・COVID-19パンデミック時の変動を評価
5	するための活動量の周期変動解析. 大気環境学会誌, 58 (6), 87-98.
	https://doi.org/10.11298/taiki.58.87
6	Li, M., Kurokawa, J., Zhang, Q., Woo, JH., Morikawa, T., Chatani, S., Lu, Z.,
	Song, Y., Geng, G., Hu, H., Kim, J., Cooper, O.R., McDonald, B.C. (2024). MIXv2: A
	Long-Term Mosaic Emission Inventory for Asia (2010–2017). Atmospheric Chemistry and
	Physics, 24, 3925–3952. https://doi.org/10.5194/acp-24-3925-2024, 2024.

成果 番号	【サブテーマ2】の査読付き論文
7	Tokuda N., Ishikawa R., Yoda Y., Araki S., Shimadera H., Shima M.: Environmental Research, Vol. 236, 116733 (2023) Association of air pollution exposure during pregnancy and early childhood with children's cognitive performance and behavior at age six

成果 番号	【サブテーマ3】の査読付き論文
8	Irie, H., D. Yonekawa, A. Damiani, H. M. S. Hoque, K. Sudo, and S. Itahashi, Continuous multi-component MAX-DOAS observations for the planetary boundary layer ozone variation analysis at Chiba and Tsukuba, Japan from 2013 to 2019, Progress in Earth and Planetary Science, 8, 31, https://doi.org/10.1186/s40645-021-00424-9, 2021.
9	Damiani, A., H. Irie, K. Yamaguchi, H. M. S. Hoque, T. Nakayama, Y. Matsumi, Y. Kondo, and A. Da Silva, Variabilities in $PM_{2.5}$ and black carbon surface concentrations reproduced by aerosol optical properties estimated by sky radiometer and MAX-DOAS instruments, Remote Sensing, 13(16), 3163, https://doi.org/10.3390/rs13163163, 2021.
10	De Smedt, I., G. Pinardi, C. Vigouroux, S. Compernolle, A. Bais, N. Benavent, F. Boersma, KL. Chan, S. Donner, KU. Eichmann, P. Hedelt, F. Hendrick, H. Irie, V. Kumar, JC. Lambert, B. Langerock, C. Lerot, C. Liu, D. Loyola, A. Piters, A. Richter, C. Rivera Cárdenas, F. Romahn, R. G. Ryan, V. Sinha, N. Theys, J. Vlietinck, T. Wagner, T. Wang, H. Yu, and M. Van Roozendael, Comparative assessment of TROPOMI and OMI formaldehyde observations and validation against MAX-DOAS network column measurements, Atmos. Chem. Phys., 21, 12561-12593, https://doi.org/10.5194/acp-21-12561-2021, 2021.
11	Momoi, M., H. Irie, T. Nakajima, and M. Sekiguchi, Efficient calculation of radiative intensity including the polarization effect in moderately thick atmospheres using a truncation approximation, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 277, January 2022, 107976, https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2021.107976, 2021.
12	Momoi, M., H. Irie, M. Sekiguchi, T. Nakajima, H. Takenaka, K. Miura, and K. Aoki, Rapid, accurate computation of narrow-band sky radiance in the 940 nm gas absorption region using the correlated k-distribution method for sun-photometer observations, Progress in Earth and Planetary Science, 9, 10, https://doi.org/10.1186/s40645-022-00467-6, 2022.

13	Hoque, H. M. S., K. Sudo, H. Irie, A. Damiani, M. Naja, and A. M. Fatmi, Multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) observations of formaldehyde and nitrogen dioxide at three sites in Asia and comparison with the global chemistry transport model CHASER, Atmos. Chem. Phys., 22, 12559–12589, https://doi.org/10.5194/acp-22-12559-2022, 2022.
14	Damiani, A., H. Irie, D. A. Belikov, S. Kaizuka, H. M. S. Hoque, and R. R. Cordero, Peculiar COVID-19 effects in the Greater Tokyo Area revealed by spatiotemporal variabilities of tropospheric gases and light-absorbing aerosols, Atmos. Chem. Phys., 22, 12705–12726, https://doi.org/10.5194/acp-22-12705-2022, 2022.
15	Chan, K. L., P. Valks, KP. Heue, R. Lutz, P. Hedelt, D. Loyola, G. Pinardi, M. Van Roozendael, F. Hendrick, T. Wagner, V. Kumar, A. Bais, A. Piters, H. Irie, H. Takashima, Y. Kanaya, Y. Choi, K. Park, J. Chong, A. Cede, U. Frieß, A. Richter, J. Ma, N. Benavent, R. Holla, O. Postylyakov, C. R. Cárdenas, and M. Wenig, Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) daily and monthly level-3 products of atmospheric trace gas columns, Earth System Science Data, 15 (4), 1831-1870, https://doi.org/10.5194/essd-15-1831-2023, 2023.
16	Damiani A., H. Irie, D. Belikov, R. Cordero, S. Feron, and N. N. Ishizaki, Air quality and urban climate improvements in the world's most populated region during the COVID-19 pandemic, Environmental Research Letters, 19, 3, https://doi.org/10.1088/1748-9326/ad25a2, 2024.

成果 番号	【サブテーマ4】の査読付き論文
17	Itahashi, S., Irie, H. (2022). Surface and Aloft NO ₂ Pollution over the Greater Tokyo Area Observed by Ground-Based and MAX-DOAS Measurements Bridged by Kilometer- Scale Regional Air Quality Modeling. Progress in Earth and Planetary Science (PEPS), 9, 15. https://doi.org/10.1186/s40645-022-00474-7
18	Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H., Chatani, S. (2022). Fifteen-Year Trends (2005–2019) in the Satellite-Derived Ozone-Sensitive Regime in East Asia: A Gradual Shift from VOC-Sensitive to NOx-Sensitive. Remote Sensing, 14, 4512. https://doi.org/10.3390/rs14184512
19	Itahashi, S. (2023). Severe Level of Photochemical Oxidants (Ox) over the Western Coast of Japan During Autumn after Typhoon Passing. Scientific Reports, 13, 16369. https://doi.org/10.1038/s41598-023-43485-0

<査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野)>

成果 番号	【サブテーマ1】の査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野)
	特に記載すべき事項はない。

成果 番号	【サブテーマ2】の査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野)
	特に記載すべき事項はない。

成果 番号	【サブテーマ3】の査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野)
	特に記載すべき事項はない。

成果 番号	【サブテーマ4】の査読付き論文に準ずる成果発表(人文・社会科学分野)
	特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

成果 番号	【サブテーマ1】のその他誌上発表(査読なし)
20	茶谷聡(2023). 大気シミュレーションの技術的概要と国立環境研究所での取り組み. 全国環 境研会誌, 48(4), 137-147.

