

Environment Research and Technology Development Fund

## 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

### 大気質変化事例の構造解析と評価システムの構築 (S-12-1)

平成26年度～平成30年度

Cause and effect analysis of atmospheric quality change events and construction of an evaluation system

〈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〉

一般財団法人日本環境衛生センター

国土交通省気象庁気象研究所

〈研究協力機関〉

九州大学応用力学研究所

一般財団法人電力中央研究所環境科学研究所

平成31年5月

## 目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 マルチスケール大気質変化評価システムの構築と変化事例の解析 （国立研究開発法人国立環境研究所）	15
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-2 アジア域排出インベントリシステムの開発 （一般財団法人日本環境衛生センター）	49
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-3 地域スケールの排出量逆推計システムの構築 （国土交通省気象庁気象研究所）	82
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	

- 4. 結果及び考察
- 5. 本研究により得られた成果
- 6. 国際共同研究等の状況
- 7. 研究成果の発表状況
- 8. 引用文献

Ⅲ. 英文Abstract

..... 103

## I. 成果の概要

課題名 S-12-1 大気質変化事例の構造解析と評価システムの構築  
 課題代表者名 大原 利真（国立研究開発法人国立環境研究所企画部フェロー）  
 研究実施期間 平成26～30年度  
 累計予算額 287,516千円  
 （うち平成26年度：61,169千円、平成27年度：58,111千円、平成28年度：55,205千円、平成29年度：57,965千円、平成30年度：55,066千円）  
 累計予算額は、間接経費を含む。

本研究のキーワード 地域大気汚染、大気質変化、アジア、化学輸送モデル、排出インベントリ、逆推計

### 研究体制

- (1) マルチスケール大気質変化評価システムの構築と変化事例の解析（国立研究開発法人国立環境研究所）
- (2) アジア域排出インベントリシステムの開発（一般財団法人日本環境衛生センター）
- (3) 地域スケールの排出量逆推計システムの構築（国土交通省気象庁気象研究所）

### 研究協力機関

九州大学応用力学研究所、一般財団法人電力中央研究所環境科学研究所

## 1. はじめに（研究背景等）

気候変動を緩和するためには短寿命気候汚染物質（SLCP）の削減が重要な課題である。特に、アジアではSLCP排出量が世界的にも多いことから、その排出削減が急務となっている。

中国やインドをはじめとするアジアでは、急速な経済成長に伴って燃料消費量が増大し、1980年代後半から大気汚染物質の排出量が増加してきた。その結果、PM<sub>2.5</sub>やオゾンなどによる大気汚染が発生し、人の健康や食糧生産、生態系に大きな影響を及ぼしているばかりでなく、地域気候システムにも複雑な変化を引き起こしている。一方、中国では2010年以降、大気汚染対策が進み、その結果として大気汚染物質の排出量が減少している物質もある。そのため、アジアの大気汚染構造は急激に変化していると考えられ、その変化を把握する必要がある。また、これまでの大気汚染対策による削減対策効果を定量的に示すことは、これからのSLCP対策を検討する上で重要である。

## 2. 研究開発目的

アジアにおいて大気汚染と地球温暖化による環境影響の緩和に対して有効なSLCP削減の効果的な対策メニューを示すために、過去の大気質変化イベントの定量的解析を通じて、SLCP削減の有効な対策を明らかにし、対策効果の定量的評価ツールを開発することを目標とする。そのために、全球・領域化学輸送モデル（CTM）をもとに、都市～アジアスケールの大気質変化事例の解析や対策効果の評価が可能なマルチスケール化学輸送モデルシステムを構築し、過去に実施された大気汚染対策に適用して、排出量変化と大気質変化の定量関係を評価する。更に、本研究で構築される排出インベントリ、排出量逆推計システムと統合して「マルチスケール大気質変化評価システム」を構築し、地域大気質変化事例によって検証する。最終的に、このシステムを用いて、大気汚染対策効果を分析することによりSLCP対策の有効性を定量的に明らかにする。

具体的には、アジア地域において、社会経済変化や環境対策によって大気質が変化した事例をSLCP対策の社会実験ケースとして捉え、その事例時の観測データや社会経済データ、対策情報等を収集し、排出インベントリ／化学輸送モデル／排出量逆推計モデルを活用して変化要因や対策効果を定量的に分析するとともに、そ

の変化を再現できるように各モデルを改良することにより、SLCP対策効果を定量的に評価可能な計算システムを構築する。この目的を達成するために、マルチスケール化学輸送モデルシステム(サブテーマ1; 国立研究開発法人国立環境研究所)、アジア域の排出インベントリシステム(サブテーマ2; 一般財団法人日本環境衛生センター)、排出量逆推計システム(サブテーマ3; 国土交通省気象庁気象研究所)の開発・改良を進め、これらの3つのシステムを「マルチスケール大気質変化評価システム」として統合して、大気汚染対策による排出量削減効果・大気質改善効果を定量的に分析する。

### 3. 研究開発の方法

アジアにおけるSLCP関連物質の排出量と大気質の最近の変化並びに長期変化を把握するとともに、これまでに実施された大気汚染対策による大気環境改善効果を明らかにすることを目的として、全球・東アジア・日本国内を対象としたマルチスケール化学輸送モデルシステム、アジア域における排出インベントリシステム、衛星・地上観測を使用した排出量逆推計システムを結合したマルチスケール大気質変化評価システムを開発する(図1)。

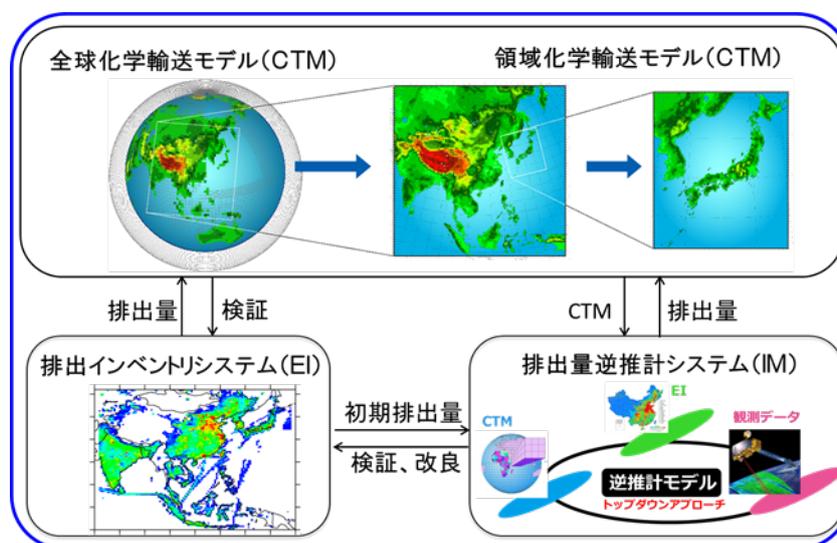


図1. 本研究で構築するマルチスケール大気質変化評価システムの構成。

#### (1) マルチスケール大気質変化評価システムの構築と変化事例の解析(サブテーマ1)

##### 1) マルチスケール化学輸送モデルシステムの構築と大気汚染対策効果の解析

全球規模から日本国内までの多様な(マルチ)空間スケールにおける大気質の変化を解析するため、全球規模の大気化学輸送モデル(Chemical Transport Model: CTM)であるCHASERと領域規模CTMのCMAQを統合的に用いた、マルチモデル-マルチスケールCTMシステムを構築した。このCTMシステムを用いて近年(2000年～2012年)のアジアの大気質再現実験を行い、観測された大気質の変化事例の再現性を解析することによりCTMシステムの検証を行った。検証は観測データの充実している日本域を対象に行い、同期間における大気汚染物質地表濃度のトレンドや週末効果といった変化事例に関して観測との比較を行い、また特に地表オゾン(O<sub>3</sub>)に関しては、明らかとなったCTMによる過大評価バイアスに関して、最も基本となる日変化の再現性にまで遡って検討を加えた。また、PM<sub>2.5</sub>の再現性向上に向けて観測値との比較に基づく改良を行い、一定の再現性向上を達成した。他サブテーマと連携して、マルチスケール大気質変化評価システムを用いて、観測データに整合的な大気汚染物質排出量の修正を一通り行い、修正された排出量によるCTM計算値の再現性変化について検証した。最後に、サブテーマ2で開発された大気汚染物質の長期排出インベントリを用いた長期(1960年～2010年)のアジア大気質過去再現実験(標準実験)を行った。これに加えて、過去に日本および中国で実施された大気汚染物質に対する排出削減対策を考慮しない場合の排出量推計を用いた実験(排出削減対策未考慮実験)も行い、過去において日本と中国で実施された各種の大気汚染物質排出削減対策が日本の大気質に及ぼした効果を評価した。

## 2) 観測データ等による大気質変化の解析

以下の4つの観点から、過去のアジア域における大気汚染の変化事例の解析を行った。

### (a) ライダーデータと地上大気汚染データ等を用いた週末効果の検出

日本国内における社会活動による大気汚染質の変動の一形態としての週内変動(平日と土日の差異)を検出する。アジア域ライダーネットワークから得られた球形粒子消散係数鉛直プロファイルを平日・土日に分けてコンポジット解析して両者の差分を調べ、大気環境常時監視データからはPM<sub>2.5</sub>日平均値を作成し、地域別全データの累積度数分布を曜日ごとに作成して60パーセンタイル値を曜日別に比較した。

### (b) 衛星観測データに基づく広域大気汚染の中長期変動解析と化学輸送モデルとの比較

東アジア域におけるエアロゾルおよび前駆物質の中長期変動を調べるために人工衛星Terra搭載のMODIS、SO<sub>2</sub>/NO<sub>2</sub>についてAura搭載のOMIの解析を行った。MODISは光学的厚さ(AOD)について2000年から2015年、OMIはカラム量について2011年から2015年を対象とし、地域は中国3領域と日本周辺を設定した。光学的厚さに関しては化学輸送モデルの計算結果から導出された値を衛星観測結果と比較した。

### (c) ライダーデータに基づく球形粒子の高度別消散係数の中長期変動解析

球形粒子(主に2次生成された液滴)の中長期変動について、光学的厚さの鉛直分布を示す消散係数をアジア域ライダーネットワークによる観測結果から推定し、大気境界層内と自由対流圏内とで変動傾向に差異があるか調査した。まず、晴天・曇天時について高度3km以下、および高度3-6kmの2高度帯について球形粒子消散係数を積分し、月平均値を導出した。この結果を3ヶ月毎に分類した上で時間の1次関数でフィッティングし、2009年から2018年にかけてのトレンドを西日本・東日本で推定した。

### (d) アジア域における大気汚染変化事例の情報収集と評価

海外における社会的イベントに関連した大気汚染状況の変化について調査するために、中国やインドを対象に、イベントや社会活動規制時における大気観測データに基づく研究成果(査読付き論文として発表されているもの)を調査した。

## (2) アジア域排出インベントリシステムの開発(サブテーマ2)

### 1) アジア域排出インベントリシステムの開発

本研究では、以下の4つの構成要素からなるアジア域排出インベントリシステムを開発した。

- (a) 排出量推計システム: 任意の活動量、セクター、排出に関する技術、除去に関する技術の組合せに対する排出量を推計する式に従ってシステムを構築。自動車起源については車種別、農業起源については家畜種・化学肥料種別に排出量を推計するシステムを構築。
- (b) 排出量推計システム用入力ファイル生成システム: 任意のシナリオ(活動量やそのドライバ、排出係数や除去率の技術設定情報など)に基づいて排出量推計システムの入力データを生成するシステムを構築。
- (c) 排出量推計結果集計システム: 排出量推計システムの実出力結果を基に、事後の解析や外部システムの入力データに適したフォーマットに変換して出力するシステムを構築。
- (d) 大気モデル入力用グリッドデータ生成システム: 排出量推計システムの実出力結果を基に、大気質モデル、化学気候モデル入力用のグリッドデータを生成するシステムを構築。

更に、S-12全体のSLCP排出シナリオを作成するために、テーマ2のアジア太平洋統合評価モデル(AIM)とのインベントリ構造の整合を図るとともに、AIMとの排出基礎情報の共有化を進めた。

### 2) アジア域長期ヒストリカル排出インベントリの開発

本研究では、東、東南、南アジア全域を対象とし、1950-2015年に対するSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、NMVOC、NH<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、OCの長期ヒストリカル排出インベントリを、Regional Emission inventory in ASia version 3 (REASv3)として開発した。燃料燃焼、産業プロセス、蒸発起源NMVOC、農業起源NH<sub>3</sub>を主要発生源とし、国・領域別の排出量テーブルデータ、アジア全域の排出量グリッドデータを作成した。活動量については、国際統計、各国統計、各種産業団体の資料、排出インベントリ研究論文などから収集し、マクミラン新編世界歴史統計なども活用して、全期間のデータを整備した。排出係数、除去率についても、排出インベントリマニュアル、研究論文、発電所データベース、大気汚染対策に関する報告書などを参考に、可能な限り国・領域別に、設備・導入率

の設定とその時系列変化の考慮を行った。また、グリッドデータの作成に使用するグリッド分配指標、季節変動指標、点源発電所データについては、新規に収集された情報に基づいて更新した。農業起源NH<sub>3</sub>、日本・韓国・台湾の蒸発起源NMVOCについては、既存データと本研究オリジナルのデータを組み合わせて作成した。

本研究で開発したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリを用い、SLCP関連物質の排出実態と経年変化の評価を行った。特に、SO<sub>2</sub>(寒冷化物質・PM<sub>2.5</sub>主要成分である硫酸エアロゾルの前駆物質)、NO<sub>x</sub>(SLCPである対流圏オゾン及び寒冷化物質・PM<sub>2.5</sub>主要成分である硝酸エアロゾルの前駆物質)、BC(SLCP及びPM<sub>2.5</sub>主要成分)に重点を置いて解析を行った。

### 3) アジア域排出インベントリシステムの活用

#### (a) 発生源対策効果の評価

本研究で開発したアジア域排出インベントリシステムの特徴の一つは、発生源対策効果の定量化が可能となったことである。本研究では、日本と中国のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCを対象として、発生源対策の効果を以下の手続きに従って定量評価した。

- ① アジア域長期ヒストリカル排出インベントリの結果を標準の排出量とする。
- ② 排出後除去率をゼロとし、その他の設定は変更せずに排出量を推計。
- ③ 排出後除去率をゼロとし、更に燃料中硫黄分低減対策、NO<sub>x</sub>排出係数低減対策、自動車規制について、それぞれ関連するパラメータを、対策が始まる前の値に固定して排出量を推計。
- ④ ②から①を差し引いた値を脱硫装置(SO<sub>2</sub>)、脱硝装置(NO<sub>x</sub>)、集塵装置(BC)による対策効果とし、③から②を差し引いた値を、燃料中硫黄分低減対策、NO<sub>x</sub>排出係数低減対策、自動車規制による効果として算定。

#### (b) 排出量逆推計結果による排出インベントリの評価

本研究で開発したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリには、活動量、排出係数、除去率などに不確実性が存在する。一方、観測データ、大気モデル、数値アルゴリズムによって排出量を推計する排出量逆推計モデルは、排出インベントリの誤差要因となるパラメータを直接使用しないため、排出インベントリの評価に有用である。本研究では、中国のNO<sub>x</sub>を対象に、衛星観測データを使用した排出量逆推計モデルの結果とアジア域長期ヒストリカル排出インベントリの結果を比較し、特に中国の2010年以降のトレンドに着目して排出インベントリの改良を試みた。

### (3) 地域スケールの排出量逆推計システムの構築(サブテーマ3)

本サブテーマでは、SLCPの人為的排出量を観測データと化学輸送モデルを用いて解析(逆推計)する手法を開発した。主なターゲット物質はNO<sub>x</sub>とBCである。NO<sub>x</sub>に関しては、衛星観測データを用いた逆解析手法を新たに開発して検証および改良等を実施した。逆推計に必要な先験情報(排出量インベントリ)はサブテーマ2より、領域化学輸送モデルによる計算結果はサブテーマ1より提供を受けた。BCに関しては長寿命大気微量成分の逆推計で実績のあるベイズ統合解析の手法を導入した。逆推計に必要な先験情報はサブテーマ2より提供を受け、全球エアロゾル輸送モデルは独自開発のモデルを用いた。

NO<sub>x</sub>排出量逆推計に関しては、先験情報としてサブテーマ2より提供された排出インベントリ(2005~2008年)を用い、感度情報として用いる化学輸送モデルの計算結果はサブテーマ1より領域化学輸送モデル(CMAQ)の計算結果の提供を受けて逆推計システムへの入力とした。排出量を拘束する観測データとしてはAura衛星に搭載されたOMIセンサーの観測から得られた対流圏NO<sub>2</sub>鉛直カラム濃度(以下、NO<sub>2</sub>カラム濃度)を利用した。この解析の核となる逆推計システムに関しては、排出量の変化とNO<sub>2</sub>カラム濃度の変化に線形関係が成り立つものと仮定して、その比例係数を化学輸送モデルによる感度実験(排出量を一定の割合で変化させた実験)の結果から推定することとした。次に線形不偏最適推定をNO<sub>2</sub>カラム濃度に関して行い、NO<sub>2</sub>カラム濃度の誤差が対数正規分布に従うものとして最適化されたNO<sub>2</sub>カラム濃度とその誤差を推定した。本手法の独創的な部分は、準リアルタイム更新に必要な計算の簡便さを維持しつつ、線形不偏最適推定を適用しモデルと観測の誤差を解析に含めたこと、モデルのバイアスの効果を考慮したことである。この逆推計システムを用いて中国とインドにおける2005~2016年の長期間にわたるNO<sub>x</sub>排出量を推計した。

BC逆推計に関しては、NO<sub>x</sub>よりも化学変化が少なく寿命も長いため、二酸化炭素等の長寿命の大気微量成分にこれまでよく用いられてきたベイズ統合逆推計を応用することとした。この手法は解析すべき領域から一定量の物質を排出して輸送モデルによる実験を行い(タグ付き輸送実験)、その結果が観測値をより良く再現しつつ先験情報とも大きく外れない解析値を求めるものである。観測値としては地上観測網(COSMOS)による地上付近のBC濃度と衛星観測(OMI)による光吸収性エアロゾルの光学的厚さを用いた。輸送モデルとしてはタグ付き輸送実験を数ヶ月実施するためには領域化学輸送モデルでは不十分なため、気象研究所において開発した全球エアロゾル輸送モデル(MASINGAR mk-2)を用い、タグは中国の33省、韓国、日本を設定した。NO<sub>x</sub>の場合と同様にモデルバイアスは逆推計結果に大きな影響を与えることになるため、モデル実験結果と観測データを用いてモデルバイアスを評価して修正することとした。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) マルチスケール大気質変化評価システムの構築と変化事例の解析(サブテーマ1)

###### 1) マルチスケール化学輸送モデルシステムの構築と大気汚染対策効果の解析

全球規模のCTMであるCHASERで計算された大気汚染物質の3次元データを、領域規模のCTMであるCMAQの境界条件として与えることにより、全球から半球規模の大規模な大気汚染物質の動きがアジアなどの領域規模、更には日本国内などの地域規模にまで反映されるようにしたマルチモデル-マルチスケールCTMシステムを構築した。このシステムを用いた近年(2000~2012年)の大気質変化再現実験では、一次汚染物質(SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、NMHC)の年平均地表濃度はモデルで過小評価(観測値の1/5から半分程度)されること、観測と同様にこの間に濃度減少傾向を示すものの、その減少率は観測の4割から8割程度であることが見出された。一方、二次汚染物質であるO<sub>3</sub>の地表濃度に関しては、2000年から2009年までに観測された増加傾向がその増加率(観測: 0.44ppbv/年、モデル0.47ppbv/年)や増加の地理的、季節的な傾向も含めて良く再現された。ただし、O<sub>3</sub>の地表濃度自体は最大で20ppbv程度の過大評価傾向にあり、その特徴をO<sub>3</sub>地表濃度の日変化にまで遡って観測との比較検証を行うと、どの季節・時間帯でも過大評価となっており、特に夕方から早朝にかけての時間帯で過大評価傾向が強まっていることが確認された。この時間帯では、O<sub>3</sub>を破壊する物質であるNO濃度が観測に比べて著しく低いことも判明し、このNOの過小傾向がO<sub>3</sub>の過大傾向の原因であることが示唆された。また、このNOの過小傾向はモデルの水平分解能を15km程度まで細かくするだけでは改善されず、大気中での化学反応が十分に考慮されているか、なども含めた今後の更なる検討の必要性を強く示唆する結果となった。一方、PM<sub>2.5</sub>に関しては、硝酸とアンモニアの乾性沈着速度を大きくすることおよび揮発性基底関数(VBS)モデルの導入等によって、特に問題が大きかった硝酸塩粒子と有機炭素粒子の再現性に一定の改善が図られることが確認された。

サブテーマ3で逆推計され、修正されたNO<sub>x</sub>排出量を用いてCTM計算を行い、修正前の排出量を用いて計算した場合のO<sub>3</sub>やNO<sub>2</sub>濃度と比較を行った。NO<sub>2</sub>の濃度は中国やインド、東南アジアでは比較的大きく変化するものの日本では大きな影響は見られなかった。O<sub>3</sub>濃度に関しては、変化の中心は東南アジアであり、日本の地表濃度は微増する結果となった。これは、少なくとも前述したCTMによる地表O<sub>3</sub>の過大評価の改善に資するものではなく、この問題の解決にはNO<sub>x</sub>排出量の修正だけではなく根本的な原因究明が必要であることを示唆している。

従前より高解像度化(水平格子間隔約120km)したCHASERとサブテーマ2より提供された排出インベントリを用いて、長期(1960年~2010年)のアジア大気質過去再現実験(標準実験)を行った。モデルは、観測された一次汚染物質の長期変化の基本的特徴を再現しており、特にSO<sub>2</sub>の長期変化が濃度そのものも含めて良く再現された。日本における排出削減対策を考慮しなかった場合には、対策を考慮した場合に比べて、2010年における濃度が約2.5倍から7倍の高濃度になっており、過去に日本で行われた排出削減対策による一次汚染物質の濃度低減に対する有効性が示された。一方、二次汚染物質であるO<sub>3</sub>の地表濃度に対する排出削減対策の効果を単純な年平均値で評価すると、NO<sub>x</sub>の排出削減対策によるNO濃度の減少に伴ってNOによるタイトレーションが弱化するため、排出削減対策によって逆に濃度が増加する結果となるが、地表O<sub>3</sub>の日最高8時間平均濃度(Daily-Maximum 8-Hour ozone value (DM8H O<sub>3</sub>))の年間99パーセンタイル値というO<sub>3</sub>高濃度イベントの指標に

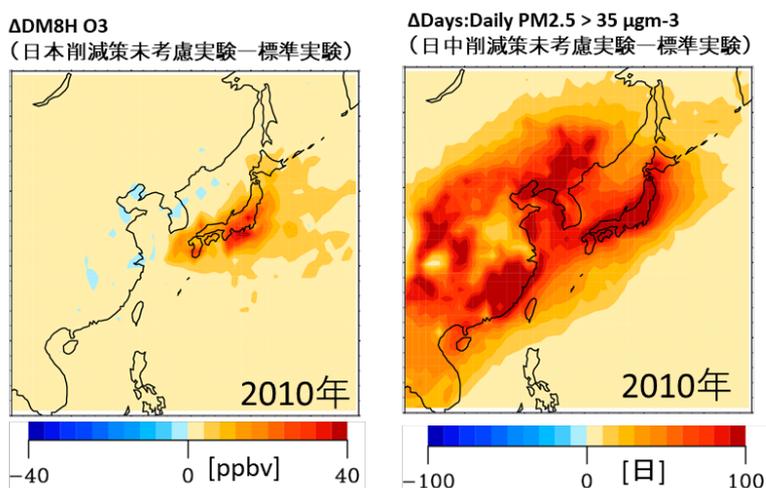


図2. DM8H O<sub>3</sub>の年間99パーセンタイル値(左)と日平均PM<sub>2.5</sub>濃度が35µg/m<sup>3</sup>を超過する日数(右)の排出削減対策未考慮実験(左図では日本のみ、右図では日中を対象)と標準実験の差。

については、日本の排出削減対策によって日本の広い領域で減少した(図2左)。また、PM<sub>2.5</sub>の地表濃度に対する日本・中国の排出削減対策の効果も顕著にみられた(図2右)。PM<sub>2.5</sub>の場合は、日本だけでなく中国における排出削減対策が日本のPM<sub>2.5</sub>濃度に与える影響は大きく、特に2000年代後半には日本の排出削減対策によるPM<sub>2.5</sub>高濃度日の減少効果の25~40%程度にまで達していると推計された。

## 2) 観測データ等による大気質変化の解析

### (a) ライダーデータと地上大気汚染データ等を用いた週末効果の検出

ライダーによる球形粒子消散係数のコンポジット結果によると、首都圏において高度2km以下の境界層内における平日と土日との差が明確であったが、西日本でははっきりと見られなかった。常時監視データによるPM<sub>2.5</sub>の曜日別60パーセンタイル値について、2013年度の首都圏においては土・日曜の濃度が月曜から金曜よりも低く、この傾向は一般局と自排局で共通していた。他地域では逆に土日が上位となる場合もあり、エアロゾル週末効果には地域依存性があることが示された。また、首都圏においても年度によっては傾向が異なる場合が見られ、人間活動とPM<sub>2.5</sub>濃度との対応は気象要素など複雑な要因が関連しているものと考えられる。

### (b) 衛星観測データに基づく広域大気汚染の中長期変動解析と化学輸送モデルとの比較

微小粒子エアロゾルによる光学的厚さ(AOD)の経年変動に関して、中国国内において、2007年頃にAODのピークが見られ、その後2009年にかけてはAODが減少しており、世界経済の減速時期と対応している。その後の変化傾向は一様ではない。日本周辺においては2003年から2008年になだらかなピークが存在し、その後はわずかに減少傾向が見られる。また、CMAQとMODISの対応としては、中国中部でややCMAQが過大という結果が見られたものの、季節変動の位相・振幅や中長期的な変動傾向は概ね一致していることが確認された。SO<sub>2</sub>やNO<sub>2</sub>については中国北部で2010年代前半の減少傾向が明瞭に捉えられたが、中国南部および日本周辺ではほぼ横ばいとなっている。

### (c) ライダーデータに基づく球形粒子の高度別消散係数の中長期変動解析

ライダーによる高度別球形粒子消散係数の10年間のトレンドに関しては、東西日本・四季・上下層別の16データセットにおいて年率換算で-9.84%から+8.10%までの範囲に値が分布し、明確な地域・季節・高度依存性は見出せなかった。地上観測に見られるPM<sub>2.5</sub>濃度の近年の低下と対応しない点については、湿度の影響や観測手法の違い、鉛直濃度分布の変化などの要因が考えられる。

### (d) アジア域における大気汚染変化事例の情報収集と評価

2008年北京オリンピックの開催期間中、多くの大気汚染物質濃度は減少したが、一部増加したものもある。PM<sub>2.5</sub>では有機物が多く、調理由来の有機物が24%を占めるとの報告もある。インドでの大気質改善プロジェクト(SURYA)では、改善された調理法を用いると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の濃度が約半減したと報告され、従来の伝統的な調理器具を強制排気のものに変えた場合、BCの濃度が4割減少していた。屋内と屋外でのBC、OC観測では、午前5時から8時と午後5時から7時にかけてBC濃度が上昇したことが報告されている。

## (2) アジア域排出インベントリシステムの開発(サブテーマ2)

### 1) アジア域排出インベントリシステム

3(2)1)に記述した、排出量推計システム、排出量推計システム用入力ファイル生成システム、排出量推計結果集計システム、大気モデル入力用グリッドデータ生成システムを構築し、3(2)2)に記述したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリを開発するため、各システムのカスタマイズを行った。排出量推計結果集計システムについては、燃料燃焼起源排出量推計結果、及び非燃料燃焼起源排出量推計結果の集計を行うサブシステムを構築し、出力フォーマットについては、テーマ2のAIMとの互換性を念頭に置いてカスタマイズした。

以上によって開発されたシステムを用い、アジア域長期ヒストリカル排出インベントリ標準の排出量データと、3(2)3(a)の手法に従って、発生源対策効果を評価するための排出量データの作成を行った。次節2)にて、これらのデータを用いた、SLCP関連物質の排出実態と経年変化に関する評価結果を報告する。

本研究で開発されたアジア域長期ヒストリカル排出量データは他のテーマ・サブテーマに提供された。具体的には、排出量推計結果集計システムを用いて作成された燃料燃焼起源排出量テーブルデータ、非燃料燃焼起源排出量テーブルデータはテーマ2に提供され、AIMでSLCPシナリオを作成するための基準年(2010年)における排出量データとして活用された。また、大気モデル入力用グリッドデータ生成システムを用いて作成されたグリッドデータは、テーマ1サブテーマ1及び3、テーマ3に提供された。テーマ2及びテーマ1サブテーマ1に対しては、標準の排出量データに加え、全ての発生源対策が行われなかった場合を想定して作成された排出量データについても提供された。

### 2) アジア域長期ヒストリカル排出インベントリ

各物質のアジア全域における1950-1955年平均年間排出量、2010-2015年平均年間排出量、その間の増加率は、SO<sub>2</sub>: 3.19Tg/年, 43.5Tg/年, 13.6; NO<sub>x</sub>: 1.84TgNO<sub>2</sub>/年, 49.9TgNO<sub>2</sub>/年, 27.1; CO: 55.7Tg/年, 269Tg/年, 4.82; NMVOC: 6.90Tg/年, 57.1Tg/年, 8.27; NH<sub>3</sub>: 8.98Tg/年, 33.3Tg/年, 3.71; CO<sub>2</sub>: 1.12Pg/年, 18.4Pg/年, 16.4; PM<sub>10</sub>: 5.76Tg/年, 28.4Tg/年, 4.92; PM<sub>2.5</sub>: 4.52Tg/年, 20.3Tg/年, 4.50; BC: 0.751Tg/年, 3.39Tg/年, 4.52; OC: 2.62Tg/年, 6.92Tg/年, 2.64であり、この60年間で、全ての物質の排出量が大幅に増加した(後出の図4(a)参照)。排出量の増加率が特に大きい物質は、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO<sub>2</sub>であるが、これは主要発生源が発電、産業、自動車での化石燃料の燃焼であり、経済発展に伴ってその消費量が激増したためである。CO、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、OCは比較的増加率が小さいが、これは家庭での石炭や植物燃料の燃焼が主要発生源の一つであり、アジアでは過去においても排出量が比較的大きかったこと、また、発電からの排出が比較的小さいことによる。近年の増加は、産業からの排出に加え、COはガソリン車、BCはディーゼル車からの排出の寄与も増加している。国・地域別のアジアにおける排出量比を見ると、日本は1960年代から1970年代にかけて比率が大きく、1965年ではSO<sub>2</sub>は中国に匹敵し、NO<sub>x</sub>は中国を大きく凌駕していた。その後、日本の比率は減少していき、2015年ではそれぞれ数%にまで低下した。全ての物質において、2015年の排出量比が最も大きい国は中国である。しかしながら、多くの物質で近年の排出量は減少から少なくとも横ばいの傾向にあり、これまで懸念されていた大気汚染物質排出量の増加について、ピークは過ぎたと言えそうである。その一方で、インドについては、アジア域内での排出量比が近年大幅に増加してきている。また、東南アジア、インド以外の南アジアについても、近年増加の傾向が見られている。日本・中国以外の東アジアについては、日本からやや遅れて排出量比が増加し、近年では減少傾向にあるが、これは主には韓国、台湾の排出量のトレンドを反映している。

#### (a) 日本

日本の排出量は、CO<sub>2</sub>を除き2015年にはピーク時から大幅に減少しており、多くの物質でピークは40年以上前であった。SO<sub>2</sub>は、高度経済成長に伴い、産業、発電を起源とする排出が1960年頃から急増したが、燃料種は1960年代半ばから重油起源が急増し、これが排出量激増の要因であった。そこで、燃料中硫黄分の低減策が早急に進められ、また、排煙脱硫装置の設置も1970年代半ば頃から進み始め、SO<sub>2</sub>の排出量は1970年頃をピークに速やかに減少した。2015年では、発生源対策が無かったと想定した場合の排出量(以降、未規制排出量)から、約93%が除去されたと推定された。NO<sub>x</sub>は、SO<sub>2</sub>よりやや遅い1960年代後半から急増し、1970年以降微増が続いた後、1980年頃から緩やかに減少するトレンドを示した。NO<sub>x</sub>排出量の大幅な増加が1960年代後半から見られたのは、自動車の走行量が急増し始めたためである。自動車排ガス規制の効果が本格的に現れ始め

たのは1970年代後半からであるが、走行量の増加も2000年頃まで続いたことから、自動車起源排出量の減少トレンドは緩やかなものとなった。また、排煙脱硝装置の導入も本格化したのは脱硫装置より遅い1990年代に入ってからであった。NO<sub>x</sub>の発生源対策による削減率はSO<sub>2</sub>に比べてやや低いが、2015年の未規制排出量からの削減効果は75%に達した。BCについては、1950年代は産業及び家庭からの寄与が半々程度であったが、1960年代以降それぞれの排出量が減少した。家庭起源の排出が大きかった要因は、主要燃料が植物燃料と石炭だったためである。その後天然ガス、LPGなどへの代替が進み、また、産業では集塵装置の導入が進み、それぞれ排出量は減少した。1970年代以降はディーゼル貨物車からの排出量が急増したが、自動車排ガス規制の導入を経て、排出量は大幅に減少した。その結果、2015年の排出量は未規制排出量の約10%まで削減された。