成果 番号	【サブテーマ2】のその他誌上発表(査読なし)
	特に記載すべき事項はない。

成果 番号	【サブテーマ3】のその他誌上発表(査読なし)
21	Irie, H., International air quality and sky research remote sensing network (A-SKY): Its development and satellite atmosphere product validation, Journal of the Remote Sensing Society of Japan, 41, 5, 575-581, https://doi.org/10.11440/rssj.41.575, 2021.

成果 番号	【サブテーマ4】のその他誌上発表(査読なし)
22	板橋秀一 (2022). COVID-19の感染拡大・対策に伴う大気質変化. 大気環境学会誌 (資料). 57(1), A56-A61.
23	板橋秀一,大原利眞,茶谷聡,櫻井達也,伊藤美羽,上田佳代,大島長,黒川純一,佐藤啓市,嶋寺光,菅田誠治,速水洋,森野悠,山地一代,山村由貴,山本重一(2024). International Conference on CMAS-Asia-Pacificの開催概要と運営所感.大気化学研究. 50,050N02.

(3) 口頭発表

<口頭発表(国際学会等・査読付き)>

成果 番号	【サブテーマ1】の口頭発表(国際学会等・査読付き)
24	Chatani, S., Kitayama, K., Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H. (2023). Development of Long-Term Emission Inventory Reflecting Impacts of Emission Controls in Japan. 2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacific.
25	Morino, Y., Sato, K., Sakamoto, Y., Li, J., Chatani, S., Shimadera, H., Kitayama, K., Kajii, Y. (2023). Modeling Studies of the Effect of HO ₂ Uptake by Atmospheric Aerosol on Surface Ozone. CMAS Conference 2023.

成果 番号	【サブテーマ2】の口頭発表(国際学会等・査読付き)
26	Shimadera H., Araki S., Chatani S., Kitayama K., Irie H., Itahashi S.: 2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacific (2023) Fifteen-year air quality
	simulations for investigating the cause of interannual variation of ground-level O3 in Japan
27	Chantaraprachoom N., Mochizuki D., Shimadera H., Luong M.V., Matsuo T., Kondo A.: 2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacific (2023) The impact of biomass burning in Southeast Asia on Thailand PM2.5 concentration: A nation-by-nation assessment using WRE-CMAO air quality model
28	Sukprasert S., Shimadera H., Araki S., Thongthammachart T., Thanasutives P., Luong M.V., Matsuo T., Kondo A.: 14th International Conference on Future Environment and Energy (2024) Improving Machine Learning Based PM2.5 Prediction by Segregating Biomass Emission Factor from Chemical Transport Model

成果 番号	【サブテーマ3】の口頭発表(国際学会等・査読付き)
29	Lerot, C., F. Hendrick, I. De Smedt, N. Theys, J. Vlietinck, H. Yu, M. Van Roozendael, J. Stavrakou, JF. Müller, L. Alvarado, A. Richter, P. Valks, D. Loyola, H. Irie, V. Kumar, T. Wagner, and C. Retscher, TROPOMI glyoxal tropospheric column retrievals: description, inter-satellite comparison and validation, EGU General Assembly 2021, gather only, 2021.
30	Lerot, C., F. Hendrick, M. Van Roozendael, I. De Smedt, N. Theys, J. Vlietinck, H. Yu, J. Van Gent, H. Lee, L. M.A. Alvarado, A. Richter, T. Stavrakou, JF. Müller, P. Valks, D. Loyola, H. Irie, V. Kumar, T. Wagner, S. F. Schreier, V. Sinha, T. Wang, P. Wang, and C. Retscher, Harmonised Satellite Glyoxal Data Records from TROPOMI, OMI and GOME-2, ATMOS 2021, online, 2021.
31	Lerot, C., F. Hendrick, M. Van Roozendael, I. De Smedt, N. Theys, J. Vlietinck, H. Yu, J. Van Gent, H. Lee, L. M.A. Alvarado, A. Richter, T. Stavrakou, JF. Müller, P. Valks, D. Loyola, H. Irie, V. Kumar, T. Wagner, S. F. Schreier, V. Sinha, T. Wang, P. Wang, and C. Retscher, Consistent glyoxal tropospheric column data sets from satellite nadir LEO instruments and initial retrievals from GEMS, AGU Fall Meeting, New Orleans and online, 2021.
32	Irie, H., A. Damiani, T. Takemura, T. Jarupongsakul, M. Naja, and SW. Kim, Development of international air quality and sky research remote sensing (A-SKY) network, AGU Fall Meeting, New Orleans and online, 2021.
33	Pinardi, G., S. Compernolle, T. Verhoelst, M. Van Roozendael, F. Hendrick, H. Eskes, A. Cede, M. Tiefengraber, A. Richter, A. Piters, T. Wagner, S. Donner, J. Remmers, A. Bais, H. Irie, Y. Kanaya, M. Grutter, C. Rivera, and S. Niemeijer, Coherence of Sentinel-5p Tropospheric NO2 columns validation using MAXDOAS and Direct-Sun Measurements, Sentinel-5P Mission: 5 years anniversary, Taormina (Sicily, Italy), 2022.
34	Irie, H., A. Damiani, T. Ohno, S. Kaizuka, T. Takemura, P. Khatri, T. Jarupongsakul, M. Naja, and SW. Kim, PBL Atmospheric Composition Observation Capabilities by the International Air Quality and Sky Research Remote Sensing (A- SKY) Network, The 13th International GEMS workshop, Royal Hotel Seoul (Seoul, Korea), 2022
35	Rawat, P.,M. Naja, and Irie, H., Trace gases measurement from MAX-DOAS, TROPOMI, and GOME-2 over the Himalayan foothills: Satellite Assessment and Source Attribution, The 13th International GEMS workshop, Royal Hotel Seoul (Seoul, Korea), November 10, 2022