#### (b) 中国

中国の排出量は2000年代初頭から急増したが、ほとんどの物質で2015年より前にピークに達していた。SO<sub>2</sub>の排出量は2000年代前半に急増した後、2005年を境に減少に転じているが、主には第11次五カ年計画に基づいて大規模発電所に導入された排煙脱硫装置の効果によるものである。2011年から始まる第12次五カ年計画では更なる削減目標が立てられ、鉄鋼工場など大規模産業も脱硫装置の導入対象となった。その結果、燃料中硫黄分低減策による効果も含め、2015年では未規制排出量の約20%まで排出量が削減され、1990年時点とほぼ同等の排出量となった。NO<sub>x</sub>排出量は2011年まで増加傾向が続いた後、減少に転じているが、これは2011年から開始された第12次五カ年計画に基づき、大規模発電所などに対する排煙脱硝装置の導入が本格開始されたこと、自動車排ガス規制が進んだことによる。その結果、2015年の排出量は未規制排出量と比較して約43%が削減された(後出の図4(c)参照)。BCの排出量は、SO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>に比べると変化が小さいが、産業及び自動車起源の排出量の増加が対策効果によって抑えられていることが一因である。BCの排出量は2011年以降減少に転じているが、これは、主に家庭における植物燃料の消費量が減少していることが効いている。しかしながら、2011年から2015年の減少率は10%にも届いておらず、主要発生源である産業及び家庭に対する更なる発生源対策が必要である。

#### (c) インド

インドの排出量については、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、NMVOC、CO<sub>2</sub>が近年増加率が急増しており、他の物質は増加率は比較的小さいが増加傾向は続いている。SO<sub>2</sub>は、大部分が発電及び産業での石炭燃焼を起源としており、近年の増加は特に石炭火力発電所からの寄与が大きい。NO<sub>x</sub>は、発電所と自動車起源が、排出量、増加率それぞれで比較的近い時系列変化を示している。発電所はSO<sub>2</sub>と同様に石炭火力発電所からの寄与が大きく、自動車は主にはディーゼル車からの排出である。BCは家庭からの寄与分が大きく、燃料種では、一部が産業でも使用されている植物燃料からの寄与が大きい。家庭起源、植物燃料起源の排出量も増加傾向にはあるが、近年の排出量の増加傾向は、主にはディーゼル車及び産業での石炭燃焼による。インドの近年の排出構造の変化は、排出量急増時の日本や中国と類似しており、インドの大気質悪化が懸念される。実際、本研究の対象期間では、近年のアジアにおける最大の排出国は中国であったが、SO<sub>2</sub>については、その後排出量の逆転が生じたことが推定されており、アジアの排出インベントリ開発において、今後、インドの重要性が増してくると考えられる。

#### (d) 東南アジア

東南アジアも大気汚染物質の排出量は基本的に増加傾向が続いている。SO<sub>2</sub>は、近年では石炭燃焼の割合が高く、発電、産業起源が半々程度であるが、2010年以降石炭火力発電所の増加によって排出量が急増している。NO<sub>x</sub>は自動車起源の割合が大きく、ディーゼル車だけでなくガソリン車からの寄与分も大きい。近年では石炭火力発電所の排出量も増加している。BCについては、家庭、植物燃料からの排出が大きいが、近年の増加には産業での石炭燃焼、ディーゼル車が寄与しており、状況はインドと同様である。いずれの物質についても、近年の東南アジアにおける最大の排出国はインドネシアである。続く国は物質によって異なるが、タイ、フィリピン、ベトナムは全ての物質について上位5排出国の中に入っている。

### 3) 排出量逆推計結果による排出インベントリの評価

本研究では、プロジェクト初期から、排出インベントリと排出量逆推計モデルによる中国NO<sub>x</sub>排出量の比較を行った。その結果、逆推計では2008-2012年を通して微増であるのに対し、排出インベントリは期間中に20%以上の増加を示し、特に2010年から2011年にかけて増加率の差が大きかった。そこで、2010年から2011年の省別の

増加率に着目し、両者で差が大きい上位10省について排出インベントリのセクター別の増分を比較したところ、約45%は発電所からの寄与であった。中国の第12次五ヵ年計画(2011-2015年)では発電所への脱硝装置導入が計画されていたが、排出インベントリではその考慮が不十分であることが示唆された。そこで、発電所への脱硝装置の導入率について見直しを行った結果、プロジェクト中期に更新された排出インベントリでは、2011年まで排出量が増加した後、2012年以降減少に転じた。しかしながら、逆推計方式の排出量は2011年まで排出量が微増した後、減少傾向にはならず、2014年までほぼ横ばいとなった。そこで、本研究以外の排出インベントリの結果とも比較し、逆推計方式によるトレンドはやや不自然に平坦であることを指摘した。その後、排出インベントリ、排出量逆推計モデル双方の改良を行った結果、2008-2015年のトレンドは極めて良い一致を示した(後出の図4(b)参照)。このように、排出インベントリと排出量逆推計モデルの結果を比較し、その違いの要因を解析することは、双方の手法の改善につながることを示された。

### (3) 地域スケールの排出量逆推計システムの構築(サブテーマ3)

図3は、中国とインドの2005~2016年におけるNO<sub>x</sub>排出量の経年変化について、サブテーマ2による排出インベントリREAS(本研究で改良したバージョン)の結果と本サブテーマによる逆推計結果を併せて示す。NO<sub>x</sub>逆推計に関して衛星観測データを見ると、中国東部におけるNO<sub>2</sub>カラム濃度は2010年以降増加し、2014年付近より減少を始めている。中国のNO<sub>x</sub>排出量が2012~2013年頃に極大となったことを示唆している。本プロジェクト初期において、排出インベントリREAS(本研究で改良する前のバージョン)を用いたCMAQによる計算結果はREASが存在する2008年までの傾向はよく捉えているが、それ以降は必ずしも一致しているとはいえなかった。このことは逆推計により排出量を準リアルタイムで更新することの重要性を示している。逆推計を実施することにより、中国では2012年以降、NO<sub>x</sub>排出量が減少し始めることを捉えることができた(-0.8Tg/年)。2005~2011年の中国におけるNO<sub>x</sub>排出量が増加している時期においても2008年はいわゆるリーマンショックにより中国においても経済活動の伸び率が低下しているが、逆推計はこの傾向を捉えることができた。2016年のNO<sub>x</sub>排出量は概ね2009年のレベルに減少しており中国における排出抑制の効果があつたものと考えられる。この結果は最近入手できるようになった最新の排出インベントリや他のトップダウン解析による結果とも概ね一致している。2011年以降、中国全体としてNO<sub>x</sub>排出量が減少を始めた時期(2011-2016年)に関する減少率を見ると、観測データからは中国全土において減少傾向が見られるが、排出量逆推計では河南省、湖北省、安徽省で減少率が10%を超える一方で中国東北部や四川省ではNO<sub>x</sub>排出量が増加している領域も見られた。NO<sub>x</sub>排出量がピークとなる年に関しては、多くの省で2011年にNO<sub>x</sub>排出量がピークになっているが、北京や広東省では2007年が、江蘇省では2010年に排出量がピークとなっており、これらの地域では排出量の削減が他の地域よりも早いことを示唆している。これらの成果はサブテーマ2にも提供しており、サブテーマ2がNO<sub>x</sub>に関する排出係数を検討するために活用されており、テーマ1における大きな目標の一つであった各サブテーマ間の有機的な連携関係を示すものである。一方、インドにおける衛星観測から得られたNO<sub>2</sub>カラム濃度は2005年以降ほぼ単調に増加している。逆推計によって得られたNO<sub>x</sub>排出量も解析期間を通じてほぼ単調に増加している(平均0.8Tg/年)。地域別に見ても中国とは異なりインドでは時間的にも空間的にもほぼ一様に全ての領域においてNO<sub>x</sub>排出量が増加する傾向にある。この結果も他の研究成果と概ね一致している。中国におけるNO<sub>x</sub>排出量の減少傾向と、インドにおけるNO<sub>x</sub>排出量増加傾向がこのまま継続すると仮定すると、2020年代半ば頃に両者のNO<sub>x</sub>排出量がほぼ等しくなり、その後は逆転してインドが世界最大のNO<sub>x</sub>排出国になることを示している。従って、衛星観測データを使用した逆推計によって、今後も継続的にNO<sub>x</sub>排出量の推移を把握し続けることが重要である。

BC逆推計に関しては、最初に全球エアロゾル輸送モデルと地上観測によるBC地表濃度を比較したところ、2010年まではREASの排出量データを用いてモデル計算したため、観測とモデルは概ね一致していたものの、2011年以降は2010年の排出量を用いてモデル計算したため、モデルが過大評価となる傾向が見られた。そこで、2010年の両者の比較によりモデルのバイアスを算出し、2011年以降のモデルの値からこのバイアスを修正することとした。2011~2014年に関するBC排出量の逆推計を行ったところ、日中韓ほぼ全ての領域において排出量が微減となる傾向が見られた。2014年におけるBC排出量の対2010年比で見ると、日本、韓国における減少幅は1%前後と小さかったが中国では約5%となった。中国においては地域差も見られ、中国の東北部や沿岸部において他の地域より減少幅が大きい傾向が見られた。本研究で主に用いた観測データは地上観測によるもの

であり、衛星観測データの更なる活用が今後の課題と考えられる。

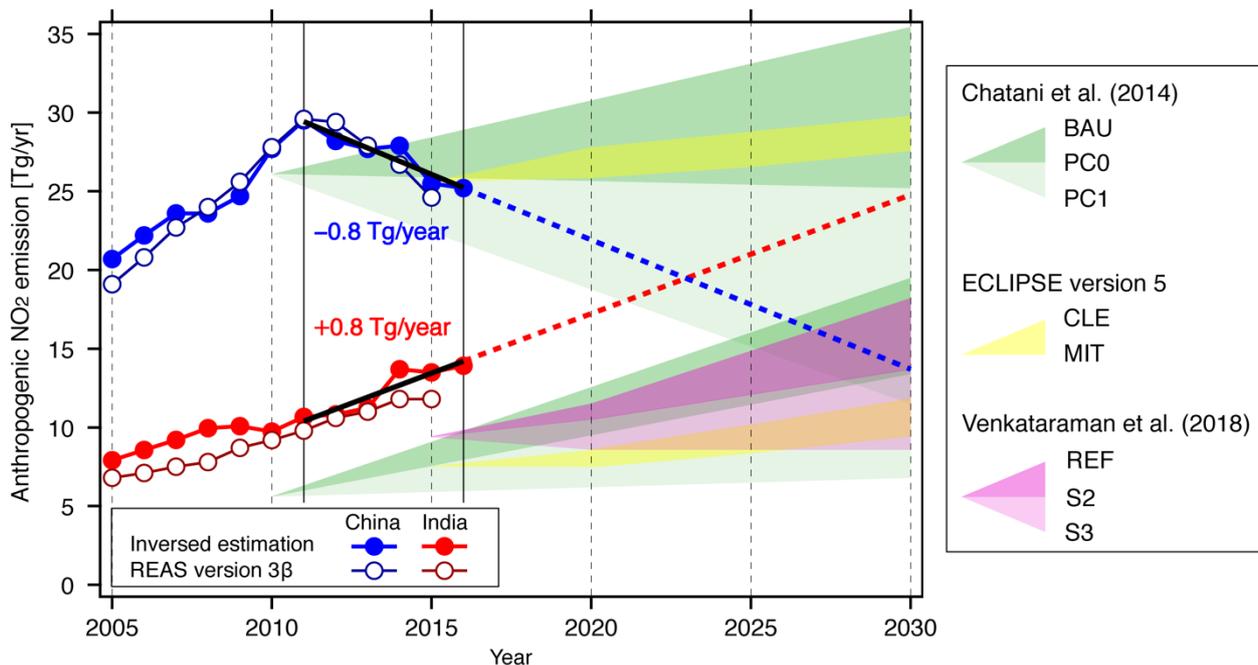


図3. 中国とインドの2005～2016年におけるNO<sub>x</sub>排出量の経年変化。サブテーマ2による排出インベントリ(REAS version 3β)の結果と本サブテーマ3による逆推計結果(Inversed estimation)。2010年以降のカラーレンジは将来予測結果(詳細は図(3)-8を参照)。

#### (4)まとめ

アジアにおけるSLCP関連物質の排出量と大気質の最近の変化並びに長期変化を把握するとともに、これまでに実施された大気汚染対策による大気環境改善効果を明らかにすることを目的として、全球・東アジア・日本国内を対象としたマルチスケール化学輸送モデルシステム、アジア域における排出インベントリシステム、衛星・地上観測を使用した排出量逆推計システムを結合したマルチスケール大気質変化評価システムを構築した。このシステムを活用して、サブテーマ連携によりアジア域における排出量と大気汚染対策効果を解析した。主な結果は以下のとおりである。

##### ①SLCP関連物質排出量の長期変化の把握(図4(a))

アジア域排出インベントリREAS(Regional Emission inventory in ASia)を拡張し、1950年から2015年までの様々なSLCP関連物質の人為起源排出量を推計した。その結果によると、(a)最近65年間にアジアにおける排出量は、SO<sub>2</sub>で約20倍、NO<sub>x</sub>で約30倍、BCでは約5倍に増加したこと、(b)中国ではいずれの物質の排出量も急速な経済成長によって2000年代初頭から急増したが、第11次・第12次五か年計画(2006～2015年)において大気汚染対策が強化された結果、SO<sub>2</sub>とNO<sub>x</sub>は減少傾向に、その他の物質も増加傾向が鈍化もしくは横ばいに転じたこと、(c)一方、東南アジアと南アジアの排出量は近年の経済発展によって、その増加率が上昇し続けていることが明らかとなった。

##### ②NO<sub>x</sub>排出量の最近の変化の解析(排出インベントリと逆推計の連携解析)(図4(b))

排出インベントリの結果を初期値として、衛星観測データに整合するように排出量を逆推計することによって、不確実性を減らし、かつ、迅速に推計する手法を開発した。例えば、中国におけるNO<sub>x</sub>排出量の最近の変化を排出インベントリと逆推計によって推計したところ、当初は両者の差異が非常に大きな状態であったが、その後、両手法の比較・改良を進め、最終的にほぼ一致する結果が得られた。また、インドについても両手法による結果は良く一致した。このような解析により、中国では大気汚染対策によりNO<sub>x</sub>排出量が減少に転じたのに対し、もう一つの排出大国であるインドでは増加傾向が加速していることが確かな知見として得られた。

##### ③大気汚染対策による排出削減効果・大気質改善効果の定量評価(図4(c,d))

中国と日本の大気汚染物質排出量について対策による削減量を推計した結果、例えば、NO<sub>x</sub>について見る

と、中国における排出量は対策を実施したことによって35%程度が削減され、特に発電所への脱硝装置の導入が排出量の減少に寄与していると推計された。一方、日本では対策による削減率は約80%と高く、特に自動車対策による効果大きいことが示された。更に、化学輸送モデルを用いて、日本と中国の大気汚染対策によるPM<sub>2.5</sub>やオゾンなどの低減効果を推計したところ、両国の対策によって日本国内の大気質が大幅に改善したことが明らかとなった。

#### ④将来排出シナリオ作成のための基準年排出量データの提供(図4(e))

S-12全体のSLCP将来排出シナリオを作成するために、REASとテーマ2のAIMのインベントリ構造を整合させた後、本研究で改良・改訂されたREAS排出量をAIMの基準年排出量として提供した。また、REASとAIMの排出基礎情報の共有化を進めた。

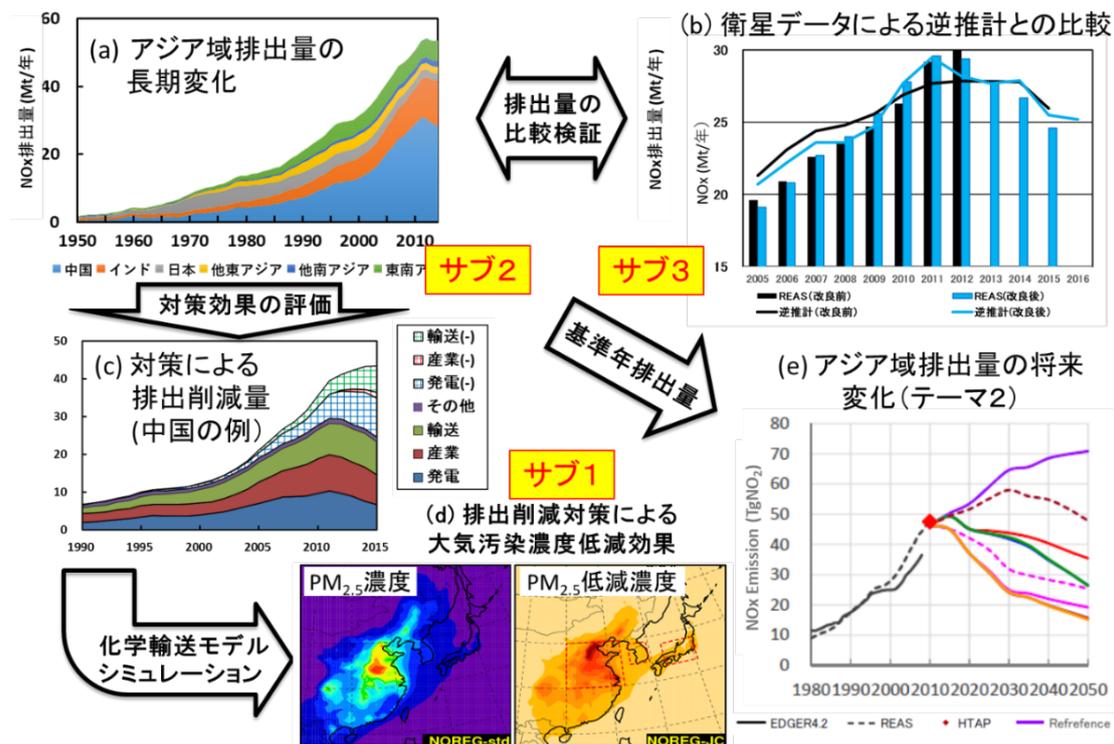


図4. サブテーマ連携によって得られた成果の概要。

## 5. 本研究により得られた主な成果

### (1) 科学的意義

- 本研究で構築した「マルチスケール大気質変化評価システム」により、大気汚染対策による効果を定量的に把握することが可能になった。
- 従来法(排出インベントリREAS)と逆推計法(衛星観測に基づく推計)を使った新しいSLCP排出インベントリの構築法を確立した。これにより、社会経済統計データの取得が難しい国を含めた領域スケールの排出インベントリを準リアルタイムで更新できるめどが立った。また、本手法を用いて、中国における近年のSLCP排出状況を調べることによって従来法との差が見出され、両手法の比較検証を通して排出インベントリを改良した。更に、この手法を使用することにより、中国では大気汚染対策によりNO<sub>x</sub>排出量が減少に転じたのに対し、もう一つの排出大国であるインドでは増加傾向が加速していることが、確かな知見として得られた。
- 本研究で開発された、アジア域をカバーした長期の排出インベントリは、これまで例を見ないものであり、既にCMIP6 (Coupled Model Intercomparison Project Phase 6)公式データとして採用された。今後、気候変動や全球・半球大気汚染の解析に使われる予定である。
- 本研究で開発したREASとテーマ2のAIMの排出インベントリの整合化を図ることにより、REASと整合的な

SLCP排出量に基づく将来排出量の予測やSLCP削減シナリオの作成が可能になり、アジア域のSLCP関連物質による大気環境影響を過去から未来までシームレスに解析できる手法が構築された。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

- 環境省が主催する「微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)発生源寄与割合推計に関する検討会」において、PM<sub>2.5</sub>の発生源寄与を推計するにあたり、本研究において改良された化学輸送モデルが活用されるとともに、本推進費研究で実施したPM<sub>2.5</sub>濃度のモデル再現性評価結果が参考情報として活用された。
- 環境省が主催する「光化学オキシダント調査検討会」ならびに「光化学オキシダントシミュレーションによる解析作業部会」において、本研究で得られたアジア域の人為起源排出インベントリや化学輸送モデルの長期計算結果に関する知見・情報を提供するとともに、解析作業部会に本研究で作成したデータセットの提供やモデル計算の指導を行った。
- 環境省の越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成25~29年度)において、本研究の成果が使用された(5.2.5 アジア域排出インベントリシステムの開発、排出量変化分析)。「越境大気汚染・酸性雨対策検討会」における長期モニタリングデータの解析結果の解釈やモニタリング計画の策定にあたって、本研究で得られた日本の地表オゾンやPM<sub>2.5</sub>の長期変動に関する知見・情報が活用された。
- 環境省と国立環境研究所による大気汚染予測システムの高度化業務において、本研究成果である領域大気質モデリングの技術的知見を提供し、大気汚染予測システム(VENUS)の改良に貢献した。
- 日中韓三カ国大気汚染に関する政策対話(TPDAP)のワーキンググループIIにおいて、本研究の成果であるオゾンやPM<sub>2.5</sub>等の長期変動に関する解析結果や排出インベントリREASの逆推計に基づく改良について、日本における大気汚染に関する数値モデルや排出インベントリに関する研究進捗として報告した。
- 本研究の成果である日本のBC排出量推計結果が、平成29年2月に開催されたCCAC Scientific Advisory Panel Experts Workshopでの発表資料に使用された。また、平成29年度に開催された、CCAC高級担当者会合の資料作成のために同データが提供された。
- 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)が主催し、EANET参加国の実務担当者及びその管理者を対象として2017年11月に開催された、排出インベントリトレーニングワークショップにおいて本研究の成果が活用された。また、平成30年度に環境省とタイ公害管理局とで立ち上げられた、日タイ・クリーン・エア・パートナーシップの公開ワークショップ、プロジェクト会合などにおいて、本研究で得られたアジア域排出インベントリの開発手法、活用事例、排出量逆推計モデルを用いた排出インベントリの評価などに関する知見・情報を提供した。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

- 排出インベントリについては、現在、環境省が構築中のNational inventoryと本研究で開発したREASの双方を用いることにより、越境大気汚染と国内汚染の複合評価に活用することが可能となった。また、マルチスケール化学輸送モデルを使用することによって、我が国のオゾンやPM<sub>2.5</sub>濃度に対する、アジア以外の全球汚染、アジアからの越境汚染、ならびに国内汚染の各々の寄与を評価することが可能になった。
- 本研究で開発した地上・衛星データからの排出量逆推計手法を参考にして、国内の排出インベントリの検証・改良を進める基盤ができた。また、社会経済活動と環境対策の変化が激しいアジア域においては、迅速に排出インベントリの更新を行う必要があり、衛星データに基づく排出インベントリ構築をルーチン化する基盤ができた。
- 本研究では、我が国において過去に実施された大気環境対策による排出量低減効果と大気質改善効果を初めて評価し、その効果が大いことを定量的に示した。今後、大気環境行政を推進する上で、このような形で社会に対し、わかりやすく政策による効果を示していくことが重要であり、EBPM(Evidence-Based Policy Making) に活用しうる。
- 本研究で構築したアジアスケールの大気環境対策評価手法を参考にして、国内の地域大気汚染対策効果を評価するための計算システムを構築することが可能となった。

## 6. 研究成果の主な発表状況

### (1) 主な誌上発表

#### <査読付き論文>

- 1) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, T. TAKEMURA, M. KAJINO, H. MATSUI, A. TAKAMI, S. HATAKEYAM, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU AND T. OHARA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120 (12), 6247–6270 (2015)  
An evaluation of simulated sulfate over East Asia through global model inter-comparison
- 2) S. SAHU, T. OHARA, G. BEIG, J. KUROKAWA, T. NAGASHIMA: *Environ. Res. Lett.*, 10, doi:10.1088/1748-9326/10/9/095002 (2015)  
Rising critical emission of air pollutants from renewable biomass based cogeneration from the sugar industry in India
- 3) 弓本桂也、鵜野伊津志、板橋秀一、栗林正俊、宮崎和幸: *大気環境学会誌*、50、199–206 (2015)  
逆推計手法を利用したNO<sub>x</sub>排出量インベントリの速報アップデート
- 4) Y. MORINO, K. UEDA, A. TAKAMI, T. NAGASHIMA, K. TANABE, K. SATO, T. NOGUCHI, T. ARIGA, K. MATSUHASHI, and T. OHARA: *Environ. Sci. Technol.*, 51, 14273–14282 (2017)  
Sensitivities of simulated source contributions and health impacts of PM<sub>2.5</sub> to aerosol models
- 5) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, H. YASHIRO, Y. SATO, K. SUZUKI, J. UCHIDA, S. MISAWA, R. YONEMOTO, T. T. N. TRIEU, H. TOMITA, and M. SATOH: IN K. VADREVU, T. OHARA, C. JUSTICE (eds)  
*Land-Atmospheric Research Applications in South and Southeast Asia. Springer Remote Sensing/Photogrammetry. Springer, Cham, 277–302(2018)*  
Multi-scale simulations of atmospheric pollutants using a non-hydrostatic icosahedral atmospheric model
- 6) K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, M. YOSHIDA, M. KIKUCHI, T. M. NAGAO, H. MURAKAMI, and T. MAKI: *J. Meteor. Soc. Japan*. 96B, 133–149 (2018)  
Assimilation and forecasting experiment for heavy Siberian wildfire smoke in May 2016 with Himawari-8 aerosol optical thickness

### (2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) T. Ohara: International Meeting on Land Use and Emissions in South/Southeast Asia, Ho Chi Minh City, Vietnam (2016)  
S-12 project and Regional Emission Inventory in Asia (REAS)
- 2) T. Nagashima: 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan (2018)  
Insufficient representation of summertime surface ozone minimum in the East Asian maritime region by chemical transport models
- 3) D. Goto, Y. Sato, H. Yashiro, K. Suzuki, and T. Nakajima: 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan (2018)  
Global aerosol climatology with 14 km grid spacing using a non-hydrostatic atmospheric transport model
- 4) T. Maki, T. Y. Tanaka, N. Oshima, J. Kurokawa, K. Yumimoto, K. Kondo, and T. Ohara: 2018 American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, Washington D.C., USA (2018)  
Construction of Black Carbon emission inverse system for east Asia
- 5) J. Kurokawa, K. Yumimoto, S. Itahashi, T. Nagashima, T. Maki, and T. Ohara: 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan (2018)  
Historical trends of air pollutant emissions in Asia: Development of Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3

## 7. 研究者略歴

### 研究代表者

大原 利眞

北海道大学大学院工学研究科博士後期課程修了、工学博士、静岡大学工学部教授、現在、国立研究開発法人国立環境研究所企画部フェロー

### 研究分担者

#### 1) 永島 達也

東京大学大学院理学系研究科博士課程修了、博士(理学)、現在、国立環境研究所地域環境研究センター大気環境モデリング研究室主任研究員

#### 2) 清水 厚

京都大学大学院理学研究科博士後期課程修了、博士(理学)、現在、国立環境研究所地域環境研究センター広域大気環境研究室主任研究員

#### 3) 黒川 純一

東京大学大学院理学系研究科修士課程修了、九州大学大学院総合理工学府より学位取得、理学博士、現在、一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター上席研究員

#### 4) 眞木 貴史

京都大学理学部卒業、理学士、気象庁地球環境・海洋部環境気象管理官付化学輸送モデル開発推進官、現在、気象研究所全球大気海洋研究部第三研究室長

## II. 成果の詳細

### II-1 マルチスケール大気質変化評価システムの構築と変化事例の解析

国立研究開発法人国立環境研究所

企画部		大原 利真
地域環境研究センター		高見 昭憲
地域環境研究センター	大気環境モデリング研究室	永島 達也・森野 悠・菅田 誠治・ 五藤 大輔
地域環境研究センター	広域大気環境研究室	清水 厚
環境計測研究センター		杉本 伸夫
環境計測研究センター	遠隔計測研究室	日暮 明子

平成26～30年度累計予算額：114,872千円

(うち平成26年度：24,905千円、平成27年度：23,660千円、平成28年度：22,477千円、平成29年度：22,477千円、平成30年度：21,353千円)

累計予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

東アジア並びに日本国内における広域スケールの大気質変化を解析可能なマルチスケール化学輸送モデルを構築し、サブテーマ2、3と連携して、大気質の長期変化及び大気汚染対策による大気質改善効果を定量的に解析した。具体的には、マルチスケール化学輸送モデルを用いて1960年～2010年の大気質変化を再現する長期実験を実施するため、サブテーマ2で作成したアジア域における大気汚染物質排出量データに加えて、過去半世紀における全球の排出量データを構築した上で、50年間に及ぶ長期再現実験を実施した。本実験で計算された大気汚染濃度を日本の大気常時測定局データで検証した結果、オゾン ( $O_3$ ) や浮遊粒子状物質 (SPM)、二酸化硫黄 ( $SO_2$ )、窒素酸化物 ( $NO_x$ ) などの長期変化の特徴が再現されていることを確認した。その上で、国内外の対策による大気質の改善効果を評価するため、日本と中国それぞれにおける大気汚染対策が過去に実施されなかったと仮定した場合の排出量データ (サブテーマ2から提供) を用いた化学輸送モデル実験を行い、この結果と対策を考慮したモデル実験の結果とを比較した。その結果、日本と中国の大気汚染対策によって日本国内の $PM_{2.5}$ が減少し、また、 $O_3$  (日最高8時間平均濃度の年間99パーセンタイル値) についても日本の対策によって国内の濃度が低下したことが明らかとなった。また、観測データ等にもとにした過去のアジア域における大気汚染の変化事例解析として、ライダーデータと国内地上大気汚染データ等を用いた週末効果の検出、衛星観測データ (光学的厚さ、 $SO_2$ 、 $NO_2$ ) に基づく広域大気汚染の中長期変動解析と化学輸送モデルとの比較、ライダーデータに基づく球形粒子の高度別消散係数の中長期変動解析、大気汚染変化事例の情報収集と評価を行った。

#### [キーワード]

化学輸送モデル、大気質再現実験、大気質長期変化、対策効果評価、東アジア

#### 1. はじめに

中国やインドをはじめとするアジアでは、急速な経済成長に伴って燃料消費量が増大し、1980年代後半から $NO_x$ や $SO_2$ 、黒色炭素 (BC) などの大気汚染物質の排出量が増加している。その結果、 $PM_{2.5}$ や $O_3$ などによる大気汚染が発生し、人の健康や食糧生産、生態系に大きな影響を及ぼしているばかりでなく、地域気候システムにも複雑な変化を引き起こしていると考えられる。一方、中国では2010年以降、大気

汚染対策が進み、その結果として大気汚染物質の排出量が減少している物質もある（Ⅱ－２におけるサブテーマ２の結果を参照）。そのため、東アジアの大気汚染構造や日本国内への越境汚染影響は急激に変化していると考えられ、その変化を把握することが急務となっている。また、これまでの大気汚染対策による削減対策効果を定量的に示すことは、これからのSLCP対策を検討する上で重要である。

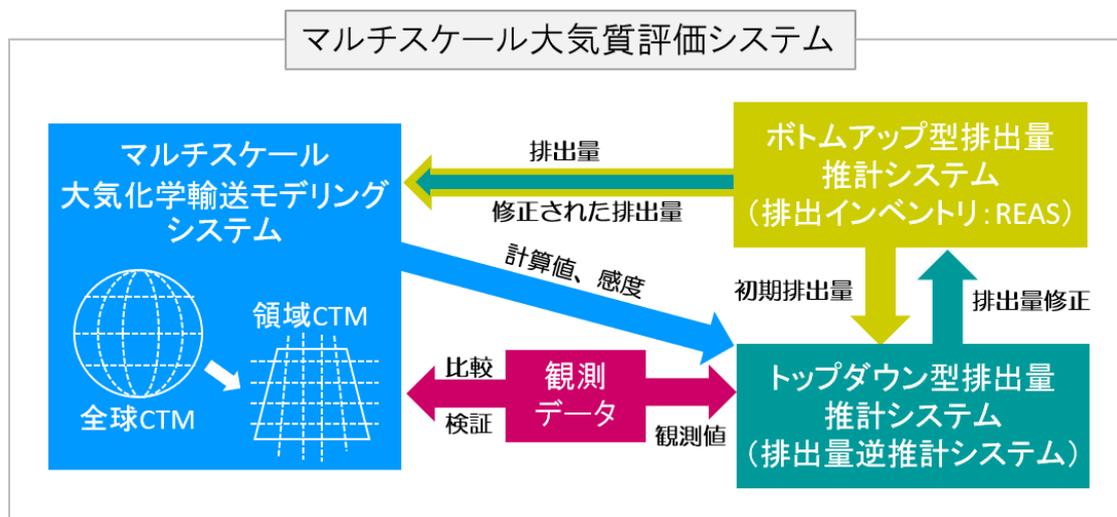
## 2. 研究開発目的

本サブテーマでは、全球・領域化学輸送モデル（CTM）をもとに、都市～アジアスケールの大気質変換事例の解析や対策効果の事前・事後評価が可能なマルチスケール化学輸送モデルシステムを構築し、過去の大気質変換事例に適用して、排出量変化と大気質変化の定量関係を評価する。更に、サブテーマ２と３で構築される排出インベントリと排出量逆推計システムを統合して「マルチスケール大気質（変化）評価システム」を構築し、このシステムを用いて、アジア域における過去の長期的な大気質変化や大気汚染対策効果を定量的に分析することによりSLCP対策の有効性を定量的に明らかにすることを目的とする。