36	Irie, H., A. Damiani, T. Ohno, S. Kaizuka, T. Takemura, P. Khatri, T. Jarupongsakul, M. Naja, and SW. Kim, PBL Atmospheric Composition Observation Capabilities by the International Air Quality and Sky Research Remote Sensing (A- SKY) Network, AGU Fall Meeting, McCormick Place Convention Center (Chicago, USA), December 16, 2022
37	Irie, H., S. Itahashi, S. Chatani, and Shimadera, Recent 10-year multi-component observations by the MAX-DOAS technique for the planetary boundary layer ozone variation analysis in Japan, 2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacific, Sonic City Hall (Ohmiya), 2023.
38	Irie, H., S. Itahashi, S. Chatani, and Shimadera, Recent 10-year multi-component observations by the MAX-DOAS technique for the planetary boundary layer ozone variation analysis in Japan, The 14th International GEMS workshop, Hidden Cliff Hotel & Nature (Cheju), 2023.
39	Fujii, Y., and H. Irie, Examination of a Method to Detect Nitrogen Oxides Originating from Lightning Using the Combined Use of Ground and Satellite-based Remote Sensing, 2023 AGU Fall Meeting, Moscone center (San Francisco), 2023.
40	Irie, H., S. Itahashi, S. Chatani, and Shimadera, Recent 10-year multi-component observations by the MAX-DOAS technique for the planetary boundary layer ozone variation analysis in Japan, 2023 AGU Fall Meeting, Moscone center (San Francisco), 2023.

成果 番号	【サブテーマ4】の口頭発表(国際学会等・査読付き)
	特に記載すべき事項はない。

<口頭発表(学会等・査読なし)>

成果 番号	【サブテーマ1】の口頭発表(学会等・査読なし)
41	茶谷聡,嶋寺光,入江仁士,板橋秀一(2021).対策によるオゾン濃度低減効果の裏付けと標 準的な将来予測手法の開発.第62回大気環境学会年会.
42	茶谷聡 (2022). Regional air quality simulation framework to evaluate effectiveness of emission controls. 日本地球惑星科学連合2022年大会.
43	茶谷聡(2022).シミュレーションの排出量入力データへの変換支援.第63回大気環境学会年 会.
44	茶谷聡,北山響(2022). VOC排出量の経年変化の要因解析とモデル入力データの構築.第63 回大気環境学会年会.
45	茶谷聡, 國分優孝, 高橋和清, 星純也(2022). VOC濃度と個別成分割合の再現性によるオゾ ン濃度計算値への影響. 第63回大気環境学会年会.
46	北山響,茶谷聡(2022).自動車排出量の年減少傾向と排出規制による削減効果.第63回大気 環境学会年会.
47	茶谷聡,嶋寺光,入江仁士,板橋秀一(2023).長期排出インベントリ・大気質シミュレーション・大気観測データに基づくオゾン濃度低減対策効果の評価.第64回大気環境学会年会.
48	湯淺玲奈,山地一代,茶谷聡,嶋寺光,板橋秀一,櫻井達也,金谷有剛(2023). 微小粒子状 物質成分測定との比較によるブラックカーボン濃度のモデル再現性について.第64回大気環 境学会年会.
49	北山響, 茶谷聡(2023). 排出量の時間、月変動の抽出およびCOVID-19パンデミック時の減少 量評価のための活動量の変動解析. 第64回大気環境学会年会.
50	茶谷聡,熊谷貴美代,星純也(2023).領域化学輸送モデルによる有害大気汚染物質の濃度計算の検証.第64回大気環境学会年会.

51	茶谷聡,北山響,板橋秀一,入江仁士,嶋寺光 (2023).6種類の異なるタイムスケールによるオゾン濃度低減対策効果の評価.第64回大気環境学会年会.
52	山地一代,湯淺玲奈,茶谷聡,嶋寺光,板橋秀一,櫻井達也(2023).大気質モデル間相互比 較実験に基づく二次生成粒子濃度のモデル予測性能の評価.第64回大気環境学会年会.
53	森野悠,佐藤圭,坂本陽介, Jiaru Li,茶谷聡,梶井克純(2023).数値モデルによるHO2取 込係数の分布推計.第28回大気化学討論会.
54	森野悠,佐藤圭,坂本陽介,Jiaru Li,茶谷聡,嶋寺光,北山響,梶井克純(2024). エアロ ゾルのHO2取込によるオゾンの生成抑制. 第7回アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展 開に関する研究集会.