## 3. 研究開発方法

### （１）マルチスケール化学輸送モデルシステムの構築と大気汚染対策効果の解析

本課題で構築する「マルチスケール大気質評価システム」は、大気汚染物質の濃度分布を計算する「マルチスケール大気化学輸送モデリングシステム」と、大気汚染物質の排出量を推計する二種類の異なるシステム、すなわち「ボトムアップ型排出量推計システム（排出インベントリ推計システム）」と「トップダウン型排出量推計システム（排出量逆推計システム）」により構成される。これら3つのシステムは、互いに入出力データおよび人工衛星データを始めとする観測データを交換・参照しあうことによって、観測データに整合的でより確からしい大気汚染物質の時空間濃度分布とその時の大気汚染物質の排出量を推計できるように構成されている（図(1)-1）。このうち、本サブテーマでは、マルチスケール大気化学輸送モデリングシステムの構築を行った。

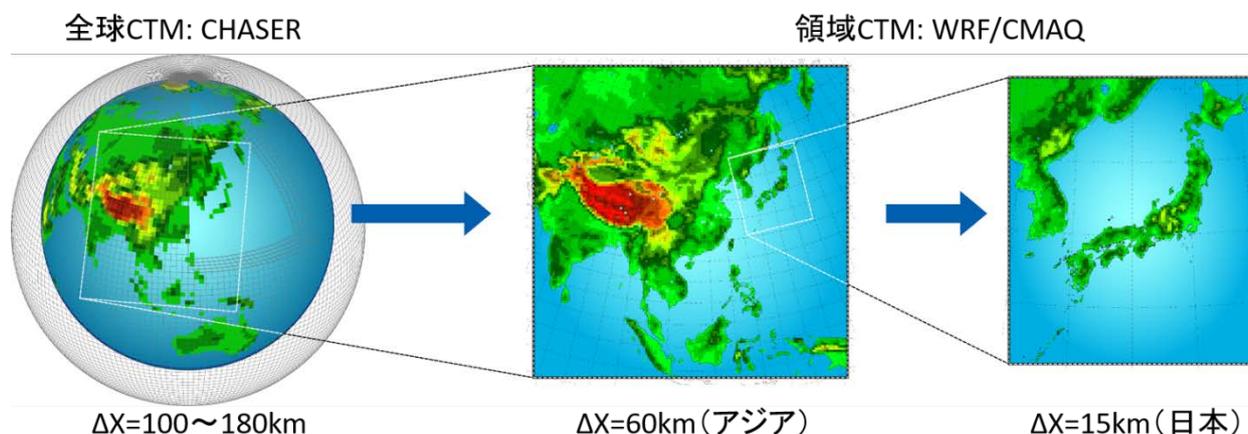


図(1)-1 マルチスケール大気質評価システムの概念図。

### 1) マルチスケール大気化学輸送モデリングシステムの概要

このモデリングシステムでは、全球規模から日本国内までの多様な（マルチ）空間スケールにおける大気質の変化を解析するため、全球規模と領域規模の大気化学輸送モデル（Chemical Transport Model: CTM）を組み合わせる。具体的には、全球規模のCTMであるCHASER（CHemical AGCM for Study of atmospheric Environment and Radiative forcing）<sup>1,2)</sup>モデルで計算された大気汚染物質の3

次元データを、領域規模のCTMであるCMAQ (Community Multi-scale Air Quality model)<sup>3)</sup>の初期条件や境界条件として与えることにより、全球から半球規模の大規模な大気汚染物質の動きがアジアなどの領域規模、更には日本国内などの地域規模にまで反映されるようになっている、マルチモデル-マルチスケールCTMシステムである(図(1)-2)。こうしたシステムの使用は、大気汚染物質の中でもO<sub>3</sub>や一酸化炭素(CO)など、大気中に存在する時間が比較的長い物質の分布を計算する場合にとりわけ重要となる。推進費S-12の下では、同じく全球スケールから地域スケールまでの大気汚染物質濃度を一つのモデルでシームレスに計算することが可能なCTM (NICAM-Chem)<sup>4)</sup>の開発も進められたが、このモデルは非静力学正二十面体大気モデルNICAM (Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model)<sup>5,6)</sup>にCHASERの大気化学計算モジュール等が移植されたものであり、CMAQに比べると考慮される大気化学計算がより簡便なものとなっている。本課題で構築したマルチモデル-マルチスケールCTMシステムは、大気汚染物質濃度の変動に対する大気化学的な解析により適している一方、NICAM-Chemは気候と大気化学との相互作用やエアロゾルと雲の相互作用などの解析に適しているという違いがある。以下に本課題で用いたCHASER及びCMAQの概要をまとめた。



図(1)-2 構築されたマルチモデル-マルチスケールCTMシステム。

#### (a) 全球規模CTM : CHASER

今回用いた全球規模CTMであるCHASERは、推進費S-12の先行研究プロジェクトであった推進費S-7において開発されたバージョンを元にしており、全球気候モデルMIROC (Model for Interdisciplinary Research on Climate)の大気大循環部分をベースとして、対流圏大気中の主要なガス状及び粒子状化学物質の3次元分布を計算することが出来る。粒子状物質の計算に関しては、同じくMIROCをベースとして開発されたエアロゾル輸送モデルであるSPRINTARS (Spectral, Radiation-Transport Model for Aerosol Species)<sup>7,8)</sup>のスキームを用いている。CHASERでは、NO<sub>x</sub>、硝酸(HNO<sub>3</sub>)、O<sub>3</sub>、水素酸化物(HO<sub>x</sub>)、メタン(CH<sub>4</sub>)、CO、非メタン炭化水素(NMHC)など63種のガス状化学種の大気濃度を154の光化学反応を考慮して計算する。また、粒子状物質としては、硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、硝酸塩(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、アンモニウム(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)、黒色炭素(BC)、有機炭素(OC)、土壌ダスト、海塩粒子の大気濃度を計算することができ、OCに関しては一次のOCに加えて、比較的簡便な手法(2-product model)を用いて植物起源のモノテルペン及びイソプレンから二次的に生成される二次有機エアロゾル(SOA: Secondary Organic Aerosol)の計算も可能となっている。また、BCが大気中で硫酸や有機ガス成分などの水溶性物質によって被覆されることで、疎水性から親水性に変化するプロセスも取り入れられている。化学成分濃度の計算に必要な気象場(風速や気温)は、計算結果を実際の観測に近づけるため、気象の再解析データに同化して用いる。同化に用いる再解析データとしては、米国環境予測センター(National Centers for Environmental Prediction: NCEP)と米国大気研究センター(National Center for Atmospheric Research: NCAR)による全球客観解析データ(NCEP/NCAR Reanalysis 1)<sup>9)</sup>および気象庁55年長期再解

析データ (JRA-55)<sup>10)</sup> を使用した。CHASERの水平分解能は約210km (T63) ないし約120km (T106) とし、鉛直には地表から上空約40kmまでに32層を配している。この高度範囲は対流圏だけでなく成層圏をも含むが、今回用いたCHASERでは成層圏内での大気化学反応は計算せず、主要な物質 (O<sub>3</sub>、NO<sub>x</sub>、HNO<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) に関しては、成層圏の詳細な大気化学を含んだCTMによって計算された濃度<sup>11)</sup>に同化している

### (b) 領域規模CTM : CMAQ

CMAQは、米国環境保護庁 (Environmental Protection Agency : EPA) が中心となって開発している領域スケールのCTMである。本サブテーマにおいては、研究期間の前半で、これまでに研究実績のあるv4.7.1のCMAQを使用し、その後は主にPM<sub>2.5</sub>の再現性の向上を図る目的でv5.0.2のCMAQを使用した。v4.7.1においては、化学反応計算にSAPRC-99 (Statewide Air Pollution Research Center, Version99)<sup>12)</sup> を選択し、エアロゾルの計算にはAER05スキームを使用した。AER05で計算が可能なエアロゾルの成分は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、BC、OC、ナトリウムイオン (Na<sup>+</sup>)、塩化物イオン (Cl<sup>-</sup>)、およびその他の一次粒子である。無機成分の気相と粒子間の平衡は熱力学平衡モデルISORROPIA<sup>13)</sup> によって計算され、SOAについては、芳香族化合物やイソプレン、モノテルペン等からの生成が考慮されている。NaClを含む海塩粒子の発生量は気象場に応じてモデル内で算出される。一方v5.0.2では、化学反応計算にCB05 (Carbon Bond 2005)<sup>14)</sup> を選択し、エアロゾルの計算には、PM<sub>2.5</sub>濃度の再現性の向上させる方策の一環として、SOAの計算に揮発性の低い炭化水素の酸化過程や一次のOCの揮発などを考慮できる揮発性基底関数 (VBS : Volatility Basis Set) モデル<sup>15,16)</sup> が導入されたAER06VBSスキームを用いた。いずれのエアロゾル計算スキームにおいても、エアロゾル粒子は粒径別に、エイトケンモード、集積モード、粗大モードの3つに分けて取り扱われており、観測データとの比較の際にはエイトケンモードと集積モードの質量濃度の和をもってPM<sub>2.5</sub>濃度とした。CMAQに入力する気象場のデータは、領域気象モデルであるWRF (Weather Research and Forecasting model)<sup>17)</sup> を用いて計算した。CHASERの場合と同様、WRFが計算する気象場と実際の観測との整合性を担保するため、NCEPによる全球客観解析データ (FNL (Final) Operational Global Analysis data, ds083.2) やJRA-55を用いて、モデル計算領域内の気象場を3D grid nudging を用いて同化している。水平分解能はWRFとCMAQで同じ設定とした。図(1)-2に示したように、今回構築したシステムでは、アジアのほぼ全域を含むドメイン1 (D1 : 水平分解能60km) と日本全域を含むドメイン2 (D2 : 水平分解能15km) という二つの計算領域 (ドメイン) を設定し、D1ではCHASERの計算結果を、D2ではD1の計算結果をそれぞれ境界条件として用いる。鉛直方向には、D1、D2ともに地表から上空約16kmまでに34層を設けた。

## 2) 近年の大気質再現実験と変件事例の解析

構築されたマルチスケール大気化学輸送モデリングシステムを用いて、近年のアジアにおける大気質の変化を再現する実験を行った。この実験の結果を各種の観測データと比較することにより、実際に観測された大気汚染物質の変件事例がモデルによってどのように再現されるのかを確認し、現状での同モデリングシステムの性能を把握するとともに、再現性の向上に向けた検討を行った。モデルによる再現性検証の対象となる大気質の変動事例は、比較対象として利用できる観測データおよびモデルの実験設定 (計算期間、ドメイン設定等) に大きく規定される。特に大気質変動の主要な要因となる大気汚染物質の排出量として、どのようなデータを用いるかはその大きな規定要因である。そのため本サブテーマでは、大気汚染物質の多様な発生源 (人為起源、バイオマス燃焼起源、植生起源、火山起源) からの排出量データの検討を行い、次節3) での使用も考慮しつつ、大気質再現計算として使用する計算期間を2000年から2012年とした (表(1)-1)。まず人為起源の排出量データとしては、推進費S-7において開発され、アジアにおける代表的な排出量データとして評価されているREASv2.1<sup>18)</sup>を採用した。ただし、REASv2.1は2000年から2008年が推計対象期間であるため、日本の排出量に関しては、2011年までの推計値が利用可能なJapan Auto-Oil Program (JATOP) Emission Inventory-Data Base (JEI-DB)<sup>19,20)</sup>を用いた (図(1)-3)。これには、日本における固定発生源対策、自動車排出ガス規制、VOC蒸発発生源対策などによる排出量の長期変化、日本国内の休日と平日による自動車からの排出量の違いが考慮されている。JEI-DBによる日本国内の大気汚染物質排出量に関して、その2000年の値に対する比を示した図(1)-

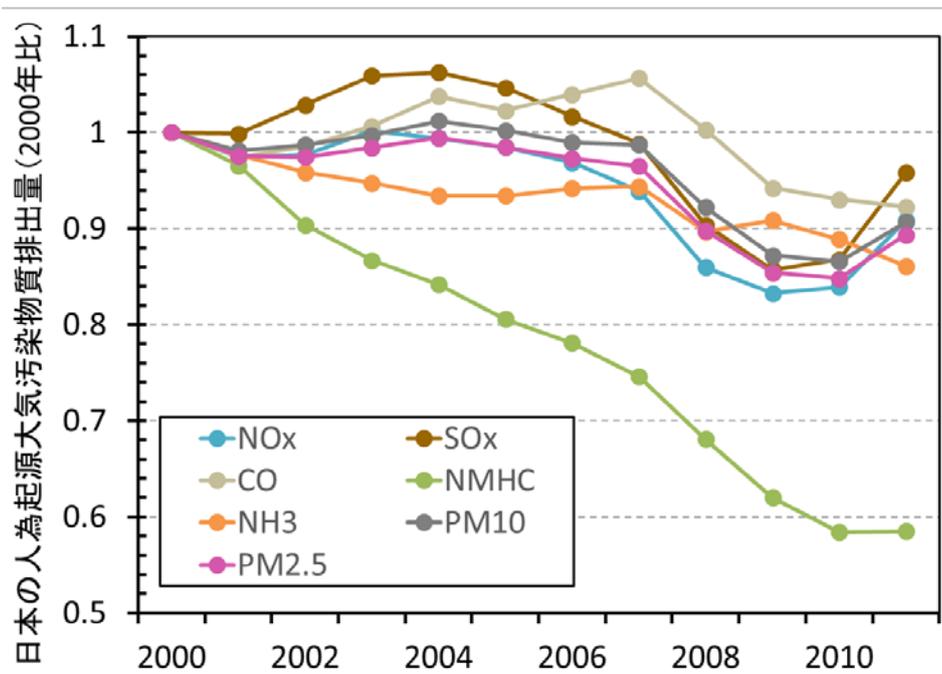
3からは、NMHCの排出量に著しい減少がみられる一方、NO<sub>x</sub>排出量の減少率はそれに比べて少なく、2010年から2011年にかけては逆に増加を示している（主に電気業からの排出増加による）ことが分かる。加えてREASv2.1では、中国における中長期の大気汚染対策に伴う排出係数の変化や春節に伴う産業・社会活動等の変動が含まれている。なお、日本以外の人為起源排出量の2009年以降は2008年値を繰り返し用いることとした。バイオマス燃焼による排出量と植生からのNMVOC排出量については、それぞれ、GFED v3.1<sup>21)</sup>とMEGAN v2.1<sup>22)</sup>を用い、後者においてはWRFによる気象場の計算値を用いて排出量の推定を行った。火山噴火によるSO<sub>2</sub>の放出量は、AEROCOM<sup>23)</sup>および気象庁のデータ<sup>24)</sup>を用いた。

計算された大気汚染物質濃度は、計算期間における観測が充実している日本を中心として観測データとの比較を行った。比較には主に大気汚染常時監視測定局データ（Atmospheric Environmental Regional Observation System：AEROS）を用い、これに加えて国立環境研究所による沖縄・辺戸岬での長期観測、関連する推進費研究（5B-1101等）で観測されたPM<sub>2.5</sub>の成分データ、国立環境研究所などが展開しているライダーデータ、人工衛星データ等を用いた。

表(1)-1 大気質再現実験に用いた大気汚染物質排出量データ。

		2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012
人為起源	アジア	REASv1.2									※2008			
	日本	JEI-DB												2011
バイオマス燃焼		GFEDv3.1												2011
植生起源(NMHC)		MEGANv2.10の手法を用いて独自推計												
火山(SO <sub>2</sub> )	アジア	AEROCOM									2009			
	日本	三宅島	浅間山				阿蘇山				(気象庁の推計)			

※2009年以降は2008年値を繰り返し用いている（表中の“2011”、“2009”も同様の意味）



図(1)-3 日本の人為起源大気汚染物質排出量（JEI-DB）の2000年比推移。

### 3) マルチスケール大気質変化評価システムによる大気汚染物質再現性向上の検討

本課題で構築したマルチスケール大気質変化評価システムでは、CTMによる計算結果、排出インベン

トリ推計システムからの初期推定排出量、人工衛星等の観測データの三つを排出量逆推計システムに入力して、より観測データに整合的な修正排出量の推定が可能となるように構成されている。ただし、このようなシステムの構築と運用はこれまでに我が国で実施されたことはなく、実際に修正された排出量を用いることでCTMの再現性が向上するのかどうかを検証する必要がある。本サブテーマでは、このためのCTM計算を実行して排出量逆推計システムに入力するデータを提供するほか、修正排出量を用いたCTM計算を行い、排出量の修正が大気汚染物質濃度の計算値に与える影響を検証した。

サブテーマ3が開発を進める排出量逆推計システムでは、ボトムアップ型の排出インベントリ推計システムによる排出量が存在する期間における排出量の修正を行うだけでなく、推計に必要な各種の社会経済統計情報がまだ公開されておらず、ボトムアップ型の排出インベントリが提供されていない直近の期間における排出量の推計（排出量の即時的アップデート）も目的の一つとしている。このため、本サブテーマでは、前節2）の2000年から2012年までの計算を2015年まで延長したものと、同期間に関して大気汚染物質の排出量に一定の摂動（20%増加）を与えた計算の二種類の計算を実施して、排出量逆推計システムに提供した。なお、今回、逆推計の対象とするのはNO<sub>x</sub>排出量である（逆推計の詳細に関してはII-3参照）。排出量逆推計システムによって推計された、2005年から2015年に関するNO<sub>x</sub>の修正排出量を用いて、CMAQのD1によるCTM実験を行った。

#### 4) 東アジア大気質の長期再現実験と排出削減対策効果の評価

観測された大気質変化事例として、日本における大気汚染物質の過去数十年にわたる長期間のトレンドを解析の対象とするため、本課題のサブテーマ2で開発されたアジアの人為起源大気汚染物質のヒストリカル排出インベントリ（REASv2.2）を用いたアジアの大気質再現実験（標準実験）を行った。この排出量の長期データは、1950年から2010年の期間を対象に推計されたものであり、対象地域として東、東南、南アジアを含む。また、サブテーマ2ではこの長期排出量推計データに加えて、同期間内で日本および中国で実施された大気汚染物質に対する排出削減対策が行われなかったと仮定した場合の排出量推計も行われている。この排出削減対策を考慮しない（排出削減対策未考慮）排出量データには、1) 日本における大気汚染物質の排出削減対策だけを考慮しない場合、2) 中国における削減対策だけ考慮しない場合、3) 日本と中国両方における削減対策を考慮しない場合の3通りの推計があり、それぞれに応じた3種の感度実験を実行した。標準実験と3種の感度実験の結果を比較することによって、日本と中国でこれまでに行われてきた排出削減対策の効果を評価した。なお、ここで考慮されている排出削減対策は表(1)-2のとおりである。REASv2.2および排出削減対策未考慮データについてはII-2に詳述されているが、排出削減対策が無かったとした場合、2000年代後半における大気汚染物質の排出量は、日本では実際の2倍から8倍程度であり、中国では最大で2倍程度になっていたと推計された。なお、計算時間および計算資源の制約から、REASv2.2を用いた大気質の長期再現実験及び感度実験には、CHASER（T106（水平分解能約120km））を用いた。

CHASERによる長期再現実験を行うため、REASv2.2の対象であるアジア域以外における人為起源の大気汚染物質排出量、バイオマス燃焼起源の排出量、火山起源のSO<sub>2</sub>排出量を加えて、全球の大気汚染ヒストリカル排出インベントリを構築した。用いた排出量データを表(1)-3にまとめた。

表(1)-2 考慮された主な排出削減対策。

物質	排出削減対策
SO <sub>2</sub>	排煙脱硫装置・低硫黄化燃料の使用
NO <sub>x</sub>	排煙脱硝装置・低NO <sub>x</sub> バーナーの使用、自動車排ガス規制
CO	自動車排ガス規制
PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub> , BC, OC	集塵装置の使用、自動車排ガス規制
NMVOc	自動車排ガス規制、自動車・固定発生源の蒸発発生規制（日本）

表(1)-3 長期再現実験に用いた大気汚染物質排出量データ。

		1960-1969	1970-2010	
人為起源	アジア	REASv2.2		
	アジア以外	MACCity <sup>25)</sup>	EDGARv3.4.1 (NMHC以外) <sup>26)</sup> EDGARv4.3.2 (NMHC) <sup>27)</sup>	
		1960-1996	1997-2010	
バイオマス燃焼		MACCity	GFEDv4.1s <sup>28)</sup>	
		1960-1978	1979-2009	2010
火山 (SO <sub>2</sub> )		1979	AEROCOM	2009

## (2) 観測データ等による大気質変化の解析

### 1) ライダーデータと地上大気汚染データ等を用いた週末効果の検出

社会活動の変化に起因する大気質変動として人為起源エアロゾルの週内変動に着目し、ライダーデータを用いて解析するために、国立環境研究所などが展開しているアジア域ライダーネットワークのうち国内数地点に関して、偏光解消度を利用して黄砂の影響を除いたエアロゾル消散係数（球形粒子消散係数）を晴天時は高度6km以下、曇天時は雲底以下の範囲で推定し、観測日を月から金および土日の2種類に分類して、それぞれについて2013-2014年の2年分データを用いて24時間コンポジットの時間高度断面を作成した。なお、ライダーデータ処理方法の詳細についてはShimizu et al. (2016)<sup>29)</sup>に解説されている。同様の目的で、大気環境常時監視データについて確定値(2012年度以前)または速報値(2013年度)からPM<sub>2.5</sub>日平均値を作成し、北海道・東北・関東・北陸・中部・近畿・中国・四国・九州・沖縄の10地域における全データを用いて一般局・自排局別に曜日ごとの累積頻度分布を決定した。そのうち特異的なイベントの影響を除くために60パーセンタイル値について、地域別・年度別・一般局/自排局別に週内変動がどのように見られるかを可視化した。

### 2) 衛星観測データに基づく広域大気汚染の中長期変動解析と化学輸送モデルとの比較

東アジア域におけるエアロゾルおよび前駆物質の中長期変動を調べるために人工衛星データの解析を行った。利用したセンサーはエアロゾルに関してTerra搭載のMODIS、SO<sub>2</sub>/NO<sub>2</sub>についてAura搭載のOMIで、いずれもNASAが公開しているレベル3データをダウンロードして処理した。まず、MODISについては、光学的厚さ(AOD)と微小粒子割合の2パラメータについて対象地域における月平均値を作成し、それらの積を「微小粒子光学的厚さ」として大気汚染性粒子の目安とし(これに含まれない粗大粒子は黄砂や海塩と見なす)、2000年から2015年の変動を調べた。一方、前駆物質のSO<sub>2</sub>/NO<sub>2</sub>についてはOMIによって得られた対流圏内(NO<sub>2</sub>)または境界層内(SO<sub>2</sub>)のカラム濃度(NO<sub>2</sub>についてはクラウドスクリーニングあり)の月平均値を2011年から2015年で求めた。いずれの場合にも対象地域としては4領域(A:中国北部113-122E, 35-42N・B:同中部113-122E, 28-35N・C:同南部107-120E, 22-26N・D:日本周辺130-142E, 32-42N)を取り上げた。さらにAODに関しては化学輸送モデルWRF/CMAQによる計算結果から硫酸塩・硝酸塩・有機エアロゾル・黒色炭素・PM<sub>2.5</sub>の光学特性を計算して、それらの合計の光学的厚さを導出し、衛星観測結果と比較した。以上の計算において対象とする波長は全て550nmである。

### 3) ライダーデータに基づく球形粒子の高度別消散係数の中長期変動解析

球形粒子の中長期の変動について、AODの鉛直分布を示す消散係数(時間と高度の関数)を国立環境研究所が展開するアジア域ライダーネットワークによる観測結果から推定し、大気境界層内と自由対流圏内とで変動傾向に差異があるかどうかを調査した。まず、月総時間の約1/3にあたる1000時間分以上の有効観測(雨天・欠測・低空の雲・霧等がない時間帯)が存在する月について高度3km以下、および高度3-6kmの2高度帯について球形粒子消散係数を積分し、月平均値を導出した。さらにこの結果を3ヶ月毎(春:3-5月、夏:6-8月、秋:9-11月、冬:12-2月)に分類した上で時間の1次関数でフィッティングし、

2009年から2018年にかけてのトレンドを推定した。この際、ライダー観測地点を西日本(辺戸・福江・長崎・福岡・松江・大阪)と東日本(富山・新潟・東京・つくば・仙台・札幌)の2地域に分類し、それぞれ全データを利用して地域的特徴を調べた。

#### 4) アジア域における大気汚染変化事例の情報収集と評価

海外における社会的イベントに関連した大気汚染状況の変化について調査するために、中国やインドなどを対象に、外国におけるイベントや規制時における大気観測データを収集した。観測データは基本的にはすでに査読付き論文として発表されているものを対象とした。

中国では2008年夏季到北京オリンピックが開催され、その期間中は工場の操業や自動車の使用など様々な規制が行われた。また、オリンピック期間中とその前後での大気質の比較が行われ規制による効果も検証されているので、それらの論文を調査した。

インドに関して、ヒンドゥスタン平野(Indo-Gangetic Plain)では、調理のためにバイオ燃料や石炭を家庭内で燃やし、Mud Stoveと呼ばれる調理器具(鍋のようなもの)で調理をしている。そのため煤が発生し健康被害や気候への影響が懸念されている。SURYAと呼ばれるインドでの大気質改善プロジェクトでは、改善された調理法(Improved Cooking Stoves)を用いて社会実験を行い、調理器具の改善により屋内外の煤(BC)の発生量の変化を観測した。その結果についての査読付き論文を調査し、社会実験がもたらす大気汚染の状況の変化について検討した。

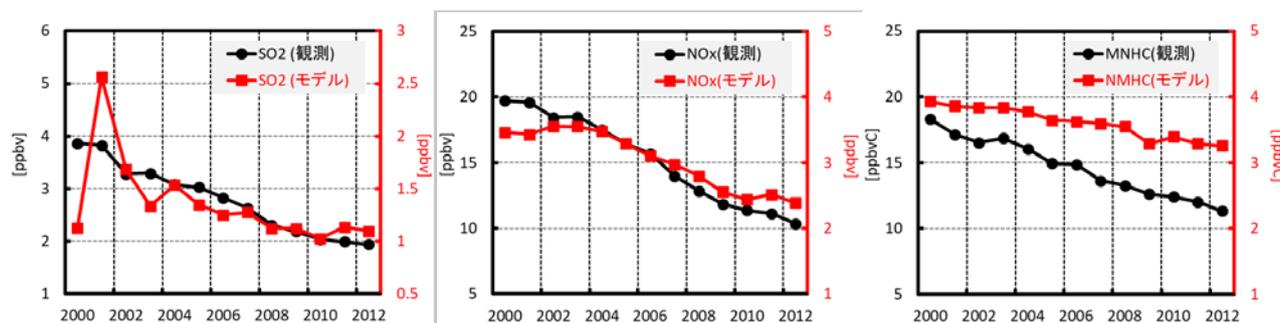
### 4. 結果及び考察

#### (1) マルチスケール化学輸送モデルシステムの構築と大気汚染対策効果の解析

##### 1) 近年の大気質再現実験と変化事例の解析

CMAQで計算された、日本における2000年から2012年までの大気汚染物質濃度の経年変化を各種の観測データを用いて検証した。最初に、計算期間(13年間)における年平均値の経年変化をAEROSデータと比較した。なお、比較に際し、AEROSデータはモデルの計算格子間隔に合わせてグリッド化した。

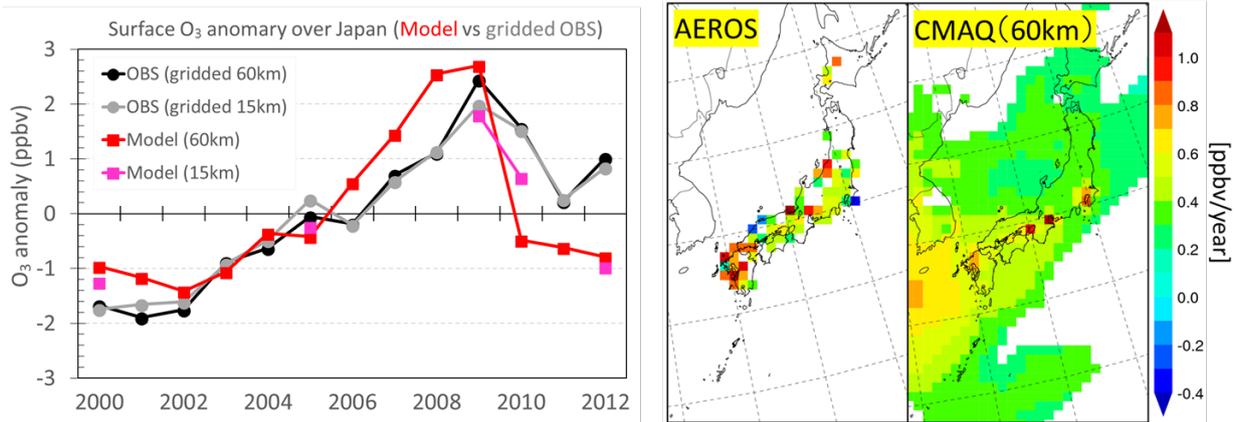
図(1)-4に示した一次汚染物質(SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、NMHC)の年平均地表濃度は、観測値の20~50%程度の値であり、明らかな過小評価になっているものの、図(1)-3に示した排出量の減少傾向を反映して、観測と同様に長期減少傾向を示している。一次汚染物質の過小評価は、D2計算(水平分解能15 km)の場合に、どの物質でも改善する傾向がみられるが、それでも完全に解消されるわけではなく、一次汚染物質の過小評価を改善するためには更なる検討が必要である。こうした過小評価を考慮し、モデルと観測の



図(1)-4 日本域における一次大気汚染物質地表濃度の年平均値の経年変化：左) SO<sub>2</sub>、中) NO<sub>x</sub>、右) NMHC。AEROSによる観測(黒；縦軸は左)とD1におけるモデル計算値(赤；縦軸は右)。

濃度減少傾向を相対減少率(線形トレンド値を期間平均の濃度で除す)で比較すると、モデルにおける相対減少率は観測にくらべ、いずれの成分でも小さくなっているが、成分毎に観測との相違の程度が異なっており、SO<sub>2</sub>やNO<sub>2</sub>ではモデル計算による相対減少率は観測された減少率の8割程度の値となり、NO<sub>x</sub>では6割程度の値となり、NMHCの場合は4割程度にとどまることが分かった。これらの情報は、各一次汚染物質の排出量データの精度向上に役立つことが期待される。

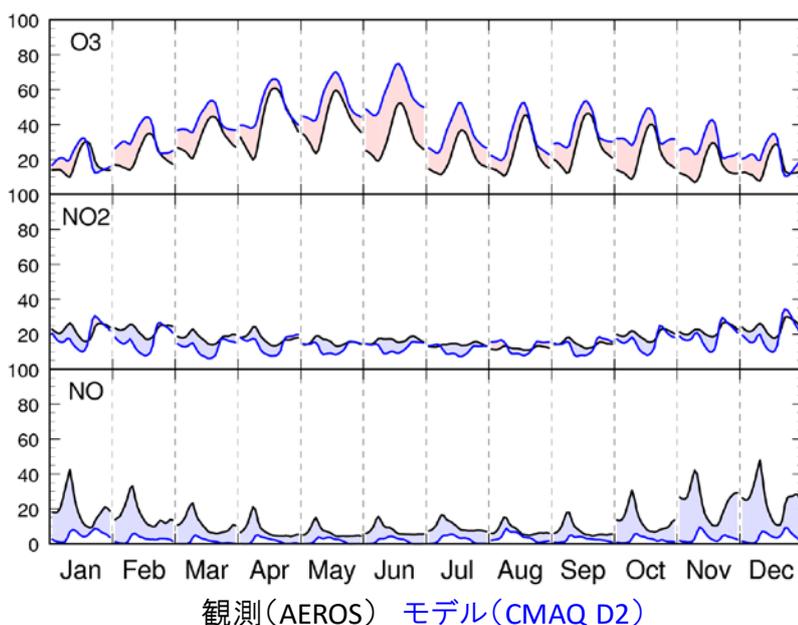
図(1)-5の左図は、O<sub>3</sub>年平均地表濃度の期間平均からの偏差時系列である。モデルは2000年から2009



図(1)-5 (左) 日本における $O_3$ 地表濃度の年平均値偏差の経年変化。黒・灰色はグリッド化されたAEROSデータ、赤・ピンクはモデル計算値。(右) 2000-2009年における年平均地表 $O_3$ 濃度の変化率分布。AEROS (左) とモデル計算値 (右)。

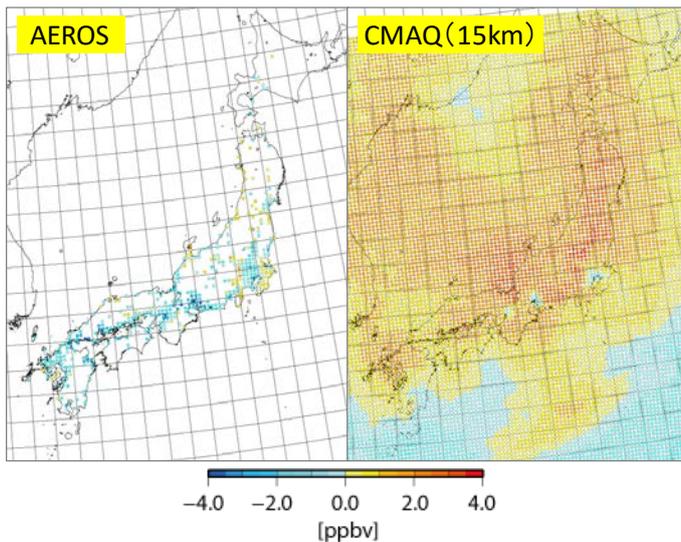
年にかけての $O_3$ 増加傾向とそれ以降の増加の停滞傾向を良く再現しており、2000年から2009年における増加率も観測 0.44ppbv/年 に対しモデルが 0.47ppbv/年 と定量的な再現性も良い。また、図(1)-5の右図に示すように、 $O_3$ が増加する期間(2000-2009年)において、西日本ほど増加率が大きい傾向になることをモデルは再現しており、これは大陸からの越境大気汚染による影響が大きいことを示唆している。同様な傾向は $NO_2$ にも見ることができた。更に、この増加率が春や秋に大きく、夏と冬は比較的小さくなる季節的な変化もモデルは観測と整合的であった。一方、2010年以降はそれまでのほぼ一貫した増加傾向とは異なり一旦大きく減少する変化が観測されているが、モデル計算においても地域特性や季節特性も含めて類似の傾向が見られた。今回の計算では、日本を除くアジア域での人為起源大気汚染物質の排出量は2008年以降固定されており、2010年以降の $O_3$ 濃度の変化は、それ以外の要因(国内発生源ないしは気象場の変動)によるものと考えられる。