Г

成果 番号	【サブテーマ2】の口頭発表(学会等・査読なし)
55	吉田 悠真, 嶋寺 光, 茶谷 聡, 入江 仁士, 板橋 秀一, 松尾 智仁, 近藤 明, WRF/CMAQを用 いた2015年の関西・関東地方におけるオゾン感度レジームの解析, 2021年度大気環境学会近 畿支部研究発表会 (2021)
56	前川 哲平, 嶋寺 光, 茶谷 聡, 松尾 智仁, 近藤 明, WRF/CMAQを用いた関西・関東地方の気 象の経年変化に伴うオゾン濃度の経年変化の解析, 2021年度大気環境学会近畿支部研究発表 会 (2021)
57	前川 哲平, 嶋寺 光, 茶谷 聡, 荒木 真, 松尾 智仁, 近藤 明, 長期大気質シミュレーショ ンに基づく関西・関東地方のオゾン経年変化要因の解析:気象経年変化の影響, 第63回大気 環境学会年会(2022)
58	嶋寺 光, 茶谷 聡, 荒木 真, 入江 仁士, 板橋 秀一, 長期大気質シミュレーションに基づく 関西・関東地方のオゾン経年変化要因の解析:基準年における大気質モデル再現性, 第63回 大気環境学会年会 (2022)
59	伊藤 和一朗, 嶋寺 光, 荒木 真, 茶谷 聡, 北山 響, 松尾 智仁, 近藤 明, 大気質モデルを 用いた国内NOx・VOC排出量削減による関西・関東地方におけるオゾン濃度低減効果の評価, 2022年度大気環境学会近畿支部研究発表会(2022)
60	那布斉, 嶋寺 光, 浦西 克維, 茶谷 聡, 松尾 智仁, 近藤 明, 中国・呼和浩特市における大 気質の経年変化のシミュレーション, 2022年度大気環境学会近畿支部研究発表会(2022)
61	野田 悠介,嶋寺 光,茶谷 聡,北山 響,松尾 智仁,近藤 明,大気質モデルを用いた日本のPM2.5濃度経年変化に対する越境大気汚染の影響の解析,2022年度大気環境学会近畿支部研 究発表会(2022)
62	嶋寺 光,長期大気質シミュレーションに基づく関西・関東地方におけるオゾン濃度経年変化の解析,第6回 アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会(2023)
63	野田 悠介,嶋寺 光,茶谷 聡,北山 響,松尾 智仁,近藤 明:第64回大気環境学会年会 (2023)大気質モデルを用いた日本のPM2.5濃度経年変化に対する気象・国外排出・国内排出 影響の評価
64	藤原 梨花, 嶋寺 光, 松尾 智仁, 近藤 明: 第64回大気環境学会年会(2023)「平成26年8月 豪雨」を対象とした海面水温に対する気象モデルWRFの感度解析
65	伊藤 和一朗, 嶋寺 光, 荒木 真, 茶谷 聡, 北山 響, 松尾 智仁, 近藤 明: 第64回大気環境 学会年会(2023)長期大気質シミュレーションに基づく関西・関東地方のオゾン経年変化要 因の解析:国内NOx・VOC排出量削減による効果
66	前川 哲平, 嶋寺 光, 荒木 真, 茶谷 聡, 北山 響, 松尾 智仁, 近藤 明: 第64回大気環境学 会年会(2023)長期大気質シミュレーションに基づく関西・関東地方のオゾン経年変化要因 の解析:気象経年変化の寄与の定量評価
67	嶋寺 光, 荒木 真, 浦西 克維, 茶谷 聡, 北山 響, 入江 仁士, 板橋 秀一:第64回大気環境 学会年会(2023)長期大気質シミュレーションに基づく関西・関東地方のオゾン経年変化要 因の解析:オゾン経年変化の再現性
68	浦西 克維, 池盛 文数, 嶋寺 光, 高見 京平, 野上 敦嗣, 菅田 誠治: 第64回大気環境学会 年会(2023)大気質モデルを用いた国外バイオマス燃焼由来PM2.5の越境輸送解析-2018年4月 北海道
69	荒木 真, 嶋寺 光, 茶谷 聡, 北山 響: 第64回大気環境学会年会(2023)機械学習モデルに よるベンゾ[a]ピレンの日本全国における長期濃度分布推計

70	古川 凛, 嶋寺 光, 小森 直哉, 高見 京平, 松尾 智仁, 近藤 明: 2023年度大気環境学会近 畿支部研究発表会(2023)2019年の日本を対象とした大気質モデル解析に基づく硝酸塩濃度 再現性向上の可能性検討
71	末包 有里, 嶋寺 光, 浦西 克維, LE Huong Quang, CHANTARAPRACHOOM Nanthapong, LUONG Viet Mui, 松尾 智仁, 近藤 明: 2023年度大気環境学会近畿支部研究発表会(2023)トレーサー法CMAQ-ISAMを用いた2022年のハノイにおけるPM2.5濃度の部門別発生源寄与解析
72	中田 雄大, 嶋寺 光, 松尾 智仁, 近藤 明: 2023年度大気環境学会近畿支部研究発表会 (2023) 2000~2019年の日本における豪雨イベントを対象とした気象モデルの再現性評価
73	中島 望, 嶋寺 光, 荒木 真, 茶谷 聡, 北山 響, 松尾 智仁, 近藤 明: 2023年度大気環境学 会近畿支部研究発表会(2023)大気質モデルのプロセス解析を用いた2012~2015年夏季の関 西・関東地方におけるオゾン濃度年々変動要因の評価
74	嶋寺光:第7回 アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会(2024)長期大気質シミュレーションに基づく関西・関東地方におけるオゾン濃度経年変化の解析

成果 番号	【サブテーマ3】の口頭発表(学会等・査読なし)
75	Khatri, P., T. Hayasaka, H. Irie, and T. Takamura, Validation of SGLI/GCOM-C cloud products using surface and MODIS observation data, 日本地球惑星科学連合大会, online, 2021.
76	山本浩万,入江仁士, Validation of HIMAWARI-8 AHI Aerosol Products with SKYNET and AERONET Measurements, 日本地球惑星科学連合大会, online, 2021.
77	齊藤輝,入江仁士, A. Damiani, Validation and correction of TROPOMI tropospheric NO ₂ column density data using 4AZ-MAXDOAS at Chiba, Japan, 日本地球惑星科学連合大会, online, 2021.
78	大野健,入江仁士, A. M da Silva, 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,大気化学討論会, online, 2021.
79	西脇郁弥,入江仁士,眞子真弘,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,大気化学討論会,online,2021.
80	· 齊藤輝, 入江仁士, A. Damiani, 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, 大気化学討論会, online, 2021.
81	Rawat, P., M. Naja, H. Irie, C. Lerot, and S. Lal, Long-term variations of NO ₂ , SO ₂ , HCHO, and CHOCHO over the Himalayan foothills: Observations from MAX-DOAS, TROPOMI, and GOME-2, 6th International SKYNET Workshop 2021 Japan, online, 2021.
82	Khatri, P., T. Hayasaka, H. Irie, and T. Takamura, Important factors affecting the relationship between sky radiometer and satellite observed cloud properties, 6th International SKYNET Workshop 2021 Japan, online, 2021.
83	Kobayashi, H., H. Irie, M. Momoi, and T. Ohno, Classifying aerosol types over Japan by k-means clustering from sky-radiometer observations, 6th International SKYNET Workshop 2021 Japan, online, 2021.
84	Momoi, M., H. Irie, T. Nakajima, and M. Sekiguchi, PSTAR/Pn-IMS: Efficient calculation of sky radiative intensity including the polarization effect in moderately thick atmospheres using a truncation approximation, 6th International SKYNET Workshop 2021 Japan, online, 2021.
85	Damiani, A., H. Irie, D. Belikov, T. Takamura, S.H.M. Hoque, and R.R. Cordero, Peculiar COVID-19 effects in the Greater Tokyo Area revealed by the variability in tropospheric gases and light- absorbing aerosols, 6th International SKYNET Workshop 2021 Japan, online, 2021.
86	Irie, H., A. Damiani, T. Takemura, T. Jarupongsakul, M. Naja, and SW. Kim, Development of international air quality and sky research remote sensing (A-SKY) network, 6th International SKYNET Workshop 2021 Japan, online, 2021.
87	Irie, H., Validation study of GCOM-C atmosphere products based on SKYNET for success criterion evaluation, Joint PI Meeting of Global Environment Observation Mission, online, 2022.

88	小林拓,田中典章,塩原匡,平沢尚彦,山内恭,入江仁士,日暮明子,原圭一郎,矢吹正教, 長田和雄,林政彦,南極昭和基地においてスカイラジオメータで観測された大気エアロゾル の光学的厚さおよび光学特性の長期変動,第38回エアロゾル科学・技術研究討論会,online, 2021.
89	Damiani A., H.Irie, D. Belikov, S. Kaizuka, S.H. Hoque, and R.R. Cordero, Peculiar COVID-19 effects in the Greater Tokyo Area revealed by spatiotemporal variabilities of tropospheric gases and light-absorbing aerosols, 第24回CEReS環境リモートセンシン グシンポジウム、2022
90	Fujii, Y., and H. Irie, Examination of a method to detect nitrogen oxides originated from lightning by the combined use of ground-based and satellite remote sensing, 日本地球惑星科学連合大会、幕張メッセ(千葉県千葉市)、2022
91	藤井雪乃、入江仁士、地上と衛星リモートセンシングを複合利用した雷起源窒素酸化物の検 出方法の検討、第27回大気化学討論会、つくば国際会議場(茨城県つくば市)、2022
92	入江仁士、世界最先端のリモートセンシング技術による地球大気環境変動研究の推進、JARI 講演会、KKRホテル東京(東京都千代田区)、2023
93	Fujii, Y., and H. Irie, Examination of a method to detect nitrogen oxides originated from lightning by the combined use of ground-based and satellite remote sensing-From observations at Chiba and Fukue, 日本地球惑星科学連合大会、幕張メッセ (千葉県千葉市)、2023
94	Damiani, A., H. Irie, D. Belikov, S. H. M. Hoque, and R. R. Cordero, Changes in Air Quality in the Greater Tokyo Area during the COVID-19 pandemic, 日本地球惑星科学連 合大会、幕張メッセ(千葉県千葉市)、2023
95	藤井雪乃、入江仁士、地上と衛星リモートセンシングを複合利用した雷起源窒素酸化物の検 出方法の検討一千葉と福江の観測から、大気化学討論会、チトセピアホール(長崎県長崎 市)、2023
96	Pinardi, G., H. Irie, S. Conpernolle, T. Verhoelst, I. De Smedt, B. Langerrock, J C. Lambert, and M. Van Roozendael, Validation of satellite GOME-2(A/B/C), OMI, TROPOMI and GEMS, 第26回 環境リモートセンシングシンポジウム、千葉大学けやき会館(千 葉県千葉市)、2024

成果 番号	【サブテーマ4】の口頭発表(学会等・査読なし)
97	板橋秀一 (2022). COVID-19の感染拡大・対策に伴う大気質変化. 第62回大気環境学会年会株式会社ROKI公開シンポジウム「COVID-19と大気環境」.
98	板橋秀一,入江仁士,嶋寺光,茶谷聡(2022).長期衛星計測を活用した東アジア域のオゾン 感度レジームの推移.第63回大気環境学会年会.
99	板橋秀一,入江仁士,嶋寺光,茶谷聡(2023).衛星計測によるオゾン感度レジームの長期変 化とモデルを活用した地表面濃度推定の試み.第6回アジア域の化学輸送モデルの現状と今後 の展開に関する研究集会.
100	板橋秀一,入江仁士,嶋寺光,北山響,茶谷聡(2023).準リアルタイムでのオゾン前駆体の 地表面濃度推定に向けた衛星計測データと数値モデルの複合利用可能性の検討.第64回大気 環境学会年会.
101	板橋秀一(2023).長崎県で秋季に初めて発令された光化学オキシダント注意報の概況.第64 回大気環境学会年会.

(4) 知的財産権

成果 番号	発明者	出願者	名称	出願以降 の番号	出願 年月日
	特に記載すべき事 項はない。				

(5) 「国民との科学・技術対話」の実施

成果 番号	実施 年度	【サブテーマ1】の実施状況
102	2021	茨城県立並木中等教育学校インターンシップ(2021年8月2~3日、参加生徒3名)において、光化学オキシダント等の大気汚染問題と大気質シミュレーションの活用について 議論
103	2022	国立環境研究所公開シンポジウム2022(2022年6月23日、オンライン、参加者425名) において、「対策によるオゾン濃度低減効果の裏付けと将来予測手法の開発」のタイ トルでポスター発表

成果 番号	実施 年度	【サブテーマ2】の実施状況
		特に記載すべき事項はない。

成果 番号	実施 年度	【サブテーマ3】の実施状況
104	2021- 2023	Youtube等で配信,千葉大学環境リモートセンシング研究センターの紹介動画(入江 仁士),配信日:2022年2月3日~
105	2021- 2023	インターネット上で観測データ等の継続的な発信(https://a-sky.irie-lab.jp/, https://irie-lab.jp/), 配信日:2021年4月1日~(リアルタイムで更新して配信)
106	2022	木更津高校(SSH認定校)から教員と学生が千葉大学大気環境観測サイトを見学 (2022年8月5日)
107	2022	オキシダント二次基準器による校正に係る研修・運営会議の一環として、山形県・千 葉県・兵庫県・愛媛県・福岡県の環境研究センター/研究所の職員が国立環境研究所 向井気候変動適応センター長らと共に来校。本研究成果の発表・情報共有・施設見学 (2022年12月22日)
108	2023	木更津高校(SSH認定校)から教員と学生が千葉大学大気環境観測サイトを見学 (2023年7月26日)
109	2023	一般財団法人日本自動車研究所 講演会(2023年10月2日)