このように、日本の地表 $O_3$ 濃度の近年の増加トレンドはモデルで良く再現されることが確認されたが、実際には年平均値で最大20ppbv程度の正のバイアスが存在している。このバイアスは暖候期(4月-10月)に大きくなる傾向があり、バイアスの見られる範囲は日本の周辺だけではなく、少なくともおおよそ北緯10度以北の海上(東シナ海、南シナ海、フィリピン海)においても見られることが、定期船舶



図(1)-6 首都圏近郊における地表 $O_3$ 、 $NO$ 、 $NO_2$ 濃度日変化の各月平均。D2計算の2009年値を使用。

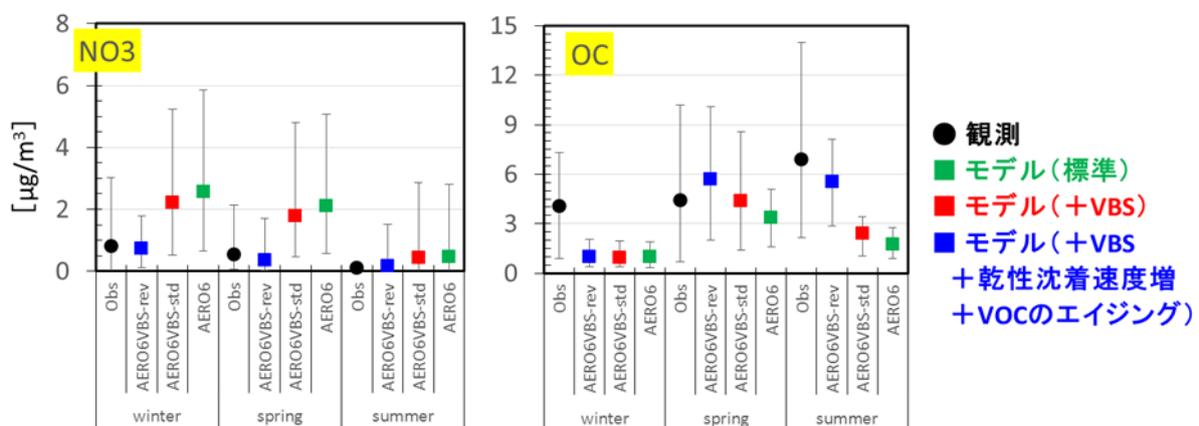
による観測データとの比較から確認されている。更に、オゾンの日変化に着目してモデルとAEROSデータを比較すると、多くの地点においてほぼ一年中全時間帯でモデルが過大評価しており、特に夕方から早朝にかけての時間帯でバイアスが大きくなっていることが分かった。図(1)-6は、首都圏近郊での $O_3$ 、 $NO$ 、 $NO_2$ 濃度の日変化比較図であるが、夏以外の季節では夕方から始まる $O_3$ 濃度の減少が、モデルでは観測に比べて長続きせず、早朝まで続く持続的な減少になっていないことが分かる。この原因の一つは観測に比べて著しく $NO$ の濃度が低いことが挙げられる。 $NO$ 排出量の問題や、水平分解能の不足な



図(1)-7 2012年における平日と休日（土日・祝日）の年平均地表 $O_3$ 濃度の差：（左）AEROSデータ、（右）D2におけるモデル計算値。

モデルで計算された $PM_{2.5}$ 成分のうち、BCと一次のOCにおいて休日と平日の平均濃度に顕著な違い（休日 $>$ 平日）が見られる一方、これら以外の $PM_{2.5}$ 成分には明瞭な週末効果は計算されなかった。こうした成分毎の差異に関しては、今回のモデル計算結果と整合的な観測例（名古屋）<sup>31)</sup>が報告されている。

一方、 $PM_{2.5}$ の成分濃度再現性能に関して、国立環境研究所による沖縄・辺戸岬での長期観測や、関連する推進費研究（5B-1101など）で観測されたデータを用いて評価を行ったところ、 $SO_4^{2-}$ には冬季と春季を中心に過小評価傾向があるものの、2007年以降に辺戸岬で観測された比較的明瞭な濃度の減少傾向をモデル計算でも捉えることが出来た。ただし、今回の計算では、日本を除くアジア域での人為起源大気汚染物質の排出量は2008年以降固定されており、モデルで計算された $SO_4^{2-}$ の減少傾向は排出量変化以外の減少要因の存在を示唆するものとして興味深い。 $NO_3^-$ には主に春季と夏季に過大評価傾向、OCとBCには年間を通じて過小評価傾向のあることが分かった。これらに対する改善策を検討し、 $NO_3^-$ に関しては $HNO_3$ とアンモニア（ $NH_3$ ）の乾性沈着速度を5倍程度に大きくすることで著しい過大評価傾向の改善が見込まれること、またOCに関しては、VBSモデルの導入と、揮発性有機化合物（VOC）の大気中における酸化過程を導入することによって、特に春季と夏季における過小評価に一定の改善が図られることが確認された（図(1)-8）。



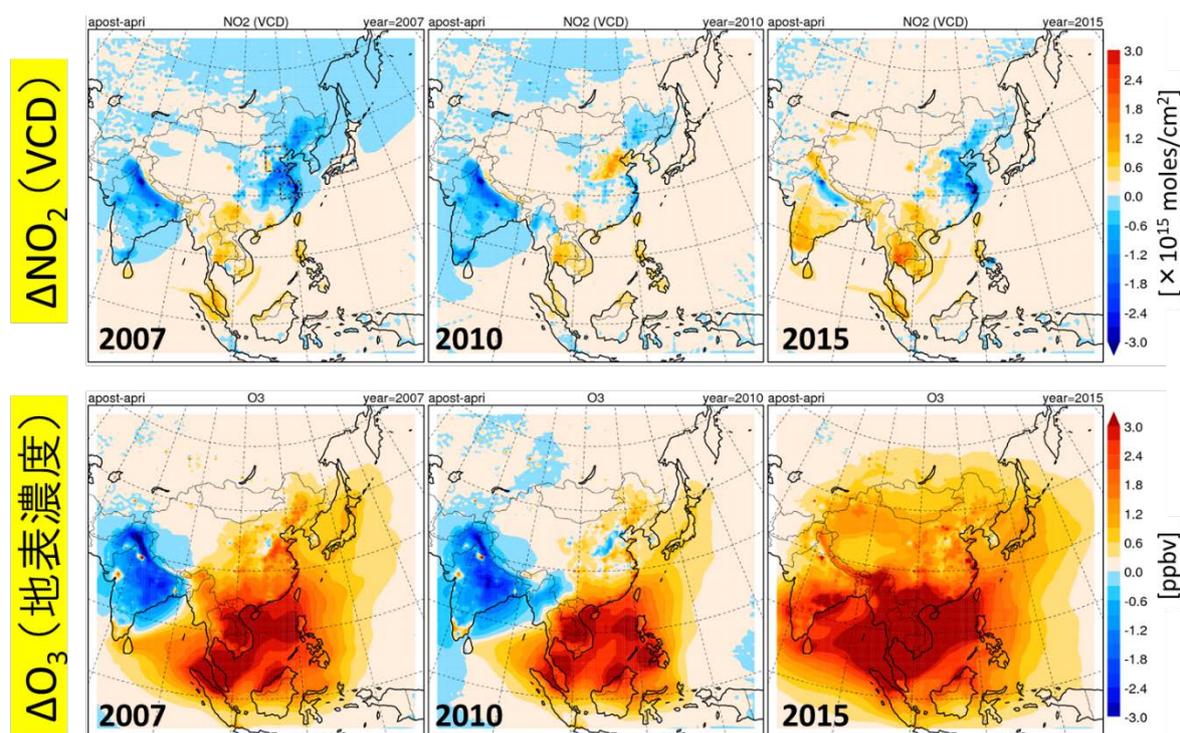
図(1)-8 硝酸イオン（ $NO_3^-$ ：左）及び有機炭素粒子（OC：右）の再現性検証。観測（黒）および異なった過程を考慮したモデルとの比較結果を示す（エラーバーは観測地点の違いによる濃度範囲）。

どがその原因として考えられるが、水平分解能に関しては15km程度まで細かくしてもあまり改善されないことが分かった。この点に関して、アジアにおける大気質モデルの相互比較プロジェクトであるMICS-Asia（Model Intercomparison Study Asia）において、本研究で開発したCMAQを用いて計算し提出した結果を含む複数のモデル結果の解析から、BC上で $HNO_3$ が $NO_x$ に変換される反応（再 $NO_x$ 化）の重要性が指摘されており<sup>30)</sup>、今後の更なる検討が必要である。

図(1)-7は、2012年における地表 $O_3$ 濃度の平日平均と休日平均の差である。観測値からは、いわゆる“週末効果”が日本の広い範囲で見られることが分かるが、モデル計算値においても同様の傾向が三大都市圏を中心に再現されていることが分かる。 $O_3$ 以外にも、モ

## 2) マルチスケール大気質変化評価システムによる大気汚染物質再現性向上の検討

サブテーマ3において計算された $\text{NO}_x$ 排出量の逆推計値を用いて、CMAQのD1による2005年～2015年の再計算を行い、元の $\text{NO}_x$ 排出量を用いた計算結果との比較を行った。図(1)-9は、 $\text{NO}_2$ の鉛直積算カラム量 (Vertical Column Density: VCD) と $\text{O}_3$ の年平均地表濃度に関する両実験の差を示す。 $\text{NO}_2$ のVCDに対する逆推計の影響は地域により違いが大きく、東南アジアでは各年で概ね増加傾向を示すが、東アジア、南アジアでは、年による相違が大きい。東アジアでは、2007年に華北平原を中心とした中国東部、北東部で $\text{NO}_2$ が減少するが、2010年には北京、天津付近で増加し、2015年には再び減少となっている。一方、インドでは、大気汚染が最も深刻なヒンドゥスタン平原では一貫して $\text{NO}_2$ は減少となるが、デカン高原では2015年に増加となっている。 $\text{NO}_x$ 排出量逆推計の影響は $\text{O}_3$ 濃度にも及ぶ。図(1)-9下段に示すように、東南アジアでは $\text{O}_3$ の地表濃度が大きく増加し、東アジアでも地表 $\text{O}_3$ に対する逆推計の影響は総じて濃度増加の方向に働いている。一方、インドでは $\text{NO}_2$ 濃度の変化に応じた $\text{O}_3$ 濃度の増減が見られる。東アジアの3つの都市圏（北京周辺、上海周辺、東京・名古屋・大阪を含む日本中央部）では、 $\text{NO}_x$ 排出量の逆推計結果を用いることにより、 $\text{O}_3$ の地表濃度はいずれの都市域でも増加した。図(1)-6に示されているように、現状のCMAQは日本域の地表 $\text{O}_3$ 濃度を過大評価しており、今回の $\text{NO}_x$ 排出量逆推計による地表 $\text{O}_3$ 濃度への影響は、少なくとも過大評価の改善に資するものではなかった。このことは、既存のCTMに見られる地表 $\text{O}_3$ 濃度の過大評価は、その前駆物質である $\text{NO}_x$ の排出量の修正だけでは改善されず、根本的な原因は他にも存在していることを示唆している。一方、タイ・バンコクの観測点では、 $\text{NO}_x$ 逆推計結果を用いた場合に、地表 $\text{NO}_2$ 濃度のレベルや $\text{O}_3$ トレンドの再現性に一定の改善がみられるケースも見られた。

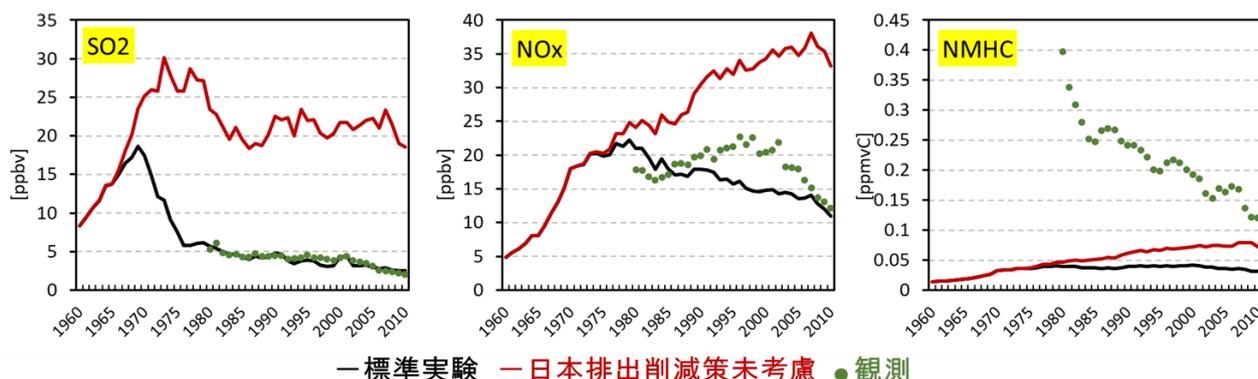


図(1)-9  $\text{NO}_x$ 排出量として逆推計値とREASインベントリ値を用いた計算における、 $\text{NO}_2$ の年平均鉛直積算カラム量 (VCD) (上段) と $\text{O}_3$ の年平均地表濃度 (下段) の差。左から、2007、2010、2015年。

## 3) 東アジア大気質の長期再現実験と排出削減対策効果の評価

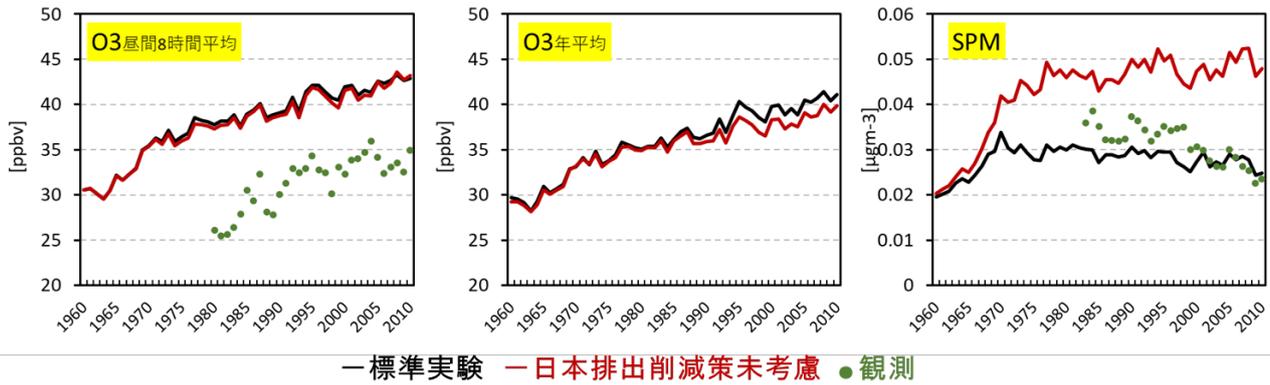
図(1)-10は、REASv2.2 (v2.2の定義はII-2の4 (1) 参照) のアジア大気汚染物質長期排出量データを用いた実験においてCHASERで計算された、関東における一次大気汚染物質 ( $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、NMHC) 年平均地表濃度の時系列である。過去における日本や中国での大気汚染物質排出削減対策が全て考慮され

ているREASv2.2の標準データを用いた実験（標準実験）では、SO<sub>2</sub>とNO<sub>x</sub>の濃度帯をおおむねよく再現できており、SO<sub>2</sub>に関しては再現性が非常に良いことが分かる。一方、NMHCに関しては、図(1)-4に示したREASv2.1とCMAQを用いた計算と同様に、モデルが顕著な過小評価となっている。CMAQとCHASERではNMHCの化学反応の取り扱いが大きく異なっているが、バイアスの程度はおおよそ同じ程度となっている。日本における排出削減対策を考慮しない排出量データを用いた実験（日本排出削減対策未考慮実験）の結果は、いずれの物質も1970年代には標準実験から乖離し始め、2010年の段階で標準実験に比べると約2.5倍から7倍の高濃度になっている。これは、過去に日本で実施されてきた大気汚染物質の排出削減対策によって国内の大気質が大幅に改善したことを意味している。

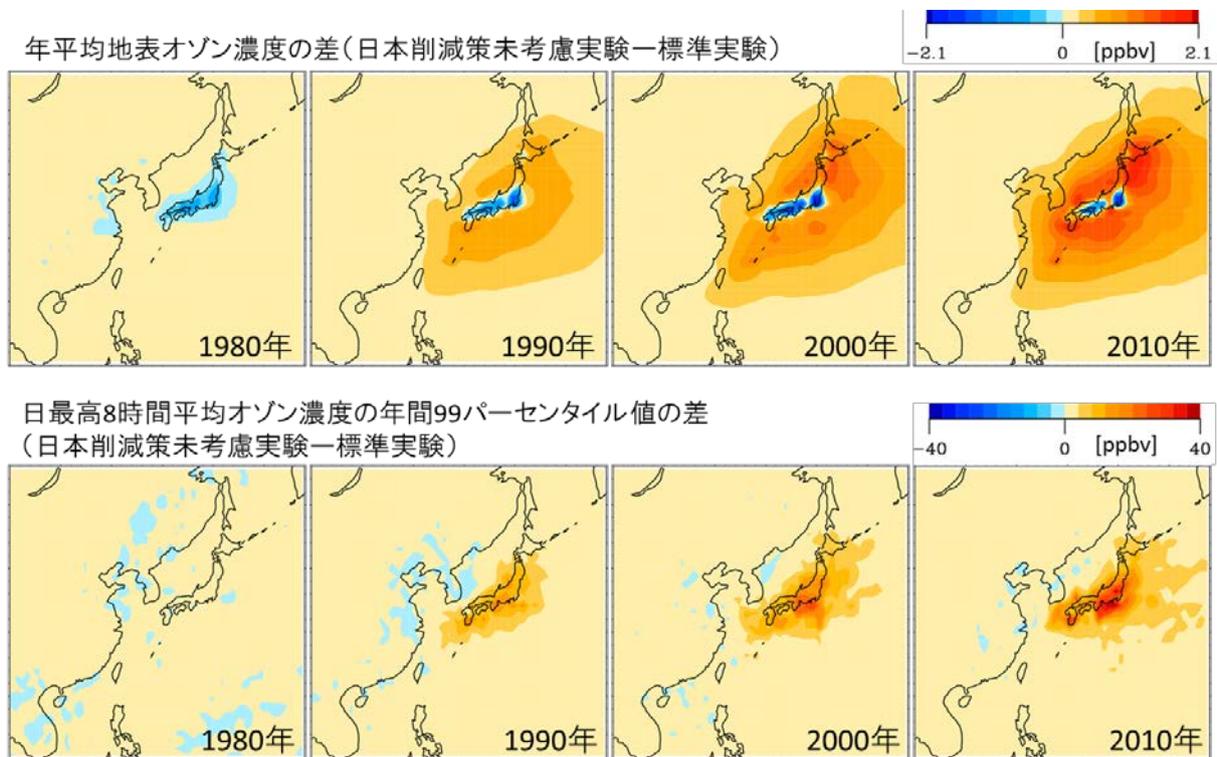


図(1)-10 関東における一次大気汚染物質地表濃度の年平均値の経年変化：（左）SO<sub>2</sub>、（中）NO<sub>x</sub>、（右）NMHC。AEROSによる観測（黒）とCHASERによる計算値（赤）。観測値は郊外の観測点のみ集計。

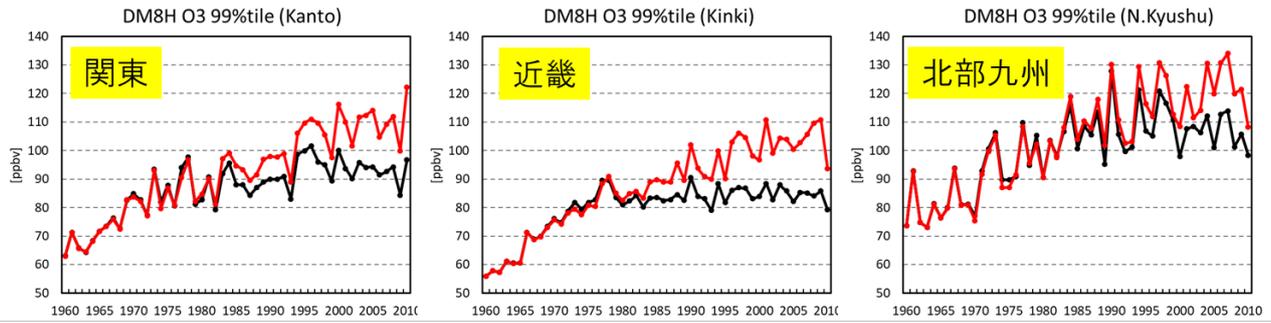
一方、図(1)-11は二次汚染物質であるO<sub>3</sub>の地表濃度時系列を示しているが、図(1)-10に示した一次汚染物質と異なり、標準実験と日本排出削減対策未考慮実験の差があまり大きくない。昼間8時間の年平均濃度の差はほとんどなく、単純なO<sub>3</sub>の年平均濃度については、むしろ排出削減対策を考慮しない場合の方が低濃度になっている。これは、排出削減対策を考慮しなかった場合に夜間のO<sub>3</sub>濃度がより低くなっていることを表している。図(1)-12の上段に示した年平均濃度の差の分布からは、1980年から2010年に至るまで、排出削減をしない方が、関東や近畿などの都市域において年平均O<sub>3</sub>濃度が低くなっていることが分かる。これは、NOによるタイトレーションが、排出削減対策によるNO<sub>x</sub>排出量の減少によって弱化（特に夜間において）したためと考えられる。一方、図(1)-12の下段に示したように、高濃度O<sub>3</sub>の指標である、日最高8時間平均濃度（Daily-Maximum 8-Hour ozone value (DM8H O<sub>3</sub>))の年間99パーセンタイル値([DM8H O<sub>3</sub>]\*)については、過去に日本で実施されてきた排出削減対策によって日本の広い領域で減少したことが分かる。図(1)-13には、関東、近畿、九州北部における[DM8H O<sub>3</sub>]\*値の経年変化を示した。標準実験、日本削減対策未考慮実験ともに、1960年から1980年代前半にかけて[DM8H O<sub>3</sub>]\*値は顕著に増加するが、それ以降、排出削減対策を考慮した標準実験では同値の増加は抑えられる一方で、日本削減対策未考慮実験では同値は増加を続け、2010年には両実験の差が10-20ppb程度にまで開いていることが分かる。排出削減対策による[DM8H O<sub>3</sub>]\*値の減少効果は、関東や近畿に比べて九州北部で小さく、これは図(1)-12に示された分布図からも読み取ることができる。このように、日本国内の排出削減対策によって高濃度O<sub>3</sub>の発生が顕著に減少したことが明らかとなった。



図(1)-11 関東における $O_3$ の昼間8時間平均値の年平均値（左）、 $O_3$ の年平均値（中）、SPMの年平均値の経年変化。AEROSによる観測値（緑）とCHASERによる計算値（黒：標準実験；赤：日本の排出削減対策未考慮実験）。観測値は郊外の観測点のみを集計。

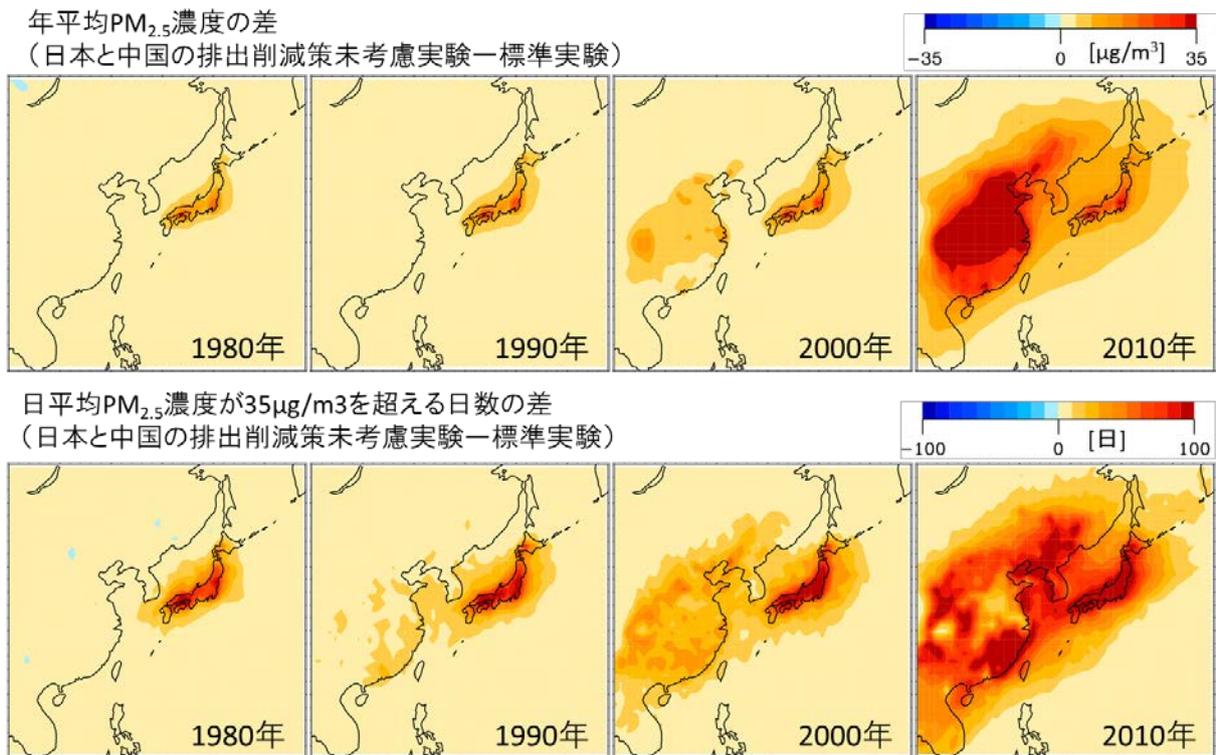


図(1)-12 日本の排出削減対策未考慮実験と標準実験で計算された年平均地表 $O_3$ 濃度の差（上段）と日最高8時間平均 $O_3$ 濃度の年間99パーセンタイル（[DM8H  $O_3$ ]\*）値の差（下段）。左から1980年から2010年まで10年おきに表示。



一標準実験 一日本排出削減策未考慮

図(1)-13 関東（左）、近畿（中）、九州北部（右）における日最高8時間平均 $O_3$ 濃度の年間99パーセントイル（[DM8H  $O_3$ ]\*）値の経年変化。標準実験（黒）と日本排出削減対策未考慮実験（赤）。

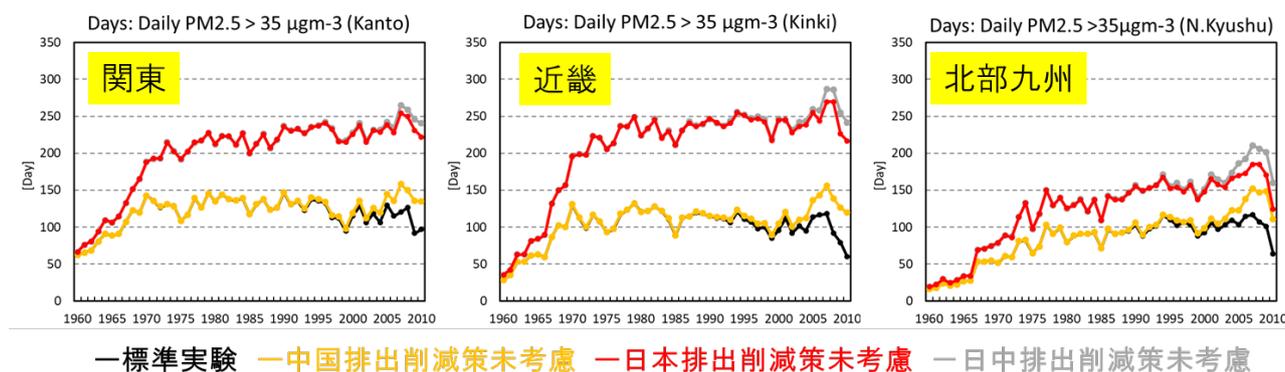


図(1)-14 日中の排出削減対策未考慮実験と標準実験で計算された年平均地表 $PM_{2.5}$ 濃度の差（上段）と日平均 $PM_{2.5}$ 濃度が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える日数の差（下段）。左から1980年から2010年まで10年おきに表示。

図(1)-11にはSPMの年平均濃度の時系列も示されているが、こちらは $O_3$ とは異なり図(1)-10に示した一次汚染物質と同じように排出削減対策により大きな濃度減少が認められる。標準実験は観測されたSPMの濃度レベルを大まかに再現しており、かつ観測データに見られる濃度の減少傾向もある程度再現できている。一方、日本削減対策未考慮実験では、1960年から1980年にかけて急激にSPM濃度が増加し、その後も増加率は低下するものの緩やかに増加を続け、2010年には標準実験に比べて約2倍の年平均濃度になっている。これは、過去における日本の大気汚染物質排出削減対策が、SPM濃度にも効果的であったことを示している。

$PM_{2.5}$ に関しては、計算結果を検証できるような長期間の観測データが無いため、モデルが実際の長期変動傾向をどの程度再現できているのか評価できない。従って、今回のモデル計算で得られた、過去の排出削減対策による $PM_{2.5}$ 濃度への影響には不確実性があるが、図(1)-14または図(1)-15に示されるよう

に、その効果は非常に大きい。図(1)-14には、年平均PM<sub>2.5</sub>地表濃度と、高濃度イベントの指標として日平均PM<sub>2.5</sub>濃度が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える日数、という二つの指標に関して、日本および中国における排出削減対策の効果が示されている。双方ともに、1980年代から国内における排出削減対策によって主に関東や近畿・瀬戸内を中心にPM<sub>2.5</sub>濃度が低く抑えられており、2000年代に入ると中国における排出削減対策の影響を受けはじめ、2010年には国内のかなり広い領域で中国における排出削減対策の影響を明確に受けていることが分かる。図(1)-15に、関東、近畿、九州北部における、日平均PM<sub>2.5</sub>濃度が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える日数の経年変化を示した。日本国内の排出削減対策による影響の大きさは地域によって違いがあり、近畿>関東>北部九州の関係になっている。2000年代からはどの地域でも中国における排出削減対策の影響が明瞭にあらわれ始め、2000年代後半には年間で30~40日の高濃度日の減少効果が認められた。これは、同期間における日本の排出削減対策による高濃度日の減少効果の25~40%程度にまでなっており、日本のPM<sub>2.5</sub>汚染の改善には中国国内の対策が必要不可欠であることが確認された。

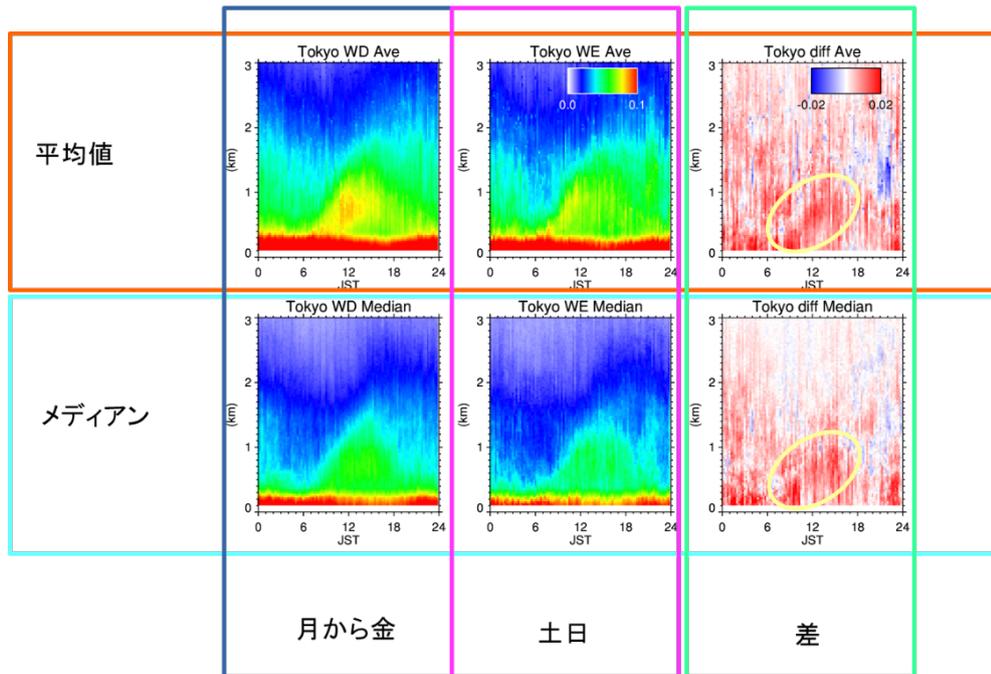


図(1)-15 関東(左)、近畿(中)、九州北部(右)における日平均PM<sub>2.5</sub>濃度が35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える日数の経年変化。標準実験(黒)、中国の排出削減対策未考慮実験(黄)、日本の排出削減対策未考慮実験(赤)、日中の排出削減対策未考慮実験(灰)。