成果 番号	実施 年度	【サブテーマ4】の実施状況
		特に記載すべき事項はない。

(6) マスメディア等への公表・報道等

成果 番号		【サブテーマ1】のメディア報道等
	特に記載すべき事項はない。	

成果 番号	【サブテーマ2】のメディア報道等
110	プレスリリース (2023年9月6日、https://www.hyo-med.ac.jp/corporation/publicity/news- releases/2087/、「妊娠中および出生後の大気汚染ばく露と6歳時点の子どもの認知能力およ び行動との関連」)

成果 番号	【サブテーマ3】のメディア報道等
111	成果の記者発表(令和3年5月13日、千葉大学、「世界初の技術で大気境界層のオゾンとその 前駆気体を同時にリモートセンシング 国内の大気汚染対策に新たな観測事実」)
112	成果の記者発表(令和4年3月24日、千葉大学、「大気汚染対策と温暖化対策のコベネフィットに向けた窒素酸化物(NO _x)濃度分布の新知見 一大気リモートセンシング・地上観測網・ 大気環境モデリングの融合研究により実現一」)

成果 番号	【サブテーマ4】のメディア報道等
113	電気新聞(2022年3月25日, 全国版, 1頁,「NO2濃度 上空は低く-大気汚染対策で新知見-」)

(7) 研究成果による受賞

成果 番号	【サブテーマ1】の研究成果による受賞
114	2023年大気環境学会論文賞(成果番号1)

成果 番号	【サブテーマ2】の研究成果による受賞	
115	2023年度大気環境学会近畿支部研究発表会,ベストプレゼン賞(中田ら(2023)2000~2019 年の日本における豪雨イベントを対象とした気象モデルの再現性評価)	
116	Best Oral Presentation Award, Session 1: Air Pollution Monitoring and Control, 14th International Conference on Future Environment and Energy (Sukprasert S. et al. (2024) Improving Machine Learning Based PM2.5 Prediction by Segregating Biomass Emission Factor from Chemical Transport Model)	

成果 番号	【サブテーマ3】の研究成果による受賞	
	特に記載すべき事項はない。	

成果 番号	【サブテーマ4】の研究成果による受賞	
	特に記載すべき事項はない。	

(8) その他の成果発表

成果 番号	【サブテーマ1】のその他の成果発表	
117	2023 International Conference on CMAS-Asia-Pacific(2023年7月17~21日、参加者121名) を主催	

成果 番号	【サブテーマ2】のその他の成果発表
	特に記載すべき事項はない。

成果	
番号	

【サブテーマ3】のその他の成果発表

特に記載すべき事項はない。

成果 番号	【サブテーマ4】のその他の成果発表
	特に記載すべき事項はない。

Abstract

[Research Title]

Development and Application of a Standard Method to Predict Ozone Reduction Caused by Strategies

Project Period (FY) :	2021-2023
Principal Investigator :	Chatani Satoru
(PI ORCID) :	0000-0002-6272-574X
Principal Institution :	National Institute for Environmental Studies Tsukuba, Ibaraki, JAPAN Tel: +81-29-850-2740 E-mail: chatani.satoru@nies.go.jp
Cooperated by :	Osaka University, Chiba University, Central Research Institute of Electric Power Industry
Keywords :	Ozone, Photochemical oxidant, Air quality simulation, Emission inventory, Strategy evaluation

[Abstract]

The environmental quality standard for photochemical oxidants has not been attained at almost all monitoring stations. Ozone, which is a major component of photochemical oxidants, is formed from precursors including nitrogen oxides (NO_x) and volatile organic compounds (VOCs) via photochemical reactions in the atmosphere. Air quality simulations are useful to represent nonlinear relationships between ambient ozone and precursor emissions caused by the complex photochemical reaction cycle. This study aimed at developing a standard method based on air quality simulations to evaluate effectiveness of emission controls on ambient ozone and confirming that the method developed in this study can represent a long-term trend of ambient ozone caused by emission controls implemented in past years.

Long-term emission inventories were newly developed in this study. They represent long-term variations in precursor emissions from all sources in Japan and surrounding countries since 2000. They revealed that NO_x and VOC emissions in Japan have been reduced by various emission controls.

A ratio of formaldehyde (HCHO) and nitrogen dioxide (NO₂) is known as a useful indicator to evaluate sensitivities of ozone formation to NO_x and VOCs (=ozone formation regime). A long-term dataset of ambient HCHO, NO₂, and ozone concentrations was newly developed based on continuous observations with Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) at urban (Chiba) and suburb (Tsukuba) sites. In addition, satellite observation data was analyzed to derive long-term trends of ambient HCHO and NO₂ concentrations. Both datasets revealed that ozone formation is sensitive to VOCs and NO_x in urban and suburb regions, respectively, and regimes tend to be shifted from VOC-sensitive to NO_x-sensitive.

Long-term air quality simulations for years 2000-2020 using long-term emission inventories were performed. They reasonably reproduced long-term trends in meteorological fields and ambient concentrations of ozone and precursors. In particular, absolute values and variations of annual top 10-day ozone concentrations were reproduced quite well by simulations. Ozone formation regimes derived from simulations were consistent with those obtained by MAX-DOAS and satellite observations. Simulated results indicated that various emission controls implemented in past years have effectively suppressed higher ozone concentrations while influences of annual variations in meteorological fields are also large on them.

This study suggests that it is possible to evaluate effectiveness of future emission controls on ozone concentrations based on relative changes in annual top 10-day concentrations simulated by air quality simulations which are not affected by unusual meteorological fields and transboundary transport.