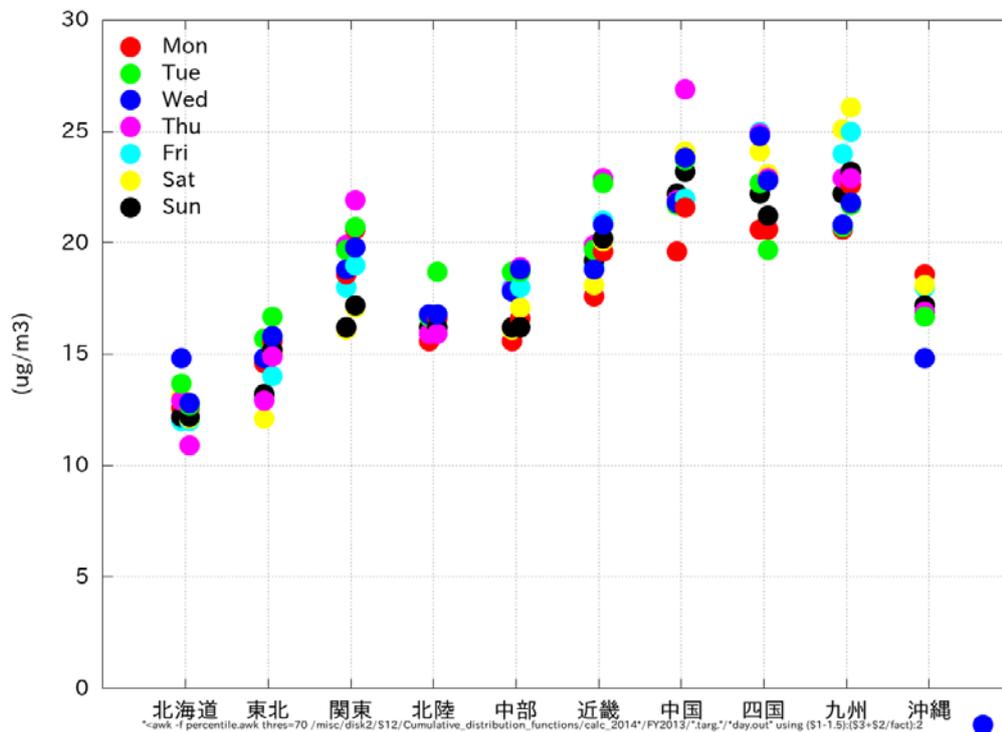
## (2) 観測データ等による大気質変化の解析

### 1) ライダーデータと地上大気汚染データ等を用いた週末効果の検出

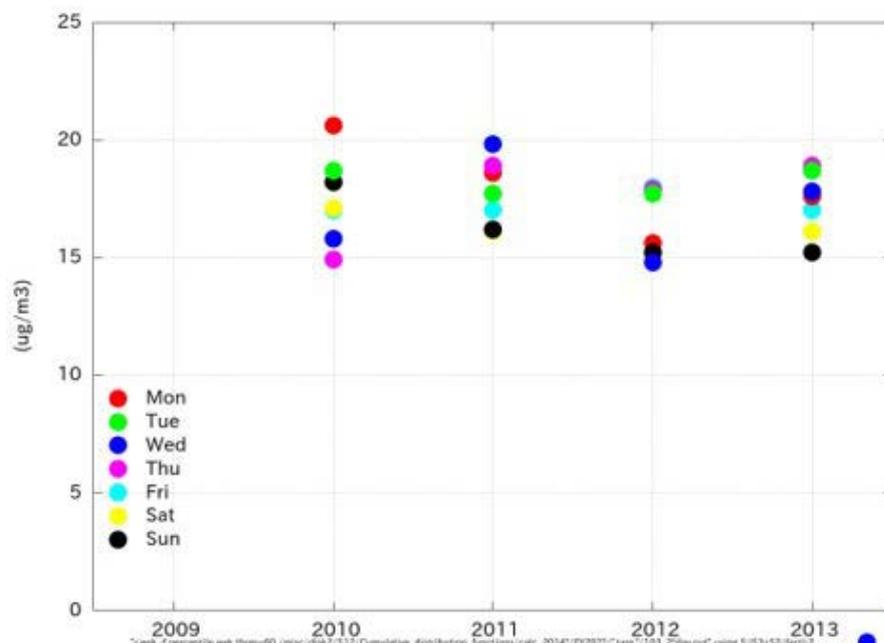
ライダーによる球形粒子消散係数のコンポジット結果(図(1)-16)によると、首都圏(東京)においては、高度2km以下の境界層内における平日と土日との差が明確であった。同様の傾向はつくばにおいても見られたが、西日本(大阪・長崎・福江島)でははっきりと見られなかった。エアロゾルに関する週末効果が国内では首都圏で顕著なことで、地上のみならず境界層内全体で現れていることが示された。常時監視データによるPM<sub>2.5</sub>の曜日別60パーセンタイル値について、その2013年度地域別プロットを図(1)-17に示した。まず地域別特性を見ると、沖縄を除き西高東低の勾配が見られる中、首都圏のみ突出した高濃度となっており、都市汚染による濃度上昇が起きていることが示唆される。その首都圏においては土曜および日曜の濃度が月曜から金曜よりも低く、この傾向は一般局と自排局で共通していた。他地域での曜日依存性を見ると、中部・近畿より東では土日が平日を上回る例はないが、中国・四国・九州では土日が週の上位になるケースが見られる。このように国内でのエアロゾル週末効果には地域依存性があり、同一地域における一般局と自排局とでは顕著な差は見られないことが示された。一方、2013年度に週末効果が顕著に見られた関東の自排局において同様の処理を過去4年度分に適用すると(図(1)-18)、土日が必ずしも低いとは言えないケースが見られた(2010年度や2012年度)。NO<sub>x</sub>について同様の解析を行うと全年度で土日が低いことが確認できていることから、自動車等の排出量変動とPM<sub>2.5</sub>濃度変動が直接関連しないことが示唆された。PM<sub>2.5</sub>においてこのような年々変動が見られる原因の解明は今後の課題である。



図(1)-16 東京（新宿御苑）におけるライダーから得られた球形粒子消散係数のコンポジット結果。左から平日データ・週末データ・それらの差分で、横軸が時刻(日本時間)、縦軸が高度。上段は有効データの各時間・高度における平均値による結果、下段は同じくメディアンによる結果。



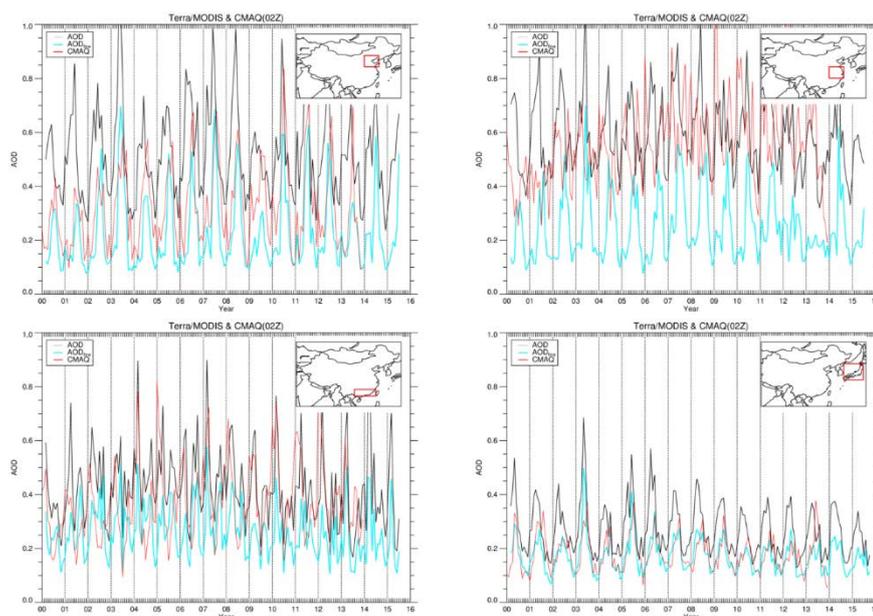
図(1)-17 2013年度のPM<sub>2.5</sub>日平均値に対する曜日別の60パーセンタイル値。地域別に計算し、さらに各地域について一般局(左側)と自排局(右側)に分けて示す。



図(1)-18 関東の自排局について、図(1)-17と同様の計算を2010-2013年度について行った結果。

## 2) 衛星観測データに基づく広域大気汚染の中長期変動解析と化学輸送モデルとの比較

微小粒子エアロゾルによる光学的厚さ(AOD)の経年変動に関して、東アジアのA-Dいずれの領域においても単純なトレンドは見出しにくい、概ね次のような特徴が見られた(図(1)-19)。中国国内(A-C)において、2007年頃に光学的厚さのピークが見られる。ただし、中国北部(A)においては2003年がそれよりも高い。2007年から2009年にかけてはいずれの地点でもAODが減少しており、世界経済の減速時期と対応している。その後の変化傾向は一様ではないが、2011年以降は2014年にやや上昇している他は前年より減少する場合が多い。日本周辺においては2003年から2008年になだらかなピークが存在し、その後はわずかに減少傾向が見られる。また、CMAQとMODISの対応としては、C(中国中部、長江下流域)でややCMAQが過大という結果が見られたものの、季節変動の位相・振幅や中長期的な変動傾向は概ね一致していることが確認された。

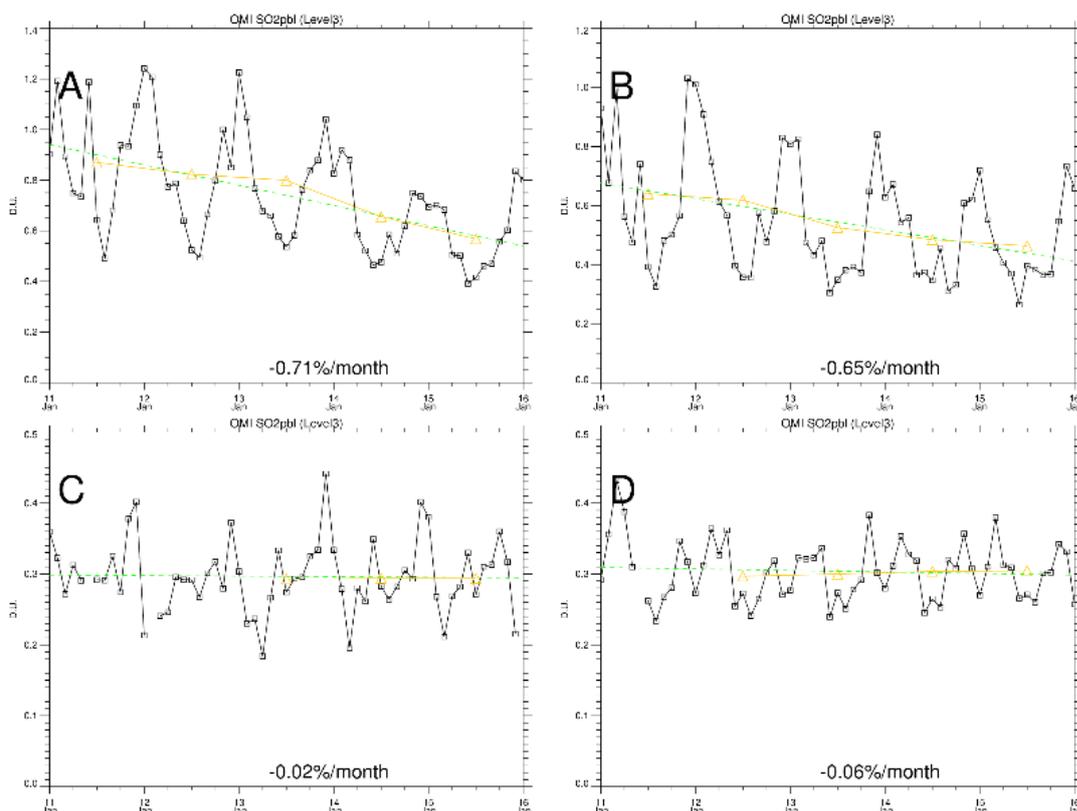


図(1)-19 Terra/MODISによって得られた微小粒子光学的厚さの領域内月平均値(青)の長期変動。赤はWRF/CMAQにより計算された微小粒子光学的厚さ。なお、黒は粗大粒子まで含むMODISによる光学的厚さである。領域は左上が中国北部(A)、右上が中国中部(B)、左下が中国南部(C)、右下が日本周辺)。

一方、エアロゾルの前駆物質であるSO<sub>2</sub>やNO<sub>2</sub>については領域によって2010年代前半の減少傾向が明瞭に捉えられている。図(1)-20はSO<sub>2</sub>の2011-2015の5年間の変動を示す。中国北部(A)・中部(B)ではこの5年間に単調に減少していることが示され、年率換算では7~8パーセントの減少である。これに対して中国南部および日本周辺では2011年の時点で絶対値が高くなく、その後もほぼ横ばいとなっている。また、NO<sub>2</sub>についても近年減少に転じた様子が見られる(図は省略)。まず、中国北部・中部においては2013年頃まで微増または横ばいで、それ以降減少が見られた。南部では単調減少となっているが、5年間の減少率は北部・中部よりも小さい。日本においてもやや減少しているが、減少率は中国南部よりも更に小さく、風下域においては、発生源側の変動が直接的には観測されにくいことを示していると考えられる。前駆物質の過去5年間の変化率を物質・領域ごとにまとめると表(1)-4のとおりである。

表(1)-4 OMI による SO<sub>2</sub> および NO<sub>2</sub> カラム量の 2011-2015 年における領域別の年変化率(%/年)。

	中国北部	中国中部	中国南部	日本周辺
SO <sub>2</sub>	-8.2	-7.5	-0.2	-0.7
NO <sub>2</sub>	-7.6	-8.2	-6.7	-3.0

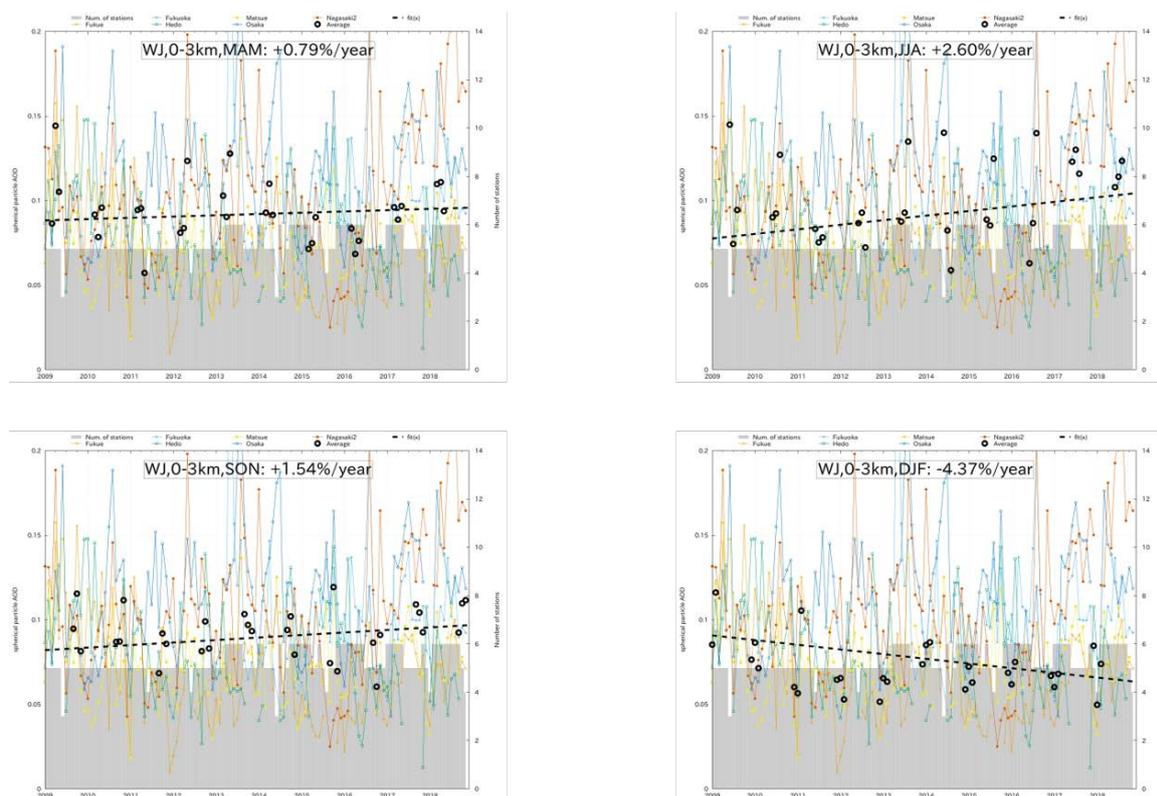


図(1)-20 Aqua/OMIによるSO<sub>2</sub>境界層カラム濃度の月平均値(黒)の変動。黄色は年平均値、緑破線は月平均値に対するフィッティング結果。なお、縦軸は4領域で異なる点に注意。

### 3) ライダーデータに基づく球形粒子の高度別消散係数の中長期変動解析

高度別消散係数の10年間のトレンドに関しては、地域・季節ごとのばらつきが大きく、系統的な傾向を見出すことは出来なかった。まず、西日本の大気境界層を含む0-3kmの消散係数積分値(図(1)-21)のトレンド計算では、四季でのばらつきが-4.37%/年から+2.60%/年までとなった。同様に西日本の下部自由対流圏にあたる3-6kmの消散係数積分値のトレンド(図は省略)は-1.22%/年から+8.10%/年の範囲で

ばらついていて、東日本の大気境界層・下部自由対流圏でもこれらのばらつきは大きく、地域・季節・高度範囲別に計算されたトレンドをまとめると表(1)-5のようになった。近年、PM<sub>2.5</sub>の汚染状況が改善され、特に西日本においてPM<sub>2.5</sub>濃度の低下傾向が指摘されている(鶴野ほか、2017)<sup>32)</sup>が、表(1)-5のライダーによる観測結果はこの特徴と合致しない。この要因としては、重量濃度と消散係数との違い(消散係数は浮遊状態を遠隔計測するため、粒子の種別によっては湿度に依存性がある)、地上値と鉛直積分値の違い(境界層厚さの影響)、ライダー観測値の非連続性(晴天時等、観測状態の良い時の値のみが利用可能)などが考えられる。



図(1)-21 ライダーによる大気境界層内(0-3km)の球形粒子消散係数平均値の変動。西日本ライダー6地点が6色の線で示され、月別にそれらを平均したものうち各季節の該当データを黒丸で示した。黒破線はそれらを時間の関数としてフィッティングした結果。左上が春(3-5月)、右上が夏(6-8月)、左下が秋(9-11月)、右下が冬(12-2月)。なお各ライダーには欠測期間があるため、有効観測地点数がグレーのバーで示されている(右軸)。

表(1)-5 国内ライダーによる地域別・季節別・高度範囲別の消散係数の年変化率(%/年)。

地域	高度	春	夏	秋	冬
西日本	3-6km	+2.79	+2.39	+8.10	-1.22
	0-3km	+0.79	+2.60	+1.54	-4.37
東日本	3-6km	-9.84	+6.50	+0.92	+0.95
	0-3km	-1.78	+3.35	+1.04	+6.21

#### 4) アジア域における大気汚染変事例の情報収集と評価

中国政府や北京市は、2008年北京オリンピックにおいて工場の郊外移転や自動車の交通規制などの大気質改善政策を行ったので、その事例を収集した。Okudaら(2011)<sup>33)</sup>は、北京における大気汚染物質の濃度変動を調査するため、2007年以前と北京オリンピック期間中(2008年7月1日から9月20日)の

気質の比較を行った。その結果、PM<sub>10</sub>、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、黒色炭素（BC）は減少したが、PM<sub>2.5</sub>は同じ程度であり、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は増加したと報告している。Huangら(2010)<sup>34)</sup>はオリンピック期間中、エアロゾル質量分析計を用いて、高い時間分解能で微小粒子状物質の化学組成を分析した。オリンピック期間中、微小粒子状物質の濃度は少し低下し、化学組成のなかでは有機物が最も多く、40%弱を占めていた。また有機物の中では調理由来の有機物が24%を占めると報告した。Wangら(2010)<sup>35)</sup>は、北京市内のO<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>の濃度変動を独自に作成したインベントリとCMAQモデルを用いて解析した。その結果、濃度の再現性がよかつたため、オリンピック期間中の独自推計のインベントリがある程度合理的であったと報告している。

SURYAと呼ばれるインドでの大気質改善プロジェクトでは、改善された調理法(Improved Cooking Stoves)を用いると、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の濃度が約半減したと報告している(Singh et al. 2014<sup>36)</sup>)。また、従来の伝統的な調理器具(Traditional Stove)をImproved Forced Draft Stove (IFDS)に変えた場合(Patange et al. 2015<sup>37)</sup>)、26 μg・m<sup>-3</sup>から16 μg・m<sup>-3</sup>までBC濃度が減少していた。SURYAでは、屋内と屋外でのBC、OCなどの観測を行い、調理器具やディーゼル車などからの排出による影響を調査した(Rehman et al. 2011<sup>38)</sup>)。その結果、午前5時から8時と午後5時から7時にかけて、BC濃度が屋内では最大で60 μg・m<sup>-3</sup>、屋外で30 μg・m<sup>-3</sup>に上昇したと報告している。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

本研究で開発を進めた「マルチスケール大気質変化評価システム」によって、これまでに断片的にしか検証されて来なかったモデルによる日本の過去大気質の再現性が多角的に検証され、再現性の悪い物質や良い物質、再現される大気質変動事例に関する知見が蓄積された。特に、過去における一次汚染物質の濃度変化率（減少トレンド）がモデルによって過小評価されることは、より確からしい大気汚染物質排出量データの構築のために重要な示唆を与えるものである。また、サブテーマ間の連携によって、人工衛星データを用いて逆推計されたNO<sub>x</sub>排出量を用いても、モデルによるO<sub>3</sub>濃度の過大評価に改善がみられなかったことは、この問題が前駆物質であるNO<sub>x</sub>の排出量を調整するだけでは改善が難しいことを示しており、これは、モデルによる地表O<sub>3</sub>濃度の日変化の解析から示唆された、硝酸ガスの再NO<sub>x</sub>化反応の重要性の指摘とも整合的な結果であり、今後の問題解決に資する成果と言える。

国内の微小粒子濃度に関しては常時監視データやライダー観測から地域・年度によって週末効果が確認され、ローカルな発生源対策が依然必要であることを示した。また衛星データ解析により、中国上空のSO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>が2010年台半ばには減少していることが確認された。特に、従来NO<sub>2</sub>が高濃度だった地域において2013年頃から大幅な減少が確認され、中国国内における発生源対策によってNO<sub>x</sub>排出量が減少傾向に転じたことが観測的に示された。また光学的厚さについては、化学輸送モデルWRF/CMAQによる計算結果と衛星観測の結果が概ね対応しており、モデルの再現性に関して一定の評価を得ることができた。

### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

- 環境省が主催する「微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)発生源寄与割合推計に関する検討会」において、PM<sub>2.5</sub>の発生源寄与を推計するにあたり、本研究において修正されたVBSモデルが活用されるとともに、本研究で実施したPM<sub>2.5</sub>濃度のモデル再現性評価結果が参考情報として活用された。
- 環境省が主催する「光化学オキシダント調査検討会」ならびに「光化学オキシダントシミュレーションによる解析作業部会」において、本研究で得られたアジア域の人為起源排出インベントリや化学輸送モデルの長期計算結果に関する知見・情報を提供するとともに、解析作業部会に本研究で作成したデータセットの提供やモデル計算の指導を行った。
- 環境省が主催する「越境大気汚染・酸性雨対策検討会」における長期モニタリングデータの解析結果の解釈やモニタリング計画の策定にあたって、本研究で得られた日本の地表オゾンやPM<sub>2.5</sub>の長期変動に関する知見・情報が活用された。

- 日中韓三カ国大気汚染に関する政策対話（TPDAP）のワーキンググループⅡにおいて、本研究の成果である $O_3$ や $PM_{2.5}$ 等の長期変動に関する解析結果や排出インベントリREASの逆推計に基づく改良について、日本における大気汚染に関する数値モデルや排出インベントリに関する研究進捗として報告した。
- 環境省と国立環境研究所による大気汚染予測システムの高度化業務において、本研究成果である領域大気質モデリングの技術的知見を提供し、大気汚染予測システム（VENUS）の改良に貢献した。

#### <行政が活用することが見込まれる成果>

- 本研究の実施により、マルチスケール大気質変化評価システム、とりわけ領域スケールの大気質モデル（WRF/CMAQ）の日本の大気質再現性が詳しく解析され、新たな化学過程の導入等による $PM_{2.5}$ 等の再現精度の向上が図られた。このシステムを用いて、我が国において過去に実施された大気環境政策による大気汚染物質の排出量低減効果と大気質改善効果が初めて定量的に評価され、その効果が非常に大きく、我が国の大気環境の改善・保全に大いに貢献していたことが示された。このように、本研究ではマルチスケール大気質変化評価システムを用いて、過去の大気汚染対策の有効性が事後的に評価されたが、このことは、同システムが今後の更なる大気汚染対策を考える場合に、その効果に関する事前の定量的な評価に十分耐えうることを示しており、近年その重要性が広く認識されるようになった、根拠に基づいた政策策定（EBPM: Evidence-Based Policy Making）を支えるツールとして、行政による今後の活用が期待される。
- 本研究で利用した国立環境研究所等によるライダーネットワーク（AD-Netと呼称）は、WMO（世界気象機関）-GAW（全球大気監視）以下の全世界的なライダーによるエアロゾル観測網のネットワーク GALION（GAW Aerosol Lidar Observation Network）に参画しており、本研究で導出した球形粒子消散係数もWMO-GAWにオンラインで提供している。

## 6. 国際共同研究等の状況

アジアにおけるモデル相互比較研究（Model Inter-Comparison Study - Asia: MICS-Asia）第三期

【カウンターパート】 Zifa Wang・中国科学院大気物理研究所・中国、Gregory R. Carmichael・アイオワ大学・米国、Qiang Zhang・清華大学・中国、Jung-Hun Woo・建国大学・韓国 ほか多数

【参加・連携状況】本課題で開発したマルチスケールCTMシステムを用いて、東アジアにおけるモデル相互比較に参加している。中国・韓国・米国などの他機関が運用しているモデルと同一条件における計算を行い、相互比較結果の解析や論文を共同執筆した。また、本課題で開発を進めている排出インベントリREASと共同研究者の排出インベントリを組み合わせたアジア域排出インベントリ（MIXインベントリ）を構築した。このインベントリは、HTAP（Hemispheric Transport of Air Pollution；大気汚染物質の半球規模輸送研究プロジェクト）による全球インベントリのアジア域インベントリとして採用され、世界中の多くの研究者によって使用されている。

【国際的な位置づけ】大気汚染が深刻化している東アジアにおける大気質モデルの相互比較研究プロジェクトとしては参加機関の数が最も多い。また、全球規模の同様な相互比較研究プロジェクトとの連携も深く、国際的にも非常に関心の高い研究プロジェクトである。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文（査読あり）>

- 1) Y. MORINO, K. TANABE, K. SATO, and T. OHARA: Journal of Geophysical Research, 119, 13489-13505 (2014).  
 “Secondary organic aerosol model intercomparison based on secondary organic aerosol to odd oxygen ratio in Tokyo”

- 2) T. DAI, N.A.J. SCHUTGENS, D. GOTO, G.-Y. SHI, and T. NAKAJIMA: *Environmental Pollution*, 195, 319-329 (2014).  
 “Improvement of aerosol optical properties modeling over Eastern Asia with MODIS AOD assimilation in a global non-hydrostatic icosahedral aerosol transport model”
- 3) D. GOTO, T. DAI, M. SATOH, H. TOMITA, J. UCHIDA, S. MISAWA, T. INOUE, H. TSURUTA, K. UEDA, C.F.S. Ng, A. TAKAMI, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU, T. OHARA, and T. NAKAJIMA: *Geosci. Model Dev.*, 8, 235-259, doi: 10.5194/gmd-8-235-2015 (2014).  
 “Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan”
- 4) D. GOTO: *Environmental Pollution*, 195, 330-335 (2014).  
 “Modeling of black carbon in Asia using a global-to-regional seamless aerosol-transport model”
- 5) Y. MORINO, T. NAGASHIMA, S. SUGATA, K. SATO, K. TANABE, T. NOGUCHI, A. TAKAMI, H. TANIMOTO, T. OHARA: *Aerosol and Air Quality Research*, 15, 2009-2023 (2015).  
 “Verification of Chemical Transport Models for PM<sub>2.5</sub> Chemical Composition Using Simultaneous Measurement Data over Japan”
- 6) Y. MORINO, T. OHARA, J. XU, S. HASEGAWA, B. ZHAO, A. FUSHIMI, K. TANABE, M. KONDO, M. UCHIDA, K. YAMAJI, L. YANG, S. SONG, W. DONG, Y. WU, S. WANG, J. HAO: *Atmospheric Environment*, 122, 349-356 (2015).  
 “Diurnal variations of fossil and nonfossil carbonaceous aerosols in Beijing”
- 7) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, T. TAKEMURA, M. KAJINO, H. MATSUI, A. TAKAMI, S. HATAKEYAM, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU AND T. OHARA: *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120 (12), 6247-6270, doi:10.1002/2014JD021693 (2015).  
 “An evaluation of simulated sulfate over East Asia through global model inter-comparison”
- 8) S. SAHU, T. OHARA, G. BEIG, J. KUROKAWA, T. NAGASHIMA: *Environmental Research Letters*, 10, doi:10.1088/1748-9326/10/9/095002 (2015).  
 “Rising critical emission of air pollutants from renewable biomass based cogeneration from the sugar industry in India”
- 9) D. GOTO, Y. SATO, H. YASHIRO, K. SUZUKI, T. NAKAJIMA: *AIP Conference Proceedings*, 1810, 100002, doi:10.1063/1.4975557 (2017).  
 “Validation of high-resolution aerosol optical thickness simulated by a global non-hydrostatic model against remote sensing measurements”
- 10) T. T. N. TRIEU, D. GOTO, H. YASHIRO, R. MURATA, K. SUDO, H. TOMITA, M. SATOH, T. NAKAJIMA: *Atmospheric Environment*, 153, 163-181, doi:10.1016/j.atmosenv.2017.03.030 (2017).  
 “Evaluation of summertime surface ozone in Kanto area of Japan using a semi-regional model and observation”
- 11) D. GOTO, K. UEDA, C.F.S. NG, A. TAKAMI, T. ARIGA, K. MATSUHASHI, T. NAKAJIMA: *Atmospheric Environment*, 140, 320-332, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.06.015 (2016).  
 “Estimation of excess mortality due to long-term exposure to PM<sub>2.5</sub> in Japan using a high-resolution model for present and future scenarios”
- 12) Y. SATO, A. HIGUCHI, A. TAKAMI, A. MURAKAMI, Y. MASUTOMI, K. TSUCHIYA, D. GOTO, T. NAKAJIMA: *Urban Forestry & Urban Greening*, 20, 43-55. doi:10.1016/j.ufug.2016.07.012 (2016).  
 “Regional variability in the impacts of future land use on summertime temperatures in

Kanto region, the Japanese megacity”

- 13) Y. SATO, H. MIURA, H. YASHIRO, D. GOTO, T. TAKEMURA, H. TOMITA, T. NAKAJIMA: *Scientific Reports*, 6, 26561, doi:10.1038/resp26561 (2016).

“Unrealistically pristine air in the Arctic produced by current global scale models”

- 14) N.A.J. SCHUTGENS, E. GRYSPEERDT, N. WEIGUM, S. TSYRO, D. GOTO, M. SCHULZ, P. STIER: *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 6335–6353, doi:10.5194/acp-16-6335-2016 (2016).

“Will a perfect model agree with perfect observations? The impact of spatial sampling”

- 15) X. YIN, T. DAI, N.A.J. SCHUTGENS, D. GOTO, T. NAKAJIMA, G. SHI: *Atmospheric Research*, 178–179, 175–186, doi:10.1016/j.atmosres.2016.03.016 (2016).

“Effects of data assimilation on the global aerosol key optical properties simulations”

- 16) S. ITAHASHI S., I. UNO, H. IRIE, J. KUROKAWA, T. OHARA : *Land-Atmospheric Research Applications in South and Southeast Asia*, 67–81, (eds.) K. P. Vadrevu, T. Ohara, and C. Justice, Springer Remote Sensing/Photogrammetry, Springer International Publishing AG, part of Springer Nature 2018 (2018).

“Impacts of biomass burning emissions on tropospheric NO<sub>2</sub> vertical column density over continental Southeast Asia”

- 17) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, H. YASHIRO, Y. SATO, K. SUZUKI, J. UCHIDA, S. MISAWA, R. YONEMOTO, T. T. N. TRIEU, H. TOMITA, M. SATOH: IN VADREU K., OHARA T., JUSTICE C. (eds) *Land-Atmospheric Research Applications in South and Southeast Asia*. Springer Remote Sensing/Photogrammetry. Springer, Cham, 277–302 (2018).

“Multi-scale Simulations of Atmospheric Pollutants Using a Non-hydrostatic Icosahedral Atmospheric Model”

- 18) Y. MORINO, K. UEDA, A. TAKAMI, T. NAGASHIMA, K. TANABE, K. SATO, T. NOGUCHI, T. ARIGA, K. MATSUHASHI, T. OHARA: *Environmental Science and Technology*, 51, 14273–14282 (2017).

“Sensitivities of Simulated Source Contributions and Health Impacts of PM<sub>2.5</sub> to Aerosol Models”

- 19) K. NISHINA, M. WATANABE, M. KOSHIKAWA, T. TAKAMATSU, Y. MORINO, T. NAGASHIMA, K. SOMA, S. HAYASHI: *Scientific Reports*, 7, 7701 (2017).

“Varying sensitivity of mountainous streamwater base-flow NO<sub>3</sub><sup>-</sup> concentrations to N deposition in the northern suburbs of Tokyo”

- 20) Y. SATO, D. GOTO, T. MICHIBATA, K. SUZUKI, T. TAKEMURA, H. TOMITA, T. NAKAJIMA: *Nat. Commun.*, 9: 985, DOI: 10.1038/s41467-018-03379-6 (2018).

“Aerosol effects on cloud water amounts were successfully simulated by a global cloud-system resolving model”

- 21) N. SCHUTGEN, S. TSYRO, E. GRYSPEERDT, D. GOTO, N. WEIGUM, M. SCHULZ, P. STIER: *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 9761–9780, https://doi.org/10.5194/acp-17-9761-2017 (2017).

“On the spatio-temporal representativeness of observations”

- 22) J. UCHIDA, M. MORI, M. HARA, M. SATOH, D. GOTO, T. KATAOKA, K. SUZUKI, T. NAKAJIMA: *Mon. Wea. Rev.*, 145, 5059–5082, doi:10.1175/MWR-D-17-0158.1 (2017).

“Impact of lateral boundary errors on the simulation of clouds with a non-hydrostatic regional climate model”

- 23) Y. MORINO, S. CHATANI, K. TANABE, Y. FUJITANI, T. MORIKAWA, K. TAKAHASHI, K. SATO, S. SUGATA: *Environmental Science & Technology*, 52 (15), 8456–8466 (2018).

“Contributions of Condensable Particulate Matter to Atmospheric Organic Aerosol over

Japan”

- 24) T. DAI, Y. CHENG, P. ZHANG, G. SHI, M. SEKIGUCHI, K. SUZUKI, D. GOTO, T. NAKAJIMA: Atmospheric Environment, 190, 99-115 (2018).  
 “Impacts of meteorological nudging on the global dust cycle simulated by NICAM coupled with an aerosol model”
- 25) H. AKIMOTO, T. NAGASHIMA, L. LI, J. S. FU, D. JI, J. TAN, Z. WANG: Atmos. Chem. Phys., 19, 603-615, doi:10.5194/acp-19-603-2019(2019).  
 “Comparison of surface ozone simulation among selected regional models in MICS-Asia III - effects of chemistry and vertical transport for the causes of difference”
- 26) T. DAI, Y. CHENG, K. SUZUKI, D. GOTO, M. KIKUCHI, N. A. J. SCHUTGENS, M. YOSHIDA, P. ZHANG, L. HUSI, G. SHI, T. NAKAJIMA: Journal of Advances in Modeling Earth Systems, accepted (2019).  
 “Hourly aerosol assimilation of Himawari-8 AOT using the four-dimensional local ensemble transform Kalman filter”
- 27) D. GOTO, M. KIKUCHI, K. SUZUKI, M. HAYASAKI, M. YOSHIDA, T. M. NAGAO, M. CHOI, J. KIM, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU, E. OIKAWA, T. NAKAJIMA: Atmospheric Research, 217, 93-113 (2019).  
 “Aerosol model evaluation using two geostationary satellites over East Asia in May 2016”

#### <その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 大原利真：天気、61、75-76 (2014).  
 「排出インベントリ」
- 2) 大原利真：伝熱、54、226、22-26 (2015).  
 「東アジアにおけるPM<sub>2.5</sub>の広域汚染」
- 3) T. OHARA: PM<sub>2.5</sub>: Role of Oxidative stress in health effects and prevention strategy (ed. Y.-J. Li et al.), 47-56, Nova publishers, New York (2015).  
 “PM<sub>2.5</sub> pollution in East Asia: Current status and strategy towards improving air quality”
- 4) 大原利真、黒川純一：エアロゾル研究、33, 95-101 (2018).  
 「アジア全域と中国・日本における大気エアロゾル関連物質排出量の長期変化」

#### (2) 口頭発表（学会等）

- 1) 森野悠、大原利真、黒川純一、栗林正俊、鶴野伊津志、原宏：第55回大気環境学会 (2014)  
 「シミュレーションモデルを用いた窒素・硫黄沈着の経年変動解析」
- 2) 森野悠、永島達也、菅田誠治、高見昭憲、谷本浩志、大原利真：第55回大気環境学会 (2014)  
 「化学輸送モデルによるPM<sub>2.5</sub>成分濃度の再現性と時空間分解能の関係」
- 3) 五藤大輔、中島映至、Tie Dai、竹村俊彦、梶野瑞王、松井仁志、原由香里、高見昭憲、畠山史郎、杉本伸夫、清水厚、大原利真：日本気象学会2014年秋季大会 (2014)  
 「アジア域における硫酸塩エアロゾル分布に対するホストモデルの不確実性評価」
- 4) 五藤大輔、SALSA project team: RECCA-S8-創生D研究交流会 (2014)  
 「RECCA/SALSAにおける領域スケールの大気汚染物質シミュレーションとその影響評価」
- 5) 五藤大輔、中島映至、佐藤正樹：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2014)  
 「新しい全球エアロゾル化学輸送モデルの開発とその展望」
- 6) 五藤大輔、中島映至、上田佳代、Ng Chris-Fook-Sheng、高見昭憲、村田諒、SALSA project team: 日本気象学会2014年春季大会 (2014)

「都市における大気汚染物質シミュレーションとその健康影響評価」

- 7) 清水厚：第31回エアロゾル科学・技術研究討論会（2014）  
「過去4年度の常時監視データを利用した国内PM<sub>2.5</sub>濃度の統計解析」
- 8) T. OHARA: International Workshop on Air Quality in Asia: Inventory, Modeling and Climate Impacts of Greenhouse Gas emissions (GHG' s) and Aerosols; Remote sensing applications and Integrated Technologies, Hanoi, Vietnam, 2014  
“Current status of Air pollution in Asia and scientific challenge for SLCP mitigation”
- 9) Y. MORINO, K. TANABE, K. SATO, T. OHARA: 13th IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry, Natal, Brazil, 2014  
“Intercomparison of secondary organic aerosol models based on secondary organic aerosol to odd oxygen ratio in Tokyo”
- 10) Y. MORINO, T. NAGASHIMA, S. SUGATA, K. SATO, K. TANABE, A. TAKAMI, H. TANIMOTO, T. OHARA: The 14th Annual CMAS Conference, Chapel Hill, USA, 2014  
“Comprehensive model evaluation of PM<sub>2.5</sub> species over Japan: comparison among AERO5, AERO6, and AERO6-VBS modules”
- 11) D. GOTO, T. NAKAJIMA, R. MURATA, H. YASHIRO, K. SUDO, T. DAI, S. MISAWA, J. UCHIDA, T. OHARA, MEXT/RECCA/SALSA PROJECT TEAM: 13th IGAC Science Conference on Atmospheric Chemistry, Natal, Brazil, 2014  
“Development of simulating aerosols and tropospheric ozone in megacities using a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system”
- 12) D. GOTO, T. NAKAJIMA, M. SATOH, MEXT/RECCA/SALSA PROJECT TEAM: American Geophysical Union Fall Meeting 2014, San Francisco, USA, 2014  
“Development of aerosol-chemistry transport model coupled to non-hydrostatic icosahedral atmospheric model (NICAM) through applying a stretched grid system to regional simulations around Japan”
- 13) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, H. YASHIRO, K. SUDO, R. MURATA, S. MISAWA, J. UCHIDA, T. INOUE, H. TSURUTA, M. SATOH, H. TOMITA, T. OHARA, MEXT/RECCA/SALSA PROJECT TEAM: AOGS 2014, Sapporo, Japan, 2014  
“Simulation of atmospheric aerosols and ozone around Tokyo using a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system”
- 14) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, H. YASHIRO, R. MURATA, K. SUDO, S. MISAWA, J. UCHIDA, MEXT/RECCA/SALSA PROJECT TEAM: 2nd ABC-SLCP Symposium, Tokyo, Japan, 2014  
“Simulation of SLCP in Japan using a new atmospheric aerosol-chemistry model (NICAM-Chem) with a stretched-grid system”
- 15) T. OHARA: 2nd ABC-SLCP Symposium, Tokyo, Japan, 2014  
“Development of analysis/verification system for SLCP mitigation option based on structural analysis of air quality change events in Asia”
- 16) D. GOTO, E. OIKAWA, K. SUZUKI, T. SEIKI, AND T. NAKAJIMA: 14th Conference on Cloud Physics, Boston, USA, 2014  
“Estimating global aerosol optical properties and their radiative forcings by a global model with 14km grid spacing”
- 17) D. GOTO: International Workshop on Air Quality in Asia, Hanoi, Vietnam, 2014  
“Simulation of atmospheric air pollutants over Japan and its application to health impacts under MEXT/RECCA/SALSA project in Japan”
- 18) T. NAGASHIMA, Y. MORINO: 6th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in

East Asia, Zhuhai, China, 2015

“A multi-scale simulation system for SLCPs changes in Asia: Overview of the development plan and initial results”

- 19) 森野悠: NIES-JAMA共同 大気環境・健康影響コンファレンス (2015)  
「大気モデルによるPM<sub>2.5</sub>の再現性評価と計算精度向上に向けた取り組み」
- 20) T. NAGASHIMA, J. KUROKAWA, K. SUDO, T. OHARA, H. AKIMOTO: The 2nd Workshop on Atmospheric Composition and the Asian Monsoon, Bangkok, Thailand, 2015  
“Change in the near future surface air quality in Asia under different future emission scenarios”
- 21) D. GOTO, T. NAKAJIMA, T. DAI, T. TAKEMURA, M. KAJINO, H. MATSUI, A. TAKAMI, S. HATAKEYAMA, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU AND T. OHARA: 26th IUGG 2015, Prague, Czech Republic, 2015  
“Uncertainty of sulfate aerosols against differences between host climate models”
- 22) D. GOTO: International Workshop on Land Use/Cover Changes and Air Pollution in Asia, Bogor, Indonesia, 2015  
“Assessment of sulfate aerosols and its uncertainty due to clouds using global models”
- 23) Y. MORINO, K. SATO, K. TANABE, S. INOMATA, Y. FUJITANI: International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols, Beijing, China, 2015  
“Simulation of dimerization process using secondary organic aerosol models”
- 24) 永島達也, 森野悠, 谷本浩志, 高見昭憲 第56回大気環境学会年会 (2015)  
「化学輸送モデルによる東アジアの地表オゾン濃度の再現性検証」
- 25) Y. MORINO, K. UEDA, A. TAKAMI, T. NAGASHIMA, T. NOGUCHI: 14th CMAS conference, Chapel Hill, USA, 2015  
“Sensitivities of simulated PM<sub>2.5</sub> health effects and source contributions to aerosol modules - Comparison between AER06 and AER06-VBS”
- 26) T. NAGASHIMA: The 4th Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Workshop, Rome, Italy, 2015  
“On the seasonal cycle of surface O<sub>3</sub> in global chemical models”
- 27) Y. MORINO, K. UEDA, A. TAKAMI, T. NAGASHIMA: 9th International Conference on Acid Deposition, Rochester, USA, 2015  
“Sensitivities of simulated PM<sub>2.5</sub> health effects and source contributions to aerosol models”
- 28) 池田恒平, 谷本浩志, 奈良英樹, 向井人史, 野尻幸宏, 遠嶋康徳, 森野悠, 永島達也: 第21回大気化学討論会 (2015)  
「定期貨物船によるアジア・オセアニア域でのO<sub>3</sub>, CO, PM<sub>2.5</sub>, BC観測と全球・領域化学輸送モデルの比較」
- 29) 五藤大輔: 第2回「京」を中核とするHPCIシステム利用研究課題成果報告会 (2015)  
「全球規模大気環境汚染に関わる統合環境モデリング」
- 30) D. GOTO, Y. Sato, H. Yashiro, K. Suzuki, and T. Nakajima: Asian Conference on Meteorology, Kyoto, Japan, 2015  
“A model evaluation of global high-resolving simulated aerosol distributions”
- 31) 五藤大輔, 佐藤陽祐, 八代尚, 鈴木健太郎, 中島映至: 日本気象学会2015年度秋季大会 (2015)  
「全球高解像度計算によるエアロゾル分布 (1) モデル検証」
- 32) Y. MORINO, K. SATO, K. TANABE, S. INOMATA, Y. FUJITANI: JSPS-DFG Workshop on Aerosols  
“Physicochemical Properties of Atmospheric Aerosols and their Effects on Air Quality”

- and Public Health”, Mainz, Germany, 2015  
 “Simulation of dimerization process using secondary organic aerosol models”
- 33) D. GOTO: The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), Kobe, Japan, 2015  
 “Regional simulation of aerosols using NICAM-Chem with a stretched-grid system”
- 34) Y. MORINO, K. SATO, K. TANABE, S. INOMATA, Y. FUJITANI: The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Kobe, Japan, 2015  
 “Simulation of dimerization process using secondary organic aerosol models”
- 35) T. NAGASHIMA, Y. MORINO, H. TANIMOTO, K. IKEDA, A. TAKAMI: The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), Kobe, Japan, 2015  
 “Validation of the Asian surface ozone simulated by chemical transport models”
- 36) S. SAHU, T. OHARA, T. NAGASHIMA, J. KUROKAWA: The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), Kobe, Japan, 2015  
 “Development of High Resolution Emission Inventories for Emerging Sectors in India”
- 37) D. GOTO, Y. SATO, H. YASHIRO, T. SUZUKI, T. NAKAJIMA: 2015 American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, San Francisco, USA, 2015  
 “Simulation and validation of global aerosol distributions using a nonhydrostatic icosahedral atmospheric model with 14 km grid spacing”
- 38) 森野悠: 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 (2015)  
 「有機エアロゾルの揮発特性と発生源推計のモデリング」
- 39) D. GOTO: 2nd International Workshop on SLCs in Asia: Chemistry-climate modeling and its applications, Incheon, Korea, 2016  
 “Seamless global-to-regional simulation of aerosols with 0(10km) grid spacing”
- 40) T. NAGASHIMA, Y. MORINO, J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, D. GOTO, H. TANIMOTO, K. IKEDA, T. OHARA: 7th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, China, 2016  
 “Recent development of East Asian air quality assessment system”
- 41) 大原利真: 大気環境対策セミナー ～PM<sub>2.5</sub>の現状と今後の課題について～ (2015)  
 基調講演「PM<sub>2.5</sub>の最新の実態について」
- 42) 大原利真: 第25回産業医・産業看護全国協議会シンポジウム～PM<sub>2.5</sub>の環境問題の現状と今後～ (2015)  
 「PM<sub>2.5</sub>汚染の実態と今後の課題」
- 43) 大原利真: 市民公開シンポジウム～PM<sub>2.5</sub>の環境問題の現状と課題～ (2015)  
 「PM<sub>2.5</sub>汚染の実態と今後の課題」
- 44) 大原利真: 大気環境学会関東支部講演会 (2015)  
 「PM<sub>2.5</sub>問題の3年間を振り返る」
- 45) D. GOTO, K. UEDA, C.F.S. NG, A. TAKAMI, T. ARIGA, K. MATSUHASHI, T. NAKAJIMA: 2016 American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, San Francisco, USA, 2016  
 “Influence of model grid size on the simulation of PM<sub>2.5</sub> and the related excess mortality in Japan”
- 46) D. GOTO: International Meeting on Land Use and Emissions in South/Southeast Asia, Ho Chi Minh City, Vietnam, 2016  
 “Development of a global atmospheric aerosol model with 0(10km) grid spacing”
- 47) D. GOTO, T. NAKAJIMA: 15th AeroCom workshop, Beijing, China, 2016  
 “High resolved aerosol simulations using a non-hydrostatic icosahedral atmospheric

model (NICAM)”

- 48) D. GOTO, Y. SATO, H. YASHIRO, K. SUZUKI, T. NAKAJIMA: International Radiation Symposium 2016, Auckland, New Zealand, 2016  
 “Validation of high-resolution aerosol optical thickness by a global non-hydrostatic model using remote sensing measurements”
- 49) 五藤大輔, 中島映至: 日本気象学会2016年度秋季大会 (2016)  
 「モデル水平分解能のエアロゾル濃度への影響」
- 50) 五藤大輔, 中島映至: 第22回大気化学討論会 (2016)  
 「全球から領域規模に対応した大気汚染物質輸送モデルとその応用」
- 51) 五藤大輔, 中島映至: 第57回大気環境学会年会 (2016)  
 「全球雲解像モデルと結合した大気汚染物質シミュレーションとその応用」
- 52) 五藤大輔: 第57回大気環境学会年会健康影響分科会 (2016)  
 「大気汚染物質輸送モデリングとその曝露評価への応用」
- 53) 東博紀, 森野悠, 越川海, 永島達也, 王勤学, 古市尚基, 秋山千亜紀, 長谷川徹, 西内耕, 清本容子, 山田東也: 日本海洋学会2016年度春季大会 (2016)  
 「大気窒素沈着の経年変化が初夏の東シナ海陸棚域の一次生産に及ぼす影響」
- 54) K. IKEDA, H. TANIMOTO, T. NAGASHIMA, H. NARA, H. MUKAI, Y. NOJIRI, Y. TOHJIMA, Y. DAVILA, X. DONG, L. K. EMMONS, J. FLEMMING, J. FU, S. GHUDE, D. K. HENZE, J. E. JONSON, M. T. LUND, R. PARK, R. B. PIERCE, K. SUDO: International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project 2016 Science Conference, Breckenridge, USA, 2016  
 “Multi-model comparison of marine boundary layer O<sub>3</sub> in HTAP2 simulations with cargo ship observations in Asia-Pacific”
- 55) 越川海, 永島達也, 東博紀, 高見昭憲: 第14回環境研究シンポジウム (2016)  
 「東アジアの大気・海洋汚染」
- 56) 永島達也, 清水英幸, 青野光子, 山下尚之, 森野悠, 谷本浩志, 高見昭憲: 山地森林域の生物・環境モニタリング第10回ワークショップ (2016)  
 「観測とモデルの連携による東アジア越境大気汚染の総合的研究」
- 57) 永島達也: 第57回大気環境学会都市大気モデリング分科会 (2016)  
 「化学輸送モデルを使った発生源寄与解析・削減対策評価の現状と問題点」
- 58) T. NAGASHIMA: International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project 2016 Science Conference, Breckenridge, USA, 2016  
 “The mutual regional features in the seasonal cycle of surface O<sub>3</sub> simulated in the global chemical models”
- 59) 永島達也: 日本学術会議公開シンポジウム「越境大気汚染と酸性雨ー現場から将来予測までー」 (2016)  
 「観測とモデルの連携による東アジア越境大気汚染の総合的研究」
- 60) 永島達也, 森野悠, 梶野瑞王: 第22回大気化学討論会 (2016)  
 「地域化学輸送モデルによる地表オゾン濃度日変化の再現性検証」
- 61) 森野悠, 上田佳代, 高見昭憲, 永島達也, 野口宰良, 大原利眞: 第57回大気環境学会年会 (2016)  
 「PM<sub>2.5</sub>の発生源寄与評価・健康影響評価における有機エアロゾルモデルへの感度解析」
- 62) 森野悠: 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 (2016)  
 「有機エアロゾルの揮発特性のモデリング」
- 63) T. OHARA: International Meeting on Land Use and Emissions in South/Southeast Asia, Ho Chi Minh City, Vietnam, 2016  
 “S-12 project and Regional Emission Inventory in Asia (REAS)”
- 64) 大原利眞: 日本と中国の大気環境の現状と今後の研究に関するパネルディスカッション (2016)

「日本における大気汚染の現状と課題」

- 65) 大原利真：平成27年度大気環境学会関東支部講演会「大気汚染モデルの現状と課題」（2016）  
「大気汚染の排出インベントリとモデリング：概説」
- 66) 清水厚，杉本伸夫，西澤智明：第33回エアロゾル科学・技術研究討論会（2016）  
「日本国内のエアロゾル濃度に見られる週末効果の多角的な検討」
- 67) Y. MORINO, S. CHATANI, K. TANABE, Y. FUJITANI, T. MORIKAWA, K. SATO: 36th AAAR Annual Conference, Raleigh, North Carolina, USA, 2017  
“Contributions of condensable particulate matter to atmospheric organic aerosol in Japan”
- 68) Y. MORINO, K. SATO, K. TANABE, S. INOMATA, Y. FUJITANI: Goldschmidt2017, Paris, France, 2017  
“Modelling evaporative behaviours of secondary organic aerosol from  $\alpha$ -pinene and TMB”
- 69) 森野悠，茶谷聡，田邊潔，藤谷雄二，森川多津子，佐藤圭：第23回大気化学討論会（2017）  
「PM<sub>2.5</sub>に対する固定燃焼発生源起源の半揮発性化合物の寄与評価」
- 70) 森野悠，茶谷聡，田邊潔，藤谷雄二，森川多津子，佐藤圭：第58回大気環境学会年会（2017）  
「凝縮性ダストを考慮した有機エアロゾルの大気シミュレーション」
- 71) D. GOTO, M. KIKUCHI, K. SUZUKI, M. HAYASAKI, M. YOSHIDA, T. NAGAO, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU, T. NAKAJIMA: 2017 American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, New Orleans, USA, 2017  
“Model evaluation using a geo-stationary satellite and in-situ measurements around Japan in May 2016”
- 72) D. GOTO, Y. SATO, H. YASHIRO, K. SUZUKI, T. NAKAJIMA: 16th AeroCom workshop, Helsinki, Finland, 2017  
“Aerosol climatology with 14 km grid spacing using a non-hydrostatic global atmospheric transport model”
- 73) 五藤大輔，菊池麻紀，鈴木健太郎，早崎将光，吉田真由美，永尾隆，杉本伸夫，清水厚，中島映至：日本気象学会2017年度秋季大会（2017）  
「2016年5月における静止衛星ひまわりを用いたNICAMのエアロゾル再現性の検証」
- 74) 五藤大輔：超高解像度大気モデル開発ワークショップ（第5回NICAM開発者会議）（2017）  
「エアロゾル全球高解像度気候実験」
- 75) T. NAGASHIMA: The 5th Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Science Workshop, Toulouse, France, 2017  
“Summertime surface O<sub>3</sub> minimum in the East Asian maritime region: a comparison of observations with MIPs”
- 76) 永島達也，Jie L.，MICS Asia Project Phase III 参加者：第23回大気化学討論会（2017）  
「東アジアの地表オゾン濃度再現性に関するモデル間相互比較：MICS Asia IIIの初期結果」
- 77) 永島達也，Jie Li，秋元肇，MICS Asia Project Phase III 参加者：第3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（2017）  
「東アジアの地表オゾン濃度再現性に関するモデル間相互比較：MICS Asia IIIの初期結果」
- 78) 永島達也：環境省環境研究総合推進費S-12 プロジェクト第4回公開シンポジウム 地球温暖化と大気汚染による影響の軽減に向けた新たな取り組み—短寿命気候汚染物質（SLCP）の影響評価とその削減対策—（2018）  
「アジアにおける広域大気汚染：現状とその影響」
- 79) 河野 なつ美，永島達也，菅田誠治：第59回大気環境学会年会（2018）  
「日本全国における大気汚染物質の長期変化トレンドの統計的解析」

- 80) T. NAGASHIMA: 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Kagawa, Japan, 2018  
 "Insufficient representation of summertime surface ozone minimum in the East Asian maritime region by chemical transport models"
- 81) Y. MORINO, S. CHATANI, K. TANABE, Y. FUJITANI, T. MORIKAWA, K. TAKAHASHI, K. SATO, S. SUGATA: 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Kagawa, Japan, 2018  
 "Contributions of condensable particulate matter to atmospheric organic aerosol over Japan"
- 82) Y. MORINO, K. SATO, S. JATHAR, K. TANABE, S. INOMATA, Y. FUJITANI, C. CAPPA: 10th International Aerosol Conference (IAC), Saint Louis, Missouri, USA, 2018  
 "Modelling the Evaporative Behavior of Secondary Organic Aerosol Formed from  $\alpha$ -pinene"
- 83) Y. MORINO, S. CHATANI, K. TANABE, Y. FUJITANI, T. MORIKAWA, K. TAKAHASHI, K. SATO, S. SUGATA: 17th Annual CMAS Conference, Chapel Hill, USA, 2018  
 "Contributions of condensable particulate matter to atmospheric organic aerosol over Japan"
- 84) D.GOTO: 5th International SKYNET workshop 2019, New Delhi, India, 2019  
 "Global aerosol simulation with 14 km grid spacing"
- 85) D.GOTO: 2018 American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, Washington D.C., USA, 2018  
 "Global aerosol budget and its radiative forcing using a non-hydrostatic global atmospheric transport model with 14 km grid spacing"
- 86) D.GOTO, Y. SATO, H. YASHIRO, K. SUZUKI, T. NAKAJIMA: 2018 International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Science Conference, Takamatsu, Japan, September 2018  
 "Global aerosol climatology with 14 km grid spacing using a non-hydrostatic atmospheric transport model"
- 87) D.GOTO, M. KIKUCHI, K. SUZUKI, M. HAYASAKI, M. YOSHIDA, T. NAGAO, N. SUGIMOTO, A. SHIMIZU, T. NAKAJIMA: 15th Annual Meeting: Asia Oceania Geosciences Society (AOGS), Honolulu, Hawaii, USA, 2018  
 "Understanding of Atmospheric Aerosol Behavior Using a Semi-Regional Model, a Geostationary Satellite and in Situ Measurements over Japan in May 2016"
- 88) D. GOTO: Land Cover/Land Use Changes (LC/LUC) and Impacts on Environment in South/Southeast Asia -International Regional Science Meeting, Manila, Philippine, 2018  
 "Analysis of aerosol transport to Japan by combining seamless regional model and multiple observations including geostationary satellite: A case study of May 2016"
- 89) 五藤大輔: 日本気象学会2018年度秋季大会 (2018)  
 「全球高解像度シミュレーションによるエアロゾル物質収支と放射強制力」
- 90) T. NAGASHIMA: Land Cover/Land Use Changes (LC/LUC) and Impacts on Environment in South/Southeast Asia -International Regional Science Meeting, Manila, Philippine, 2018  
 "Multi - Model Inter - Comparison of Surface Ozone and Related Species Over East Asia"
- 91) N. KAWANO, T. NAGASHIMA, S. SUGATA: 99th American Meteorological Society (AMS) Annual Meeting, Phenix, USA, 2019  
 "Investigation of changing seasonal cycles of O<sub>3</sub> over Japan from 1980 to 2015"

### (3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

#### (4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 東北アジア学術交流懇話会 平成26年公開講演会（平成26年5月30日、参加者約50名）にて講演
- 2) 国立環境研究所夏の大会（平成26年7月19日、参加者約100名）にてPM<sub>2.5</sub>に関する展示における成果紹介・見学対応
- 3) 環境科学特別講座—研究最前線からの報告—「国境を越えたアジアの環境問題」（主催：上智大学・国立環境研究所、平成26年11月15日、参加者約90名）にて講演
- 4) 一般公開シンポジウム「地球温暖化と大気汚染による影響の軽減に向けたあらたな取り組み—短寿命気候汚染物質の影響評価とその削減対策—」（主催：S-12、平成27年1月29日、東京大学本郷キャンパス福武ホール、観客約100名）にて講演
- 5) NIES-JAMA共同 大気環境・健康影響コンファレンスにおける講演「大気モデルによるPM<sub>2.5</sub>の再現性評価と計算精度向上に向けた取り組み」（平成27年6月11日、参加者約100名）
- 6) 私立茗溪学園中学高等学校における科学講演会（平成27年6月26日、参加者約60名）
- 7) 私立茗溪学園中学高等学校における科学講演会（平成28年7月8日、参加者約50名）
- 8) 国立環境研究所夏の大会（平成27年7月18日、参加者約100名）にてPM<sub>2.5</sub>に関する展示における成果紹介・見学対応
- 9) 国立環境研究所夏の大会（平成28年7月23日、参加者約100名）にてPM<sub>2.5</sub>に関する展示における成果紹介・見学対応
- 10) 日本学術会議公開シンポジウム「越境大気汚染と酸性雨—現場から将来予測まで—」（平成28年11月8日、日本学術会議講堂、観客約100名）にて講演
- 11) 国立環境研究所公開シンポジウム「私たちの安心・安全な環境づくりとは—持続可能性とその課題—」（平成29年6月16日及び23日、参加者それぞれ約200名・600名）にて講演
- 12) 国立環境研究所夏の大会（平成29年7月22日、参加者約100名）にてPM<sub>2.5</sub>に関する展示における成果紹介・見学対応
- 13) 一般公開シンポジウム「地球温暖化と大気汚染による影響の軽減に向けた新たな取り組み—短寿命気候汚染物質（SLCP）の影響評価とその削減対策—」（主催：S-12、平成30年1月23日、京都大学吉田キャンパス百周年時計台記念館、観客約100名）にて講演
- 14) 国立環境研究所夏の大会（平成30年7月21日、参加者約100名）にてPM<sub>2.5</sub>に関する展示における成果紹介・見学対応
- 15) エアロゾル学会若手フォーラム「はじめてのエアロゾルシミュレーション」（平成31年2月4日、参加者約30名）にて講演
- 16) 国際公開シンポジウム「効果的な大気改善策の立案に資するモデルの開発と適用」（平成31年2月18日、参加者約40名）にて講演

#### (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

#### (6) その他

##### 受賞

大原利真ほか、大気環境学会論文賞、(2件) 2014年9月、(1件) 2015年9月

森野 悠、大気環境学会進歩賞、2014年9月

河野なつ美、大気環境学会年会ポスター賞、2018年9月

## 8. 引用文献

- 1) K. SUDO et al.: J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001JD001113 (2002)  
“CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description”

- 2) K. SUDO et al.: J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001/JD001114 (2002)  
“CHASER: A global chemical model of the troposphere 2. Model results and evaluation”
- 3) D. BYUN and K.L. SCHERE: Appl. Mech. Rev., 59, 51-77 (2006)  
“Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Model-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system”
- 4) D. GOTO et al.: Geosci. Model Dev., 8, 235-259 (2015)  
“Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan”
- 5) M. SATO et al.: J. Comput. Phys., 227, 3486-3514 (2008)  
“Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model (NICAM) for global cloud resolving simulations”
- 6) H. TOMITA: J. Meteorol. Soc. Jpn., 86A, 107-119 (2008)  
“A stretched grid on a sphere by new grid transformation”
- 7) T. TAKEMURA et al.: Journal of Climate, 15, 4, 333-352 (2002)  
“Single-Scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model”
- 8) T. TAKEMURA et al.: J. Geophys. Res., 110, doi:10.1029/2004JD005029 (2005)  
“Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”
- 9) E. KALNAY et al.: Bull. Amer. Meteor. Soc., 77, 437-470 (1996)  
“The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project”
- 10) S. KOBAYASHI et al.: J. Meteor. Soc. Japan, 93, 5-48 (2015)  
“The JRA-55 Reanalysis: General specifications and basic characteristics”
- 11) H. AKIYOSHI et al.: J. Geophys. Res., 114, D03103 (2009)  
“A CCM simulation of the breakup of the Antarctic polar vortex in the years 1980-2004 under the CCMVal scenarios”
- 12) W. P. L CARTER: Report to the United States Environmental Protection Agency (2000)  
“Implementation of SAPRC-99 chemical mechanism into the Models-3 framework”
- 13) A. NENES et al.: Aquat. Geochem., 4, 123-152 (1998)  
“ISORROPIA: A new Thermodynamic Equilibrium Model for Multiphase Multicomponent Inorganic Aerosols”
- 14) G. YARWOOD: Final Report to the US EPA, RT-0400675, 8 December (2005)  
“Updates to the Carbon Bond chemical mechanism: CB05”
- 15) N. M. DONAHUE et al.: Environ. Sci. Technol. 40: 02635-02643 (2006)  
“Coupled Partitioning, Dilution, and Chemical Aging of Semivolatile Organics”
- 16) A. L. ROBINSON et al.: Science 315: 1259-1262 (2007)  
“Rethinking Organic Aerosols: Semivolatile Emissions and Photochemical Aging”
- 17) W. C. SKAMAROK et al.: NCAR Technical Note, NCAR/TN-475+STR (2008)  
“A description of the Advanced Research WRF Version 3”
- 18) J. KUROKAWA et al.: Atmos. Chem. Phys., 13, 11019-11058 (2013)  
“Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission Inventory in ASia (REAS) Version 2”
- 19) JATOP (Japan Auto-Oil Program): JPEC-2011AQ-02-06, Tokyo, Japan (in Japanese) (2012)  
“Emission Estimates from Motor Vehicles”
- 20) JATOP (Japan Auto-Oil Program): JPEC-2011AQ-02-07, Tokyo, Japan (in Japanese) (2012)  
“Emission Estimates from Sources Other than Motor Vehicles”