[References]

Chatani, S., Kitayama, K., Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H. (2023). Effectiveness of Emission Controls Implemented Since 2000 on Ambient Ozone Concentrations in Multiple Timescales in Japan: An Emission Inventory Development and Simulation Study. Science of the Total Environment, 894, 165058. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.165058

Crippa, M., Guizzardi, D., Butler, T., Keating, T., Wu, R., Kaminski, J., Kuenen, J., Kurokawa, J., Chatani, S., Morikawa, T., Pouliot, G., Racine, J., Moran, M.D., Klimont, Z., Manseau, P.M., Mashayekhi, R., Henderson, B.H., Smith, S.J., Suchyta, H., Muntean, M., Solazzo, E., Banja, M., Schaaf, E., Pagani, F., Woo, J.H., Kim, J., Monforti-Ferrario, F., Pisoni, E., Zhang, J., Niemi, D., Sassi, M., Ansari, T., Foley, K. (2023). The HTAP_v3 Emission Mosaic: Merging Regional and Global Monthly Emissions (2000-2018) to Support Air Quality Modelling and Policies. Earth System Science Data, 15 (6), 2667-2694. https://doi.org/10.5194/essd-15-2667-2023

Li, M., Kurokawa, J., Zhang, Q., Woo, J.-H., Morikawa, T., Chatani, S., Lu, Z., Song, Y., Geng, G., Hu, H., Kim, J., Cooper, O.R., McDonald, B.C. (2024). MIXv2: A Long-Term Mosaic Emission Inventory for Asia (2010–2017). Atmospheric Chemistry and Physics, 24, 3925–3952. https://doi.org/10.5194/acp-24-3925-2024, 2024.

Irie, H., D. Yonekawa, A. Damiani, H. M. S. Hoque, K. Sudo, and S. Itahashi, Continuous multi-component MAX-DOAS observations for the planetary boundary layer ozone variation analysis at Chiba and Tsukuba, Japan from 2013 to 2019, Progress in Earth and Planetary Science, 8, 31, https://doi.org/10.1186/s40645-021-00424-9, 2021.

Damiani, A., H. Irie, D. A. Belikov, S. Kaizuka, H. M. S. Hoque, and R. R. Cordero, Peculiar COVID-19 effects in the Greater Tokyo Area revealed by spatiotemporal variabilities of tropospheric gases and light-absorbing aerosols, Atmos. Chem. Phys., 22, 12705–12726, https://doi.org/10.5194/acp-22-12705-2022, 2022.

Damiani A., H. Irie, D. Belikov, R. Cordero, S. Feron, and N. N. Ishizaki, Air quality and urban climate improvements in the world's most populated region during the COVID-19 pandemic, Environmental Research Letters, 19, 3, https://doi.org/10.1088/1748-9326/ad25a2, 2024.

Itahashi, S., Irie, H. (2022). Surface and Aloft NO₂ Pollution over the Greater Tokyo Area Observed by Ground-Based and MAX-DOAS Measurements Bridged by Kilometer-Scale Regional Air Quality Modeling. Progress in Earth and Planetary Science (PEPS), 9, 15. https://doi.org/10.1186/s40645-022-00474-7

Itahashi, S., Irie, H., Shimadera, H., Chatani, S. (2022). Fifteen-Year Trends (2005–2019) in the Satellite-Derived Ozone-Sensitive Regime in East Asia: A Gradual Shift from VOC-Sensitive to NO_x-Sensitive. Remote Sensing, 14, 4512. https://doi.org/10.3390/rs14184512

This research was funded by the Environment Research and Technology Development Fund (ERTDF).

另刂糸氏

【参考資料】終了研究成果報告書 公募審査・中間評価結果への対応

指摘等	対応状況・非対応理由等
採択時コメント「オキシダント原因物質濃度の過去の経年変化とオゾン 濃度の変化との対応を再現できるモデルが完成すれば、今後の対策目標が 明確になるので、大変有意義な研究である。期間内にプレゼンスライド14 に示された目標を達成して頂きたい。」	オキシダント原因物質濃度の過去の経年変化とオゾン濃度の変化との対 応を再現できるモデルを完成させ、目標を上回る成果を上げることができ た。
採択時コメント「改善が進まない光化学オキシダント問題に対し、観測デ ータや排出量等を活用したわが国に適したシミュレーションのための手法 確立が望まれる。」	本研究で確立した手法により、過去のオゾン濃度変化を表現できることが 明らかになり、改善が進まない光化学オキシダント問題の解決に貢献できる と考えている。
採択時コメント「シミュレーション結果を3次元の観測結果で検証するの は素晴らしいと思われる。MAX-DOAS、衛星データの空間分解能は十分だろう か。」	MAX-DOASと衛星データの活用により、都市部と郊外におけるオゾン感度レジームの違いなどの空間的な特徴を明らかにすることができた。
採択時コメント「環境基準値を尺度とした評価のみならず、対象地域の発 生源が寄与するオゾン生成量等を尺度とした評価での解析も期待したい。」	本研究において、発生源の排出量を変化させて計算されたオゾン濃度の変 化量は、発生源が寄与するオゾン生成量とみなすことができ、その変化量を 基に対策効果の評価をできるようにした。
採択時コメント「対策の効果を検討するということは必要かつ重要だと 思う。研究としてはモデルを中心に進むかと思うが、「対策」をどのように 定量化されるのか、たとえばCOVID-19の場合、単純に濃度変化だけで考える のか、違う観点を含めるのか、といった点をどのように考えていくのか、を 整理いただければと思う。」	本研究においては、排出量を活動量(エネルギー消費量など)と排出係数 (単位活動量あたりの排出量)の積で表現されるものとし、「対策」は排出 係数の低減という形で定量化した。一方、COVID-19の影響については、特異 的な活動量の変化で現れるものとし、活動量を解析することによってその影 響を定量化した。
採択時コメント「重要なテーマではあるが、今回の研究で複雑なオゾンの	本研究においては、将来の方策に関する具体的なシナリオを構築すること