- 21) G. R. VAN DER WERF et al.: Atmos. Chem. Phys. 6: 3423-3441 (2006)  
“Interannual Variability in Global Biomass Burning Emissions from 1997 to 2004”
- 22) A. B. GUENTHER et al.: Geosci. Model Dev. 5: 1471-1492 (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”
- 23) T. DIEHL et al.: Atmos. Chem. Phys. Discuss. 12: 24895-24954 (2012)  
“Anthropogenic, Biomass Burning, and Volcanic Emissions of Black Carbon, Organic Carbon, and SO<sub>2</sub> from 1980 to 2010 for Hindcast Model Experiments”
- 24) K. KAZAHAYA et al.: J. Geogr. 110: 271-279 (in Japanese) (2001)  
“Volcanic Gas Study of the 2000 Miyakejima Volcanic Activity: Degassing Environment Deduced from Adhered Gas Component on Ash and SO<sub>2</sub> Emission rate”
- 25) J. F. LAMARQUE et al.: Atmos. Chem. Phys., 10, 7017-7039 (2010)  
“Historical (1850-2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application”
- 26) M. CRIPPA et al.: Atmos. Chem. Phys., 16, 3825-3841 (2016)  
“Forty years of improvements in European air quality: regional policy-industry interactions with global impacts”
- 27) M. CRIPPA et al.: Earth Syst. Sci. Data, 10, 1987-2013 (2018)  
“Gridded emissions of air pollutants for the period 1970-2012 within EDGAR v4.3.2”
- 28) J. T. RANDERSON et al.: ORNL DAAC, Oak Ridge, Tennessee, USA.  
<https://doi.org/10.3334/ORNLDAAC/1293> (2017)  
“Global Fire Emissions Database, Version 4.1 (GFEDv4)”
- 29) A. Shimizu et al.: Optical Engineering, 56 (3), 031219 (2016)  
“Evolution of a lidar network for tropospheric aerosol detection in East Asia”
- 30) H. AKIMOTO et al.: Atmos. Chem. Phys., 19, 603-615 (2019)  
“Comparison of surface ozone simulation among selected regional models in MICS-Asia III - effects of chemistry and vertical transport for the causes of difference”
- 31) 山神真紀子、池盛文数：第25回全国環境研究所交流シンポジウム予稿集、10-11 (2010)  
“PM<sub>2.5</sub>における平日と週末の違いおよび高濃度日の特徴”
- 32) 鶴野伊津志ら：大気環境学会誌, 52(6), 177-184 (2017)  
“PM<sub>2.5</sub>越境問題は終焉に向かっているのか？”
- 33) T. OKUDA: Atmos. Environ., 45, 2789-2794 (2011)  
“The impact of the pollution control measures for the 2008 Beijing Olympic Games on the chemical composition of aerosols”
- 34) X.-F. HUANG et al.: Atmos. Chem. Phys., 10, 8933-8945 (2010)  
“Highly time-resolved chemical characterization of atmospheric submicron particles during 2008 Beijing Olympic Games using an Aerodyne High-Resolution Aerosol Mass Spectrometer”
- 35) S. WANG et al.: Environ. Sci. Technol, 44, 2490-2496 (2010)  
“Quantifying the Air Pollutants Emission Reduction during the 2008 Olympic Games in Beijing”
- 36) S. SINGH et al.: Energy for Sustainable Development, 19, 1-6 (2014)  
“Comparative study of indoor air pollution using traditional and improved cooking stoves in rural households of Northern India”
- 37) O. S. PATANGE et al.: Environ. Sci. Technol., 49, 4749-4756 (2015)  
“Reductions in Indoor Black Carbon Concentrations from Improved Biomass Stoves in

Rural India”

38) I. H. REHMAN et al.: Atmos. Chem. Phys. 11, 7289–7299 (2011)

“Black carbon emissions from biomass and fossil fuels in rural India”

## II-2 アジア域排出インベントリシステムの開発

一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター 黒川 純一  
猪股 弥生（平成26～27年度）

平成26～30年度累計予算額：84,144千円

（うち平成26年度：15,912千円、平成27年度：15,117千円、平成28年度：14,361千円、平成29年度：19,874千円、平成30年度：18,880千円）

累計予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

アジア域は世界で最も大気汚染物質を排出する地域となっており、大気汚染、地球温暖化双方を緩和する共便益を持つSLCPの削減はアジアにおいてメリットが大きい。最適削減シナリオを検討するためには、SLCP関連物質の排出量と発生源対策による効果を精度良く把握することが不可欠である。そこで本研究では、アジアにおける排出量の詳細解析などを可能とする、アジア域排出インベントリシステムを開発し、それを用いてアジア域長期ヒストリカルインベントリを開発した。また、その結果を用いて、アジアにおけるSLCP関連物質の排出実態と経年変化について評価を行った。

大気汚染物質、地球温暖化関連物質のアジア全域における2010-2015年平均年間排出量、過去60年間の増加率は、SO<sub>2</sub>: 43.5Tg/年, 13.6; NO<sub>x</sub>: 49.9TgNO<sub>2</sub>/年, 27.1; CO: 269Tg/年, 4.82; NMVOC: 57.1Tg/年, 8.27; NH<sub>3</sub>: 33.3Tg/年, 3.71; CO<sub>2</sub>: 18.4Pg/年, 16.4; PM<sub>10</sub>: 28.4Tg/年, 4.92; PM<sub>2.5</sub>: 20.3Tg/年, 4.50; BC: 3.39Tg/年, 4.52; OC: 6.92Tg/年, 2.64であった。この60年の間に全ての物質の排出量は大幅に増加したが、変化の傾向には物質・地域によって違いが見られていた。日本では、主に1960-70年代に増加した後、発生源対策の効果によって大きく減少した。中国では、2000年代初頭から急増したが、近年ではほとんどの物質で減少に転じた。一方、インドや東南アジアでは増加傾向が続いており、特にインドは、近年中国が減少傾向にあることもあり、アジアにおける重要性が増してきている。

本研究では、中国のNO<sub>x</sub>を対象に、排出量逆推計モデルの結果を用いて排出インベントリの改良を試みた。排出インベントリの2010年から2011年の増加率が排出量逆推計の結果より大きいことに着目し、差異の大きい省のセクター別排出量の増分を比較した結果を踏まえ、発電所における脱硝装置導入率の見直しを行った。一方、排出インベントリの結果を基に排出量逆推計モデルも改良され、排出量逆推計モデルと排出インベントリの更新結果は良い一致を示した。この様に、排出インベントリと排出量逆推計モデルの結果を比較することは、双方の改善につながることを示された。

### [キーワード]

排出インベントリ、アジア、SLCP関連物質、長期トレンド、発生源対策効果

#### 1. はじめに

経済成長と人口増加が著しいアジア域では、エネルギー、自動車による輸送、工業製品、農畜産物などへの需要の増加が続いており、その結果、世界で最も大気汚染物質、地球温暖化関連物質を排出する地域となっている。特に大気汚染の激しい地域では、健康への悪影響、農作物生産量の減少、視程の悪化による危険など、日常生活にも大きく影響が及んでおり、特に最近ではインドの大気質の悪化が深刻な問題となっている。また、中国では近年発生源対策により大気汚染物質濃度が低下傾向にあると言われているが、まだ十分に改善された状況ではなく、最近ではタイや韓国の大気質の悪化が報道されるなど、アジアにおいて大気質の改善は依然喫緊の課題である。

S-12のキーワードである短寿命気候汚染物質（SLCP）は、地球温暖化に影響を与える物質のうち比較的大気中の寿命が短いものを指し、二酸化炭素に比べて効果は限定的ではあるものの、その削減が地球温暖化の緩和に比較的速やかに作用すると考えられている物質である。また、SLCPには、オゾン、黒色

炭素（ブラックカーボン、BC）が含まれており、それらの削減は大気質を改善する。すなわち、SLCPの削減は大気汚染・地球温暖化双方を緩和する共便益（コベネフィット）を持っており、大気汚染対策が急務となっているアジアにおいてメリットが大きいと考えられてきた。実際、オゾンやBCへの発生源対策の多くは、PM<sub>2.5</sub>の主要成分である硫酸エアロゾル、硝酸エアロゾル、有機エアロゾルを削減し、効果的な大気質の改善が期待される。しかしながら、硫酸・硝酸・有機エアロゾルは大気を冷却する効果があるため、その削減は地球温暖化対策の観点からはマイナスとなる。更に、オゾンの前駆物質である窒素酸化物（NO<sub>x</sub>）を減らすことは、重要なSLCPの一つであるメタン（CH<sub>4</sub>）を増加する可能性があること、BC削減の地表気温減少への効果は限定的であることなども指摘されてきている。従って、SLCPの削減によるコベネフィットを得るためには、様々な物質による効果を考慮した最適な削減シナリオが必要となるが、そのためには、SLCP関連物質の排出量と発生源対策による効果を精度良く把握することが必須である。また、大気質モデル、化学気候モデルを用いたSLCP削減効果の評価・検証も必要であり、そのためには、長期ヒストリカル排出インベントリが不可欠である。

このような背景のもと、本研究ではKurokawa et al. (2013)<sup>1)</sup>により開発された、アジア域排出インベントリRegional Emission inventory in ASia (REAS) version 2 (以降REASv2)をベースに、アジアにおける排出量の詳細解析、任意シナリオによる大気モデル入力データの構築、排出量逆推計結果による評価などを可能とするアジア域排出インベントリシステムの開発を行った。また、そのシステムを用いてアジア域長期ヒストリカル排出インベントリを開発するとともに、アジアにおけるSLCP関連物質の排出実態と経年変化について評価を行った。

## 2. 研究開発目的

1. で述べた通り、発生源対策が大気汚染と地球温暖化に与える影響は複雑であり、特に大気汚染対策が急務であるアジア域では、双方を効果的に緩和するコベネフィットを得ることは容易ではない。その目的のためには、関連物質の排出量そのものに加え、詳細な発生源毎の影響や対策の効果を定量的に把握すること、大気質モデル、化学気候モデルを用い、様々な対策が大気汚染物質濃度、地表気温や降水量などに与える応答を評価することが必要である。S-12の前身であるS-7で開発されたREASv2は、アジア全域を対象とした排出インベントリとして、国内外の様々な研究やプロジェクトで活用されてきた<sup>2,3)</sup>。しかしながら、REASv2の排出量は、特定の活動量（燃料種、工業製品生産量など）区分、セクター（発電所、製鉄業など）区分に集約された形で推計されるため、適用されている燃焼管理技術や除去技術別に排出量を推計し、その効果を評価できる仕組みとはなっていなかった。また、発生源対策を評価する感度実験用の大気モデル入力データを作成することが困難であった。

以上の背景を踏まえ、本研究では、REASv2をベースにしつつ、REASv2では対応できなかった以下の点を可能とするアジア域排出インベントリシステムを新規に開発した。

- 任意の発生源、排出プロセス、排出に関連する技術、除去に関連する技術に対する排出量の推計
- 国・領域別の排出量データを任意のレベルでテーブル化
- 個別発生源対策の定量評価
- 任意のシナリオに対する排出量の推計
- 任意のシナリオに対する大気モデル入力用グリッドデータの作成

なお、自動車を起源とする排出量の推計、農業活動を起源とするアンモニア（NH<sub>3</sub>）の排出量の推計については、他の発生源と推計手法が大幅に異なるため、個別に排出量推計システムを開発した。

アジア域では、急速な経済成長に伴い、20世紀後半以降大気汚染物質、地球温暖化関連物質の排出量が大幅に増加した。従って、化学気候モデルによる長期シミュレーションを実施する際には、その状況が反映された排出量データが不可欠となる。また、大気汚染物質排出量の経年変化は、その経済成長や大気汚染対策導入のタイミングなどにより、地域によって大きく異なっている。従って、過去の大気質変化事例を対象に、社会経済変化、大気汚染対策と排出量変化の関係を定量評価すること、大気質モデルを用いて、発生源対策の大気汚染物質濃度に対する効果を定量評価することは、該当国のみならず、他の国・領域の現在及び将来の発生源対策を考慮する際の判断材料となる。そこで、本研究で開発され

たアジア域排出インベントリシステムを用い、20世紀後半から現在までを対象にアジア域長期ヒストリカル排出インベントリを開発し、SLCP関連物質の排出実態と経年変化及び発生源対策の効果を評価した。また、大気質モデルグループ（サブテーマ2）、排出量逆推計モデルグループ（サブテーマ3）、全球化学気候モデルグループ（テーマ3）には大気モデル入力用グリッドデータを提供した。更に、統合モデルグループ（テーマ2）には、アジア太平洋統合評価モデル（AIM）のインベントリ構造と整合の取れた排出量テーブルデータを提供した。また、アジア域排出インベントリシステムとAIMの排出に関わる基礎情報の共有化を進めた。なお、本研究で開発されたアジア域長期ヒストリカル排出インベントリの最終成果物をREAS version 3（REASv3）と定義する。

排出インベントリには、活動量、排出係数、除去率設定、排出量の時空間分配など、様々な要因によって不可避の不確実性が存在する。一方、観測データ、大気質モデル、数値アルゴリズムを駆使して排出量を推計する排出量逆推計モデルにも不確実性は存在する。従って、排出インベントリと排出量逆推計の結果を比較解析することは、排出インベントリの改良のみならず、排出量逆推計モデルの改良にも資する。本研究では、サブテーマ3と連係し、特に中国のNO<sub>x</sub>に重点を置いて、排出量逆推計モデルの結果を活用した排出インベントリの改良を行った。また、排出量逆推計モデルの課題点についても指摘を行った。

### 3. 研究開発方法

#### (1) アジア域排出インベントリシステムの開発

本研究で開発したアジア域排出インベントリシステムは、以下の4つ構成要素から成り立っている。

- 排出量推計システム
- 排出量推計システム用入力ファイル生成システム
- 排出量推計結果集計システム
- 大気モデル入力用グリッドデータ生成システム

以下、各システムの開発方法について記述する。なお、本システムのプラットフォームはLinuxとし、開発言語は、システム制御はCシェルスクリプト、データ処理・ファイル生成プログラムはFORTRAN90を使用した。

#### 1) 排出量推計システム

##### a. 標準排出量推計システム

本システムは、アジア域排出インベントリシステムの中核であり、任意の活動量、セクター、排出に関連する技術、除去に関連する技術に対する排出量 $E_{i,j,k,l}$ を以下の式に従って推計する。

$$E_{i,j,k,l} = A_{i,j} \times A\_EF\_R_{i,j,k,l} \times EF_{i,j,k} \times (1 - R_{i,j,l} \times RA_{i,j,l})$$

i           活動量カテゴリ、  
j           セクターカテゴリ  
k           排出に関わる技術  
l           排出後除去技術

$A_{i,j}$        活動量カテゴリiの、発生源カテゴリjに対する活動量の総量

$EF_{i,j,k}$     $A_{i,j}$ の活動量に関連する、排出に関わる技術kに対する排出係数（排出後除去率を考慮しない場合の値）

$R_{i,j,l}$         $EF_{i,j,k}$ による排出に対する、除去技術lによる排出後除去率（フル稼働時）

$RA_{i,j,l}$       $R_{i,j,l}$ の除去技術の稼働率

$A\_EF\_R_{i,j,k,l}$   $A_{i,j}$ の活動量総量の内、排出に関わる技術k、除去技術lの組に対する割合

なお、燃料燃焼起源の二酸化硫黄（SO<sub>2</sub>）の排出量については、 $EF_{i,j,k}$ を以下の式で置き換えて推計する。

$$E_{i,j,k} = NCV_{i,j,k} \times S_{i,j,k} \times EFR_{i,j,k} \times 2.0$$

NCV<sub>i,j,k</sub> 発生源カテゴリjで、燃焼技術kの設備で消費された、カテゴリiの燃料のNet Calorific Value (熱量単位の燃料消費量を重量単位に換算)

S<sub>i,j,k</sub> 発生源カテゴリjで、燃焼技術kの設備で消費された、カテゴリiの燃料中硫黄分の重量比率

EFR<sub>i,j,k</sub> 発生源カテゴリjで、燃焼技術kの設備で消費された、カテゴリiの燃料中硫黄分が燃焼後に大気中に放出される割合

## 2.0 Sの重量をSO<sub>2</sub>に換算するためのファクター

これにより、排出量の最小単位は（発生源カテゴリ、活動量カテゴリ、排出に関わる技術、除去技術）の4つの次元を持つことになり、排出に関わる技術、除去技術別の対策効果を定量的に検証する事が可能となる。なお、標準排出量推計システムの基本式では対応できない自動車起源排出量、農業活動起源NH<sub>3</sub>排出量の推計については個別に排出量推計システムが必要となる。それぞれb、cで説明する。

本システムに必要となる入力ファイルは、2)で説明する排出量推計システム用入力ファイル生成システムで作成する。また、本システムより出力される排出量推計結果ファイルは、排出量推計結果集計システムの入力データとなり、目的に応じて集計される。

### b. 自動車起源排出量推計システム

自動車起源については、任意の車種別の走行時排出量E<sub>HOT<sub>i</sub></sub>を以下の式に従って推計する。

$$E_{HOT_i} = \sum_j (NV_i \times R_{i,j} \times VKT_{i,j} \times EF_{HOT_{i,j}})$$

i	車種
j	年式（生産年次）
NV <sub>i</sub>	車種iの稼働台数
R <sub>i,j</sub>	車種iにおける年式jの稼働台数比率
VKT <sub>i,j</sub>	年式jの車種iの一台あたり年間走行量
EF <sub>HOT</sub>	走行時排出係数

NO<sub>x</sub>、一酸化炭素（CO）、揮発性有機化合物（NMVOC）、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、有機炭素（OC）については、始動時排出量E<sub>COLD<sub>i</sub></sub>を以下の式に従って推計する。

$$E_{COLD_i} = \sum_j (NV_{i,j} \times R_{i,j} \times VKT_{i,j} \times EF_{HOT_{i,j}} \times \beta \times F)$$

i	車種
j	年式（生産年次）
NV <sub>i</sub>	車種iの稼働台数
R <sub>i,j</sub>	車種iにおける年式jの稼働台数比率
VKT <sub>i,j</sub>	年式jの車種iの一台あたり年間走行量
EF <sub>HOT</sub>	走行時排出係数
β	始動時走行比率
F	補正係数

車種iの最終的な走行時排出量は、E<sub>HOT<sub>i</sub></sub>とE<sub>COLD<sub>i</sub></sub>を加算した値となる。

NMVOCについては、走行時排出（テールパイプ排出）に加え、蒸発を起源とする排出（Diurnal Breathing Loss、Hot Soak Loss、Running Loss）を考慮する必要がある。この蒸発発生源からの排出量E<sub>EVP<sub>i,d</sub></sub>を以下の式に従って推計する。

$$E_{EVP_{i,d}} = NV_i \times EF_{EVP_i}(T_d)$$

i	車種
d	推計対象年の日
NV <sub>i</sub>	車種iの稼働台数
EF <sub>EVP<sub>i</sub></sub>	車種iの一日あたり蒸発起源NMVOC排出量（気温に依存）
T <sub>d</sub>	推計対象日dの気温

### c. 農業起源NH<sub>3</sub>排出量推計システム

NH<sub>3</sub>の排出は、特にアジアにおいては大部分が農業活動を起源としており、家畜排泄物管理、家畜排

排泄物肥料施肥、化学肥料施肥を排出量推計対象とする。

任意の家畜種別の排泄物管理起源排出量 $E_{MM_i}$ を、以下の式に従って推計する。

$$E_{MM_i} = A_i \times EF_{MM_i}$$

$i$  家畜種

$A_i$  家畜種 $i$ の頭数

$EF_{MM_i}$  家畜種 $i$ からの排泄物が、排泄物管理中に排出する $NH_3$ の一頭あたりの量

同様に、家畜種別の排泄物肥料施肥起源排出量 $E_{L\_FER_i}$ を、以下の式に従って推計する。

$$E_{L\_FER_i} = A_i \times EF_{L\_FER_i}$$

$i$  家畜種

$A_i$  家畜種 $i$ の頭数

$EF_{L\_FER_i}$  家畜種 $i$ からの排泄物が、肥料として使用された場合に排出される $NH_3$ の一頭あたりの量

化学肥料種別の化学肥料施肥起源排出量 $E_{S\_FER_i}$ については、以下の式に従って推計する。

$$E_{S\_FER_i} = A_i \times EF_{S\_FER_i}$$

$i$  化学肥料種

$A_i$  化学肥料種 $i$ の投入量

$EF_{S\_FER_i}$  化学肥料種 $i$ の投入量あたりの排出係数

## 2) 排出量推計システム入力ファイル生成システム

アジア域排出インベントリシステムを開発する目的の一つは、任意のシナリオに対する排出量の推計を可能とすることである。従って、排出量推計システム入力ファイルを出力するプログラムについては、入力データのフォーマットをシンプルにし、また、プログラム中でのデータ変換処理を原則行わない仕様とした。これにより、例えばAIMから活動量やそのドライバ、排出係数や除去率の技術設定に関する情報がシナリオとして提供された場合、それらを基に本システムの入力データを作成することで、そのシナリオに対応する排出量を推計することが可能となる。

本システムは以下のサブシステムから成り立っている。

- 燃料消費量ファイル生成システム
- 産業製品生産量ファイル生成システム
- Net Calorific Value設定ファイル生成システム
- 燃料中硫黄分設定ファイル生成システム
- 燃料中硫黄分燃焼後放出率設定ファイル生成システム
- 排出係数設定ファイル生成システム
- 除去率設定ファイル生成システム
- 活動量・排出に関わる技術・除去技術関係設定ファイル生成システム
- 自動車台数ファイル生成システム
- 自動車一台あたり年間走行距離ファイル生成システム
- 自動車排出係数ファイル生成システム
- NMVOC固定蒸発発生源活動量ファイル生成システム
- NMVOC固定蒸発発生源排出係数設定ファイル生成システム
- 家畜頭数ファイル生成システム
- 化学肥料消費量ファイル生成システム

本研究では、アジア域長期ヒストリカル排出インベントリの開発のために整備した、活動量、排出係数設定、除去率設定などの情報を基に、本システムの入力データを整備した。

## 3) 排出量推計結果集計システム

本システムは、排出量推計システムによって生成された国・領域別、発生源別排出量推計結果ファイ

ル、また、排出量推計システム入力データファイルを基に、事後の解析や、外部システムの入力データに適したフォーマットに変換して出力するシステムである。本研究では以下のサブシステムを整備したが、最終出力フォーマットは目的に応じて異なるため、プログラムを修正することによるカスタマイズは必要となる。

- 燃料燃焼起源排出量推計結果集計システム
- 非燃料燃焼起源排出量推計結果集計システム
- 発電所起源排出量推計結果集計システム
- 自動車起源排出量推計結果集計システム
- 主要セクター別排出量トレンド集計システム
- 排出量推計システム入力データ集計システム

なお、燃料燃焼起源排出量推計結果集計システム、非燃料燃焼起源排出量推計結果集計システムの出力フォーマットは、AIMとの互換性を念頭に設計した。

#### 4) 大気モデル入力用グリッドデータ生成システム

本システムは、排出量推計システムによって生成された国・領域別、発生源別排出量推計結果ファイルを基に、大気質モデル、化学気候モデル入力用のグリッドデータを生成するシステムである。グリッドデータのフォーマットについては、既に国内外の研究者に幅広く提供されているREASv2のフォーマットを踏襲することとし、グリッド化システムについても原則としてREASv2の手法を踏襲した<sup>1)</sup>。ただし、グリッド分配指標データ（発電所位置情報、セメント工場位置情報、鉄鋼生産工場位置情報、人口分布など）、季節変動指標データ（気温依存性排出量の季節変動、化学肥料の施肥時期など）については、新規に収集された情報に基づいて更新した。

#### 5) 排出インベントリ基本フレームワークとコード設定

本システムを用いて実際に排出インベントリを作成するためには、基本フレームワークを設定し、それに基づいて、対象となる物質、国・領域、発生源、活動量、排出量推計に関わるパラメータ（排出係数、除去率など）のコード設定を行う必要がある。本研究で開発したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリのフレームワークについては（2）で説明する。コード設定については煩雑であり、本研究成果において本質的な内容ではないため、本報告書では割愛する。

### （2）アジア域長期ヒストリカル排出インベントリの開発

#### 1) フレームワーク

表(2)-1は本研究で開発したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリREASv3の基本構成を、図(2)-1はその推計対象領域を示したものである。以下各項目について説明する。

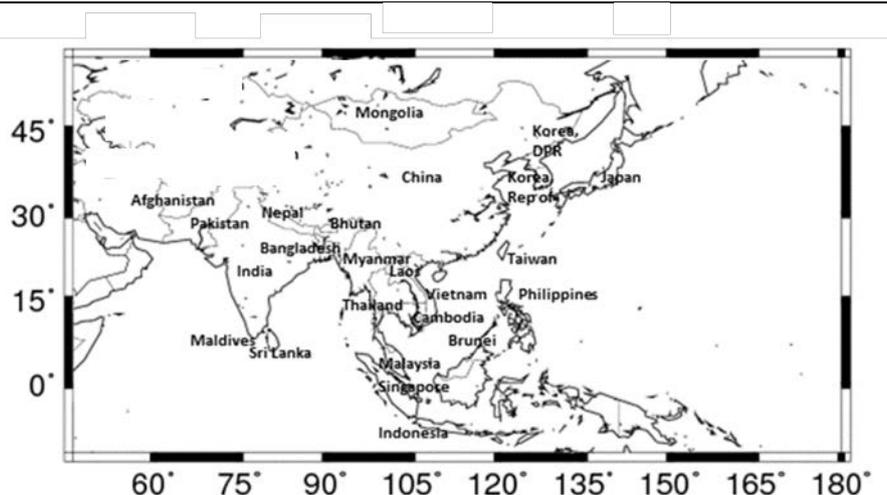
- 対象物質については、REASv2からCH<sub>4</sub>と一酸化二窒素（N<sub>2</sub>O）を除外した。CH<sub>4</sub>はSLCPに含まれる物質であるが、S-12全体の主要研究対象外であること、主要発生源が他の物質と大幅に異なることから、本研究でも対象外とした。また、N<sub>2</sub>OはSLCPに含まれないため対象から除外した。CO<sub>2</sub>もSLCPではないが、燃料燃焼、セメント生産などを主要発生源としており、SLCP関連物質排出量トレンドの指標となるため、参考データとして対象に含めた。
- 対象期間は1950-2015年とした。全期間を通じて首尾一貫したデータを作成するため、REAS version 1（以降REASv1）<sup>4)</sup>（対象年1980-2003年）、REASv2（対象年2000-2008年）は参考データとして扱い、原則全てのデータを新規に作成した。ただし、一部のデータについてはREASv1、REASv2のデータを使用した（5）特別な取り扱い参照）。
- 対象領域については、REASv2から中央アジア、アジア域ロシアを除外した。これは、中央アジア、アジア域ロシアは、特に過去のデータ及び情報の収集が困難であるが、S12-1の大気質モデルシミュレーションにおいては重点対象地域ではないこと、また、化学気候モデルのシミュレーションについては、全球排出インベントリで対応が可能であることが理由である。国・領域単位に

については、中国は省別、日本及びインドはそれぞれ6、17のサブ領域を定義し、その他は国単位で取り扱うこととした。

- 対象発生源は、基本的にREASv2と同様であるが、一部サブセクター定義の詳細化（非金属鉱物産業をセメント、石灰、レンガ、ガラス、その他に分割など）、活動量定義の詳細化（自動車車種の細分化など）を行った。なお、航空機起源、船舶起源排出量については、全球排出インベントリとの連続性を確保することが実質的に不可能なことから、本研究では推計対象外とした。
- 空間分解能、時間分解能についてはREASv2と同様とした。
- 日本、韓国、台湾からの排出量については、REASv2では外部プロジェクトデータ、公式データを使用した。本研究では一部を除いて独自にデータを作成した（5）特別な取り扱い参照）。

表(2)-1 アジア域長期ヒストリカル排出インベントリREASv3の基本構成。

項目	内容
対象物質	SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , CO, NMVOC, NH <sub>3</sub> , PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub> , BC, OC, CO <sub>2</sub>
対象期間	1950-2015年
対象領域	東、東南、南アジア（中国・日本・インドは領域別、他は国別）
対象発生源	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 燃料燃焼起源（化石燃料、植物燃料）</li> <li>● 産業プロセス起源（金属、非金属、燃料転換など）</li> <li>● NMVOC蒸発起源（溶剤使用、化石燃料漏洩、化学製品生産など）</li> <li>● NH<sub>3</sub>農業起源（家畜排泄物管理、肥料施肥）</li> </ul>
空間分解能	0.25° × 0.25°（点源：大規模発電所）
時間分解能	月間排出量



図(2)-1 アジア域長期ヒストリカル排出インベントリREASv3の対象国・地域。

## 2) 活動量データ

### a. 燃料消費量

燃料消費量は、大気汚染物質・温暖化関連物質の排出インベントリにおいて最も重要な活動量である。各国においても基幹となる情報であり、国際エネルギー機関（IEA）が毎年出版しているWorld Energy Balances（以降IEAWEB）には、燃料種類別・セクター区別の消費量が、アジアのほとんどの国について計上されている。REASv1、REASv2の場合と同様、本研究においても、中国（香港を除く）、ラオス、ブータン、アフガニスタン、モルジブ以外の国については、IEAWEBのデータを使用した。ここで問題となるのは、IEAWEBでは過去方向の全対象期間をカバーできないことである。アジア諸国についてIEAWEBのデータが存在するのは、日本が1961年から、その他の国が1971年からであり、国、発生源、燃料種類によってはより近年までデータが存在しない。また、データが存在する燃料種類についても、セクター区分の詳細度が過去ほど粗くなるケースが多く、更に、燃料計上先の定義が年によって変化するケースも見られている。この状況のまま排出量の推計を行った場合、排出量トレンドに不自然なギャップや増減が生じることとなり、排出構造や発生源対策による効果の評価、大気質モデルや化学気候モ

デルのシミュレーション結果の評価をミスリードする可能性が高い。そこで、本研究ではIEAWEBオリジナルデータに対し、以下の加工・補間処理を行った。

- ある年の前後でデータ計上項目に明らかな変化が認められた場合、古い年のデータについて、新しい年の計上項目に移動する。
- ある年の前後でサブセクター区分の詳細度が低くなった場合、詳細データが存在する最も古い年のデータを指標として、古い年のデータをサブセクターに分配する。
- 統計データの計上が始まる以前の年については、最も古い年のデータをベースに、以下のデータを指標として過去方向にトレンド外挿する。
  - ▶ 各国のエネルギー統計データ
  - ▶ 各サブセクターにおける燃料消費量に直接関連する統計データ  
Ex. 発電量、鉄鋼生産量、セメント生産量、自動車台数、鉄道営業キロ数、人口数など
  - ▶ 国連エネルギー統計データベースの燃料種類別総消費量データ

特に、対象期間初頭に近い過去の統計データについては、マクミラン新編世界歴史統計<sup>5)</sup>を使用した。なお、IEAWEBは国単位のデータベースであり、1)で記述した通り、日本、インドについてはそれぞれ6、17のサブ領域毎のデータを作成する必要がある。本研究では、以下の手法に従ってIEAWEBベースの全国データを領域分配した。

- 日本については都道府県別エネルギー消費統計、インドについてはインド統計局Annual Summary of Industry、TERI ENERGY & ENVIROMENT DATA DIARY AND YEARBOOKにデータが存在する場合、それらを指標データとする。
- 各サブセクターにおける燃料消費量に直接関連する領域別データを指標データとする。  
例えば、発電容量、工業製品生産量、自動車走行量など。
- 指標データが存在しない過去については、最も古い年の指標データをその以前にも適用する。

中国（香港、マカオを除く）については、中国能源統計年鑑省別燃料消費量をベースデータとして使用した。中国能源統計年鑑省別データでは、産業部門は総消費量のみ存在するため、サブセクターに分配する必要がある。省別統計年鑑にサブセクター別燃料消費量が存在する省については、それらをサブセクター分配指標として使用した。データが存在しない過去については、最も古い年のデータを使用した。省別統計年鑑にデータが存在しない省については、以下の手法に従ってサブセクター分配指標を作成した。

- IEAWEBの全中国燃料種類別産業部門サブセクター別燃料消費量をベースとする。
- サブセクター別に省分配指標を用意し、全中国燃料消費量を省分配する。  
(例えば、省別鉄鋼生産量を全燃料種類共通指標として、鉄鋼部門全中国燃料消費量を省分配)
- 以上により作成された、各省の燃料種類別サブセクター別燃料消費量を、サブセクター別分配指標とする。

マカオ、ラオス、ブータン、アフガニスタン、モルジブについては、国連エネルギー統計データベースのデータを使用した。国連エネルギー統計データベースは1950-2015年を対象期間としており、IEAWEBの過去方向へのトレンド外挿指標としても使用した。しかしながら、マカオ、ラオス、ブータン、アフガニスタン、モルジブについては過去方向のデータが限られているため、IEAWEBの場合と同様の方法で過去方向のデータを作成した。

点源発電所における燃料消費量については、REASv2では、2000年及び2007年を基準年として作成されたCarbon Monitoring for Action (CARMA)<sup>6)</sup>と、Platts社のWorld Electric Power Plants Database (WEPP)を組み合わせデータを作成したが、CARMAはデータの更新が停止されているため、2008年以降に建設された発電所のデータを新規に作成する必要がある。また、2000年に存在する点源発電所について、稼動開始年以前の燃料消費量をゼロとする必要がある。いずれについても、最新のWEPPデータの情報を用いて対応した。新規発電所については、300MW以上のユニットを持つ発電所を対象とし、REASv2のデータから国・領域毎に発電容量辺りの燃料消費量を計算して、各ユニットの燃料消費量を推定した。全点源の燃料消費量の合計値が、各国・領域の発電部門の燃料消費量を凌駕する場合は、各国・領