挙動の予測と将来達成の外挿となる削減達成のための方策、そのシナリオ が高い信頼度を得られるのか疑問が残る。」	を目的とはしていない。
採択時コメント「オゾンの生成を量的に抑えるにはより細かな発生源イ ンベントリが必要なのではないだろうか(時間的にも空間的にも)。衛星デ ータからオゾン感度レジームを把握する視点は興味が持てる。」	時間的には年変動から時間変動まで、空間的には解像度1×1 kmの細かな 排出インベントリを構築することができた。地上分光観測やシミュレーショ ンとの比較により、衛星データからオゾン感度レジームを把握できることが 明らかになった。
採択時コメント「アメリカの焼き直しではなく、わが国の実情に合ったモ デルが欲しい。過去のデータからシミュレートし実測値との整合性をチェ ックするというプロセスになるが、モデルを精緻化すればアウトプットが 良くなるのか、まだ不明がメカニズムがあるのか、明確にしていただきた い。」	モデルについてはアメリカで開発されているものを使用しているが、全世 界で得られている科学的知見を基に改良を加えられているものである。その モデルでも過去のオゾン濃度の経年変化を精度よく再現できることが示さ れた。
採択時コメント「この研究を推進した場合に、オゾン生成機構についての 新たな知見が得られた場合にも対応可能かが気になる。」	オゾン生成機構についての新たな知見によって結果が大きく変化する場 合にはモデルを改良する必要があるが、現状のモデルでも過去のオゾン濃度 変化を精度よく再現できることが明らかになり、対策の効果を適切に評価で きると考えている。
採択時コメント「米国EPAに依存するのではなく、日本からの発信として 推進することを期待したい。」	EPAのガイドラインを評価手法の出発点としたが、本研究で実施した長期 排出インベントリ、長期大気質シミュレーションの実行、地上分光計測と衛 星計測に基づく対策効果の評価はいずれも本研究で独自に得られた成果で ある。既に国際会議を開催して成果を発信したほか、今後も日本から成果の 発信を続けていきたい。
中間評価コメント「学術発表、社会還元も多く、非常に順調に進んでいる と考えられた。どのような政策を行うとオゾン、NO _x 、オキシダント、VOCが 増減するかの評価の一助になることが望ましい。例えば5RF-2102の課題を 含め合同で、知見の共有や対策への応用の討議を行ってはどうか。」	5RF-2102ではないが、光化学オキシダントに関わる5-2106と5MF-2201と合同で、大気環境学会年会での特別集会を開催し、知見の共有や対策への応用の討議を行った。
ーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーーー	住民や納税者への展開には至っていないが、一般を対象にした講演会や学

が、「国民との科学・技術対話」など、本研究の推進のために国民の理解を 得ることが重要である。例えば、今後、住民も参加できるような身近な対策 の実行によって、大気質にどのような経年変化などがどのように起こるか といった説明など、できないだろうか。納税者へのわかりやすい説明方法な どみつかれば、評価ヒアリングにおける報告や報告書への記載など、可能な 範囲でご検討いただきたい。」	生のインターンへの対応などにより成果の発信に努めた。
中間評価コメント「排出インベントリー作成、大気質シミュレーションな	本研究では、基準達成に必要な具体的なシナリオを構築することまでは目
どにおいて着実に成果を上げている。成果を基に、今後、基準達成に必要な	的とはしていないが、得られた知見や評価方法に基づいて、基準達成に必要
シナリオが提案できることを期待したい。」	なシナリオの検討が行われることが望まれる。
中間評価コメント「順調に進捗していると思われ、研究成果の対外発表も 着実に出ている。」	計画通り進めることができ、対外発表も積極的に行えた。
中間評価コメント「順調に研究が進んでいると思う。成果を期待する。可	本研究では、現実的に実施可能な対策を示すことまでは目的としていない
能であれば、研究として得られた対策と現実的に実施可能な対策を整理し	が、得られた知見や評価方法に基づいて、実施可能な対策とその効果が評価
て、成果をまとめてもらった方がよいのでは。」	されることが望まれる。
中間評価コメント「モデルの活用方法を検証に用いているのは評価できる。気候変動の影響と思われるBVOCの増加など、排出インベントリーの精緻 化がボトルネックとなる可能性があり、これらの研究の進捗にも期待する。」	気象条件の変化によるBVOCの変化も表現できる排出インベントリとなっている。対策によるオゾン濃度の低減効果を評価する上で、ボトルネックとなるような排出インベントリの課題は見い出されていない。
中間評価コメント「かなり精緻なところまで解析がなされるようになってきていると評価できる。さらに対策そのものの評価につなげ、例えばEV	本研究では、EVの普及など、将来の具体的な対策を提示することを目的と
が広まったときにどうなるのかというような将来の予測にもつなげてほしい。」	はしていない。
中間評価コメント「大気シミュレーションにより長期のオゾン濃度変動	コロナ禍では気象条件による影響も大きいことが明らかになったが、オゾ
要因が明らかにされている。コロナ禍の排出量変化がオゾン生成機構解明	ン濃度の変化は概ね再現できていることから、排出量の変化によるオゾン濃
の手掛かりになる可能性がある。」	度の応答は表現できていると考えられる。

中間評価コメント「今後の有効な対策立案に有用な情報を提供」に貢献し	本研究はモデルを精緻化するものではなく、既存のモデルを使用しつつ、
ていると判断されるが、何のために、何をどこまで、モデルの精緻化が必要	長期排出インベントリ、地上分光計測、衛星計測を組み合わせ、独自の大気
か、これまで構築してきたモデルは、どのような場で、どのように使われ、	質シミュレーションを実行して、対策によるオゾン濃度低減効果を評価でき
どのようなアウトカムをもたらしてきたか、それらの経緯から判断して、次	るようにすることを目指したものである。本研究により、シミュレーション
の取り組みのPriority が明示されることが期待される。」	の有用性を明示することができたと考えている。
中間評価コメント「今後も順調に進むことを期待する。」	計画通り進めることができた。
中間評価コメント「計画通り順調に進んでいる。特に排出量の変化要因と	具体的な対策の立案につなげるために、排出量の変化要因を定量化するこ
排出ガス規制の影響を定量化された結果に興味を持った。」	とを意識して排出インベントリの構築を行うことができた。