域のデータで調整した。なお、CARMAとWEPPの組み合わせについては、最新のデータで見直しを行った。その結果、WEPPとの組み合わせが確認できなかった発電所については、稼働開始年を考慮できないため、点源発電所として扱わないこととした。

#### b. 工業製品生産量

大気汚染物質、地球温暖化関連物質の排出量を推計するには、様々な工業製品の生産量データを整備する必要がある。本研究では、下記に示す様々な統計資料からデータを収集し、これらにデータが存在しない過去については、マクミラン新編世界歴史統計<sup>5)</sup>やGDPを用いてトレンド外挿した。

- World Steel AssociationのSteel Statistical Yearbook (銑鉄、粗鋼生産)
- U.S. Geological SurveyのMinerals Yearbook (非鉄金属、セメント、石灰生産)
- IEAWEB (コークス生産、石油精製)
- 日本統計年鑑、日本長期統計年鑑
- 中国統計年鑑、China Data Online (<https://www.china-data-online.com/>)
- Indiastat (<https://www.indiastat.com/>)
- UNdata (<http://data.un.org/>)
- 各国統計局ウェブサイト
- 各種産業の各国または国際団体のウェブサイト
- 関連文献 (排出インベントリ関連研究論文、各種産業の各国または国際団体の報告書)

日本、中国、インドについては領域分配が必要となる。原則各領域の統計データを調査し、データが存在しない場合は、各領域内における生産工場の生産容量などを領域分配指標として使用した。

#### c. 自動車関連

自動車起源排出量の推計において基礎となる活動量は自動車稼働台数である。各国の自動車登録台数が存在する長期国際統計としては、International Road FederationのWorld Road Statisticsが存在する。しかしながら、この統計データでは車種がPassenger Cars、Buses、Lorries and Vans、Motorcyclesの4種に集約されており、消費燃料の種類も含めて詳細化が必要となる。そこで本研究では、各国の統計資料、自動車関連報告書、研究論文を調査し、可能な限り細分化された車種別の登録台数データを整備した。過去のデータが存在しない場合は、World Road Statistics及びマクミラン新編世界歴史統計<sup>5)</sup>を用いてトレンド外挿した。日本、中国、インドの領域別データの作成については、日本は自動車検査登録情報協会、中国は中国統計年鑑、インドはTERI ENERGY & ENVIROMENT DATA DIARY AND YEARBOOKのデータを使用した。なお、インドについては登録台数と稼働台数に大幅な差があることが報告されており、Prakash and Habib (2018)<sup>7)</sup>の情報をを用いてデータの更新を行った。他の国についても類似の状況が発生している可能性があるが、具体的な情報が存在しないため、本研究では登録台数をそのまま稼働台数として使用した。

自動車一台あたり年間走行距離については、中国はHuo et al. (2012)<sup>8)</sup>、インドはPrakash and Habib (2018)<sup>7)</sup>、その他の国についてはClean Air Asia (2012)<sup>9)</sup>を参考に設定した。日本については、日本自動車研究所 (2013)<sup>10)</sup>の2010年のデータをベースに、国土交通省の日本自動車輸送統計を用い、対象期間の総走行量を計算した。

#### d. 農業関連

農業関連の活動量は、家畜頭数及び化学肥料消費量である。それぞれ、1961-2015年のデータについては、国連Food and Agriculture OrganizationのFAOSTATから入手した。データが存在しない過去については、マクミラン新編世界歴史統計<sup>5)</sup>を用いてトレンド外挿した。日本、中国、インドの領域別データの作成については、日本は農林水産省畜産物流統計、中央畜産会統計資料、及び肥料年鑑、中国は中国統計年鑑及びChina Data Online、インドはDepartment of Animal Husbandry and DairyingのLivestock Census及びIndiastatのデータを使用した。

#### e. その他

大気汚染、気候変動の根本要因の一つは人口増加であり、人口データも排出インベントリの重要な活動量の一つである。各国の総人口、都市人口、農村人口については、国連経済社会局人口部のデータを

使用し、日本、中国、インドの領域別人口については、日本は総務省統計局資料、中国は中国統計年鑑及びChina Data Online、インドはIndiastatのデータを使用した。廃棄物については、国際連合環境計画のAsia Waste Management Outlookを使用し、日本は環境省総合環境政策局資料、中国は中国統計年鑑を使用して領域分配した。インドについては州別の情報を入手できなかったため、GDPを領域分配指標とした。NMVOC蒸発発生源の活動量は、溶剤使用量、ペンキ使用量、飲食物生産量など、種類も多し、情報の入手が困難なものが少なくない。本研究では、関連する産業の国際統計、各国統計、企業ウェブサイト、NMVOC排出インベントリに関する研究論文などから情報を入手し、一部活動量については、排出量と排出係数を用いた推定を行った。

### 3) 排出係数

排出係数は、単位活動量あたりの排出量として表現され、排出インベントリの精度の鍵となるパラメータである。REASv2では、一部の排出係数については除去率も含めた平均の排出係数を使用していたが、発生源対策効果を評価することを可能とするため、本研究では排出係数に排煙に対する除去効果は含めないものとした。排出係数は、例えばボイラーや炉で使用されている燃焼技術、セメント生産で使用されているキルンの種類、家庭で使用されているストーブの種類など、国や地域によって異なり、同じ国においても時代により変化する。アジアについての情報は限られているのが実情だが、本研究では、まず以下の文献などを参考に、全ての固定発生源・活動量の組み合わせに対する標準の排出係数を設定した。

- Kato and Akimoto (1992)<sup>11)</sup>
- Bond et al. (2004)<sup>12)</sup>
- EMEP/EEA, Air Pollutant Emission Inventory Guidebook
- USEPA, AP-42: Compilation of Air Pollutant Emission Factors
- UNEP, Atmospheric Brown Cloud (ABC) Emission Inventory Manual
- IPCC, 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories

その上で、特定の国・地域、発生源に関する情報が得られた場合は、それらの情報を用いて設定を更新した(例えばLi et al. (2017)<sup>13)</sup>、Sadavarte and Venkataraman (2014)<sup>14)</sup>、Permandi et al. (2017)<sup>15)</sup>)。排出係数に直接関連する固定発生源の対策として、本研究では、燃焼管理技術、低NO<sub>x</sub>バーナーの使用によるNO<sub>x</sub>排出量の低減を考慮した。低NO<sub>x</sub>バーナーの導入状況については、WEPPのデータベース、産業公害防止対策等調査業務(我が国の産業公害の克服に活用された技術に関する調査)報告書、その他関連研究論文・文献の情報を参考にして、国・領域別に導入設備、導入率の設定を行った。

自動車については、各種規制(EURO、US Tier、日本自動車規制)の段階別に標準の排出係数を設定し、各国の規制導入タイミングと車齢構成とから、排出係数の時系列変化を考慮した。排出係数の絶対値については、自動車起源排出インベントリに関する研究論文、REASv2の設定値などを参考に基準年の排出係数を設定し、先に計算した排出係数の時系列変化データを指標にトレンド外挿した。

### 4) 除去率

除去率は、大気汚染物質が発生した後に大気中に放出される前に除去される割合として表現される。主にSO<sub>2</sub>は脱硫装置、NO<sub>x</sub>は脱硝装置、PMは集塵装置を考慮するが、それぞれについて様々な技術が存在しており、技術毎に除去率が異なっているため、どの装置がどの年にどの程度導入されているかの情報が必要となる。例えば、脱硫装置の除去技術には、Wet Scrubbing、Spray Dryer Absorption、Dry Sorbent Injectionなど、脱硝装置の除去技術には、Selective Non-Catalytic Reduction、Selective Catalytic Reduction、Activated Carbon Process、DESONOX(SO<sub>2</sub>とNO<sub>x</sub>を同時に除去する装置)など、集塵装置の除去技術には、Multiple Cyclones、Wet Scrubbers、Fabric Filers、Electrostatic Precipitatorsなどが存在する。これらのどの技術がどのタイミングで導入されたかについては、WEPPのデータベース、Sloss (2012)<sup>16)</sup>、産業公害防止対策等調査業務(「我が国の産業公害の克服に活用された技術に関する調査」)報告書、日系企業の海外活動に当たっての環境対策(環境省)などを参考に

設定した。

SO<sub>2</sub>については、燃料中に含まれる硫黄分の除去、または硫黄分の低い燃料の使用も重要な発生源対策である。燃料中硫黄分の設定については、原則REASv1及びREASv2の設定を使用した。REASv1対象期間よりも過去の1950-1979年については、日本以外は1980年の値を使用し、日本については日本エネルギー経済研究所資料（硫黄酸化物汚染対策に関する日中比較分析）などを参考に設定した。また、自動車ガソリン及びディーゼル中の硫黄分については、各国の自動車規制のタイミングを参考に設定した。

## 5) 特別な取り扱い

本研究で開発された排出インベントリは原則としてオリジナルデータであるが、一部の発生源については、情報の不足による不確実性が排出量の構造解析、大気質モデル、化学気候モデルのシミュレーション結果に与える影響を考慮して、以下に記述する外部データの使用またはオリジナル排出量の調整を行った。

- 日本のNMVOC固定蒸発発生源からの排出量：環境省揮発性有機化合物（VOC）排出インベントリ報告書の2000-2015年のデータを使用し、1999年以前については関連する指標を用いてトレンド外挿。
- 日本のNMVOC自動車蒸発発生源からの排出量：日本自動車研究所（2013）<sup>10</sup>の2000/2005/2010年のデータを使用。間の期間は線形内挿し、1999年以前、2011年以降についてはオリジナル推計値を指標としてトレンド外挿。
- 韓国のNMVOC蒸発発生源からの排出量：主要発生源別に公式推計値のデータを使用して調整。個別発生源排出量比、データが存在しない期間はオリジナル推計値を使用してトレンド外挿。
- 農業起源NH<sub>3</sub>排出量：日本については、日本自動車研究所（2013）<sup>10</sup>の2000/2005年のデータを使用。間の期間は線形内挿し、1999年以前、2006年以降はオリジナル推計値を指標としてトレンド外挿。日本以外については、REASv1の2000年のデータを使用。前後の期間はオリジナル推計値を指標としてトレンド外挿。

## 6) アジアにおけるSLCP関連物質の排出実態と経年変化の評価

本研究で開発されたアジア域長期ヒストリカル排出インベントリを用い、SLCP関連物質の排出実態と経年変化の評価を行った。その際、SO<sub>2</sub>（寒冷化物質・PM<sub>2.5</sub>主要成分である硫酸エアロゾルの前駆物質）、NO<sub>x</sub>（SLCPである対流圏オゾン及び寒冷化物質・PM<sub>2.5</sub>主要成分である硝酸エアロゾルの前駆物質）、BC（自身がSLCP及びPM<sub>2.5</sub>主要成分）に重点を置いて解析を行った。

### （3）アジア域排出インベントリシステムの活用

#### 1) 発生源対策効果の評価

本研究で開発したアジア域排出インベントリシステムの特徴の一つは、発生源対策効果の定量化が可能となったことである。本研究では、特に日本と中国のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCを対象として、発生源対策の効果を下記の手続きに従って定量評価した。

##### 【固定発生源】

- ① （2）で作成されたアジア域長期ヒストリカル排出インベントリの結果を標準の排出量とする。
- ② 排出後除去率をゼロとし、その他の設定は変更せずに排出量を推計。
- ③ 排出後除去率をゼロとし、更に全ての年の燃料中硫黄分を低硫黄化対策が始まる前の年の値で固定して排出量を推計。
- ④ 排出後除去率をゼロとし、更に全ての年のNO<sub>x</sub>排出係数を排出係数低減対策が始まる前の年の値で固定して排出量を推計。
- ⑤ ②で計算された排出量と標準の排出量との差を、脱硫装置（SO<sub>2</sub>）、脱硝装置（NO<sub>x</sub>）、集塵装置（BC）による対策効果とする。
- ⑥ ③で計算された排出量と②で計算された排出量との差を、燃料中硫黄分規制による対策効果とする。

る。

⑦ ④で計算された排出量と②で計算された排出量との差を、NO<sub>x</sub>の低減技術による対策効果とする。

#### 【自動車発生源】

① (2) で作成されたアジア域長期ヒストリカル排出インベントリの結果を標準の排出量とする。

② 全ての年の燃料中硫黄分を、低硫黄化対策が始まる前の年の値で固定して排出量を推計。

③ 全ての年の走行時排出係数を、自動車排ガス規制が始まる前の年の値で固定して排出量を推計。

④ ②で計算された排出量と標準の排出量との差を、自動車ガソリン及びディーゼルに対する硫黄分規制による対策効果とする。

⑤ ③で計算された排出量と標準の排出量との差を、自動車排ガス規制による対策効果とする。

## 2) 排出量逆推計結果による排出インベントリの評価

大気汚染物質、温暖化関連物質の排出量は、(1) で記述した通り、活動量、排出係数、除去率を用いて計算されるが、それぞれの出典となる統計資料や測定値には誤差が存在する。また、排出係数、除去率については、対象となる国・地域の実態に適したデータ、発生源対策に関する技術・設備については、その導入率や稼働率が必要であるが、アジア域では、それらの情報は限られている。従って、排出インベントリには不可避の不確実性が存在する。一方、観測データ、大気モデル、数値アルゴリズムによって排出量を推計する排出量逆推計モデルでは、排出インベントリの誤差要因となるパラメータを直接は使用しない。従って、排出インベントリの評価において、排出量逆推計モデルとの比較は有用である。本研究では、開発初期の排出インベントリと、サブテーマ3で開発されたNO<sub>x</sub>排出量逆推計モデルによる結果とを比較し、特に中国の2010年以降のトレンドに着目して排出インベントリの改良を試みた。以下に、本研究で使用した排出量逆推計モデルの設定について概要を整理する。(排出量逆推計モデル本体の詳細についてはII-3参照。)

- 対象物質：NO<sub>x</sub>
- 対象地域：中国
- 対象期間：2008-2015年
- 衛星観測データ：OMI/DOMINOv2.01対流圏NO<sub>2</sub>カラム濃度
- 大気質モデル：CMAQv4.7.1
- 先験情報：REASv2.1/2008年データ

なお、CMAQ (The Community Multiscale Air Quality Modeling System)は、アメリカ環境保護庁によって開発された大気質モデルである。また、先験情報については、全ての年についてREASv2.1の2008年のデータが使用された。

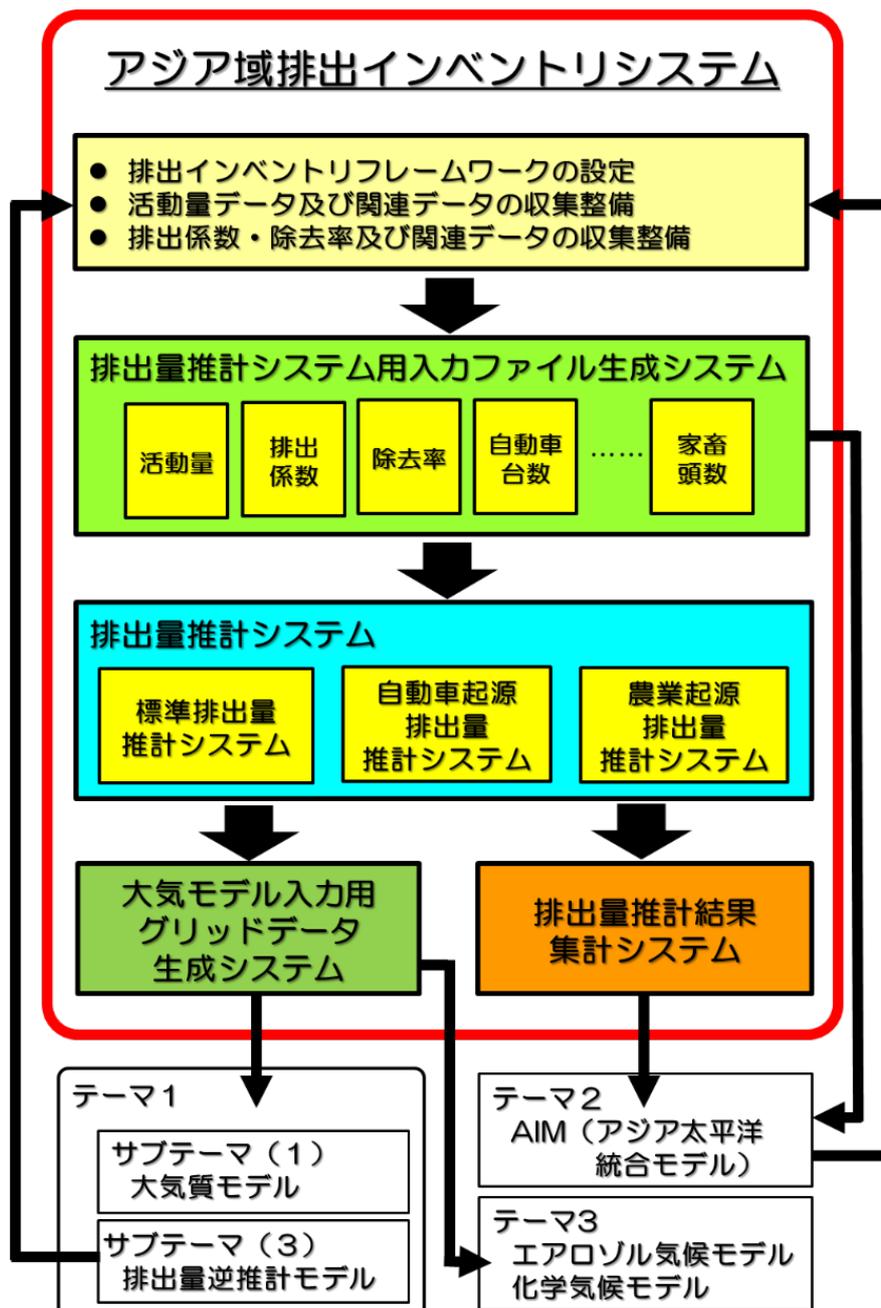
## 4. 結果及び考察

### (1) アジア域排出インベントリシステム

3 (1) に記述した手法に従い、アジア域排出インベントリシステムを開発した。全体構成を図(2)-2に示す。本研究では、アジア域長期ヒストリカル排出インベントリの開発と結果の解析を行うため、3 (2) 1) に従って設定されたフレームワークと、3 (2) 2) ~ 4) に記述した手法に従って整備された活動量、排出係数、除去率及び関連データに合わせて、排出量推計システム用入力ファイル生成システム、排出量推計システム、排出量推計結果集計システム、大気モデル入力用グリッドデータ生成システムのカスタマイズを行った。その際、排出量推計結果集計システムの、燃料燃焼起源排出量推計結果集計システム、非燃料燃焼起源排出量推計結果集計システムの出力フォーマットについては、3

(1) 3) に記述した通り、AIMとの互換性を念頭に置いてカスタマイズした。表(2)-2にその具体的な内容を示す。(船舶起源は本研究の対象外であるが、項目としては定義した。) 以上によって開発されたシステムを用い、アジア域長期ヒストリカル排出インベントリ標準の排出量データと、3 (3) 1) の手法に従って、発生源対策効果を評価するための排出量データの作成を行った。次節(2)に、これらのデータを用いたSLCP関連物質の排出実態と経年変化に関する評価結果を詳述する。

本研究で開発されたアジア域長期ヒストリカル排出量データは他のテーマ・サブテーマに提供された。排出量推計結果集計システムを用いて作成された燃料燃焼起源排出量テーブルデータ、非燃料燃焼起源排出量テーブルデータはテーマ2に提供された。また、大気モデル入力用グリッドデータ生成システムを用いて作成されたグリッドデータは、テーマ1サブテーマ1及び3、テーマ3に提供された。テーマ2及びテーマ1サブテーマ1に対しては、標準の排出量データに加え、全ての発生源対策が行われなかった場合を想定して作成された排出量データについても提供された。なお、本研究では全研究期間を通してREASv3の開発を行ったが、各テーマではシナリオ作成、モデル計算、その解析などに長期の時間が必要となるため、各テーマと協議の上、テーマ1サブテーマ1、テーマ2、テーマ3には、平成28年度までに作成された1950-2010年のデータ（REASv2.2と定義）が、テーマ1サブテーマ3には平成30年度上半期までに作成された1950-2015年のデータ（REASv3.1βと定義）が提供された。



図(2)-2 アジア域排出インベントリシステム全体構成図。

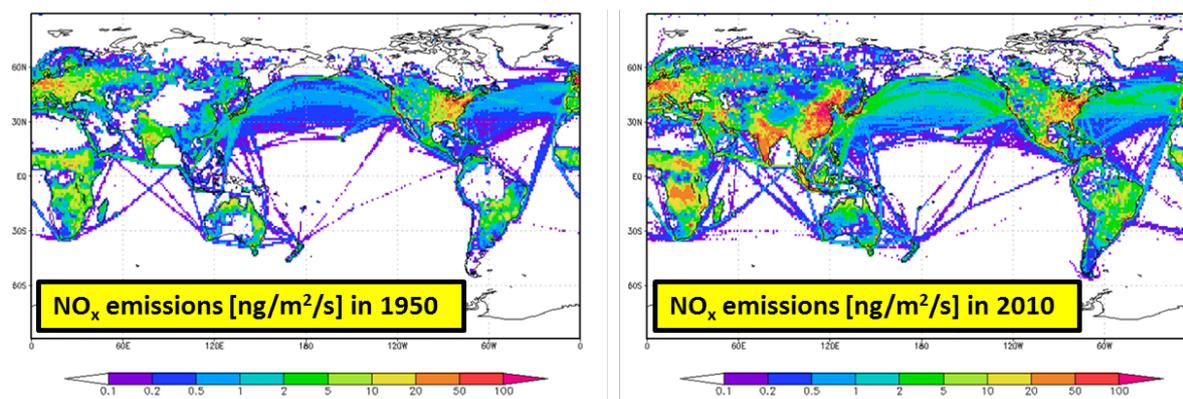
表(2)-2 燃料燃焼及び非燃料燃焼起源排出量推計結果集計システム出力カテゴリ。

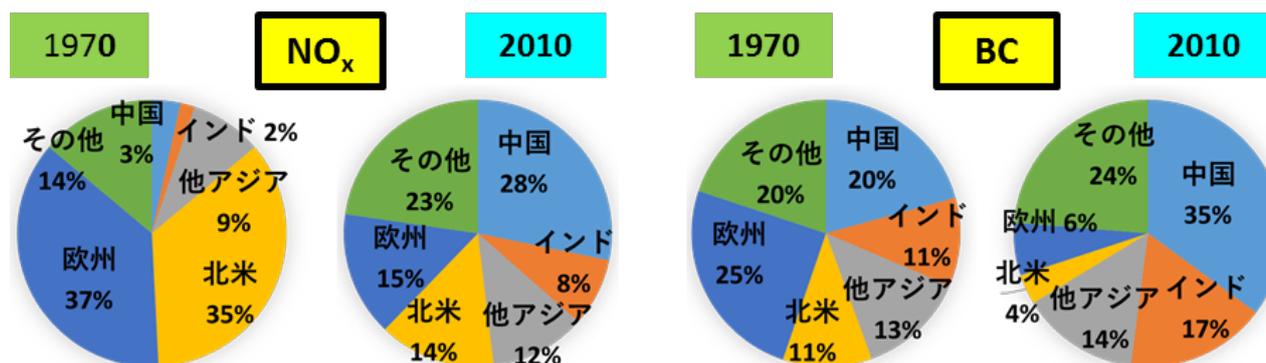
発生源	詳細カテゴリ
燃料燃焼起源 (全物質共通)	燃料種類： 石炭、褐炭、コークス他、天然ガス、コークス炉ガス、高炉ガス他、自動車ガソリン、灯油、その他軽質油、ディーゼル、原油、重油、その他の石油燃料、薪、農業残渣物燃料、動物排泄物燃料、その他
	セクター区分： 発電、その他のエネルギー転換、鉄鋼産業、化学・石油化学産業、非鉄金属産業、非金属鉱物産業、その他産業、乗用車、バス、軽トラック、重トラック、自動二輪車、その他の自動車、船舶、その他の輸送、家庭、商業・業務、農業、その他
非燃料燃焼起源 (NH <sub>3</sub> 及びNMVOC以外)	セクター区分： 銑鉄生産、粗鋼生産、その他鉄鋼生産、アルミニウム生産、銅生産、亜鉛生産、鉛生産、セメント生産、レンガ生産、石灰生産、硫酸生産、コークス生産、石油精製
非燃料燃焼起源 (NH <sub>3</sub> )	セクター区分： 家畜排泄物管理、肥料施肥、アンモニア肥料生産、硝酸アンモニウム肥料生産、尿素肥料生産、人間の汗・呼吸、便槽
非燃料燃焼起源 (NMVOC)	セクター区分： 自動車蒸発、石油精製、その他の化石燃料精製他、塗料（建築）、塗料（家庭）、塗料（自動車）、塗料（その他）、印刷、ドライクリーニング、脱脂、自動車用溶剤使用、家庭用溶剤使用、塗料生産、インク生産、その他溶剤使用、化学工業品生産、コークス生産、鉄鋼生産、その他工業品生産、廃棄物処理

## (2) アジア域長期ヒストリカル排出インベントリ

### 1) アジア全域

まずはアジア全域の状況について概観する。図(2)-3は、NO<sub>x</sub>総排出量について、1950年と2010年の全球の分布を比較したものである。アジア域については、本研究で開発したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリの結果を使用し、他の地域についてはLamarque et al. (2010)<sup>17)</sup>などから作成した。1950年の図を見ると、北米及び欧州の排出量が大きく、アジア域は世界の中でも排出量の小さな地域であった。しかしながら、60年後の2010年では状況が激変し、中国、インドを中心に排出量が大幅に増加して、欧米を凌駕していることが見て取れる。図(2)-4は、NO<sub>x</sub>とBCについて、地域別の排出量の比率を1970年と2010年で比較したグラフである。NO<sub>x</sub>については、1970年ではアジア域は約15%に過ぎなかったが、2010年では約50%を占めている。BCについては、家庭における石炭や植物燃料の寄与分が大きいため、1970年でも比較的アジアからの排出は多かったが、2010年では更に約20%比率が増加し、アジア域の占める割合は約65%に達している。このように、現在、アジアは世界で最も大気汚染物質を排出する地域となっているが、その変動は全球レベルで見ても急激であり、その把握が重要である。

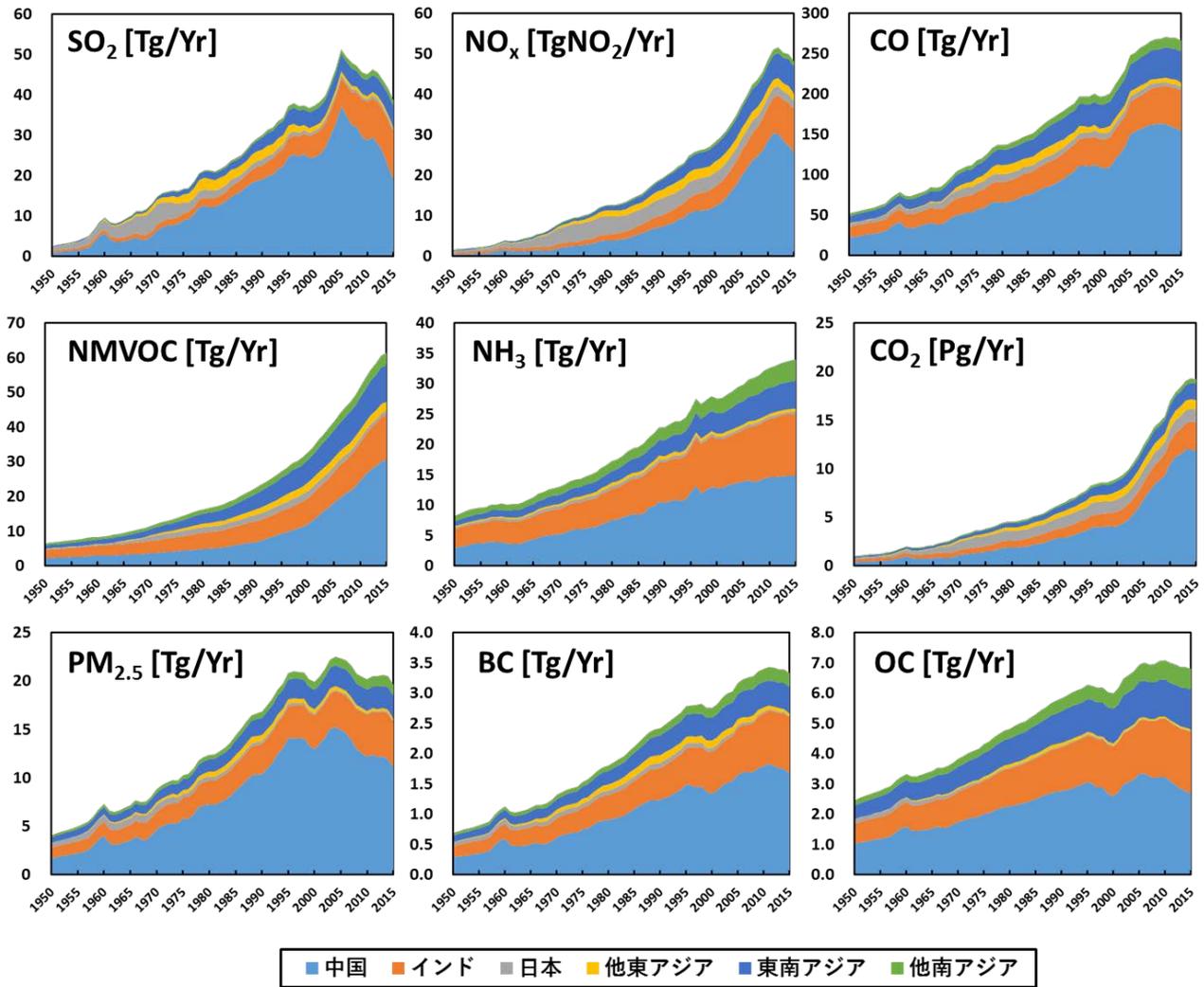
図(2)-3 1950年及び2010年の全球NO<sub>x</sub>排出量分布。



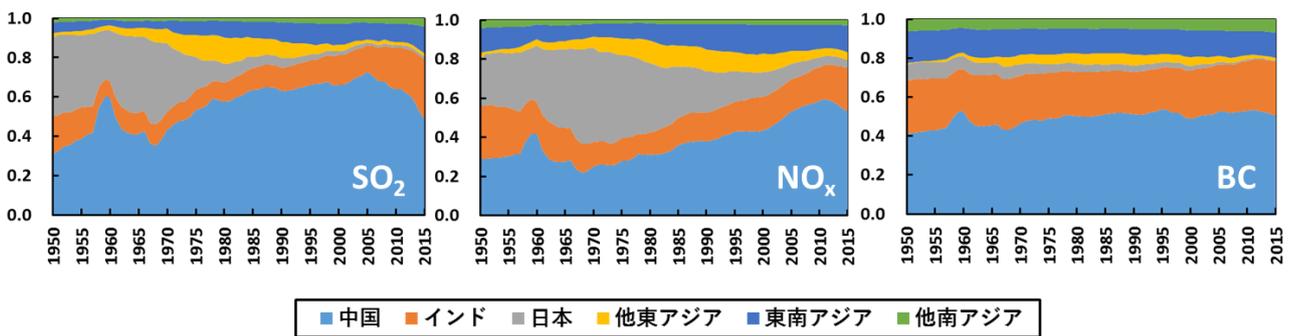
図(2)-4 NO<sub>x</sub>及びBC全球排出量の1970年・2010年の主要地域別相対比率。

図(2)-5は、中国、インド、日本、日本・中国以外の東アジア、東南アジア、インド以外の南アジアについて、1950-2015年におけるSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、NMVOC、NH<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC及びOCの排出量を積み上げたグラフである。各物質のアジア全域における1950-1955年平均年間排出量、2010-2015年平均年間排出量、その間の増加率は、SO<sub>2</sub>: 3.19Tg/年, 43.5Tg/年, 13.6; NO<sub>x</sub>: 1.84TgNO<sub>2</sub>/年, 49.9TgNO<sub>2</sub>/年, 27.1; CO: 55.7Tg/年, 269Tg/年, 4.82; NMVOC: 6.90Tg/年, 57.1Tg/年, 8.27; NH<sub>3</sub>: 8.98Tg/年, 33.3Tg/年, 3.71; CO<sub>2</sub>: 1.12Pg/年, 18.4Pg/年, 16.4; PM<sub>10</sub>: 5.76Tg/年, 28.4Tg/年, 4.92; PM<sub>2.5</sub>: 4.52Tg/年, 20.3Tg/年, 4.50; BC: 0.751Tg/年, 3.39Tg/年, 4.52; OC: 2.62Tg/年, 6.92Tg/年, 2.64であった。この60年間で、全ての物質の排出量が大幅に増加したことは明白である。しかしながら、その増加の傾向には物質によって違いが存在している。排出量の増加率が特に大きい物質は、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO<sub>2</sub>であるが、これは主要な発生源が発電、産業、自動車での化石燃料の燃焼であり、経済発展に伴ってその消費量が激増したためである。SO<sub>2</sub>の増加の立ち上がりが比較的早いのが、これは、SO<sub>2</sub>の主要発生源である石炭が石油に比べて入手しやすく、主に中国の産業などでその消費が早くから進んだことによる。SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO<sub>2</sub>それぞれ2000年代初頭に排出量の急増が見られるが、これは、特に中国における石炭火力発電所の建設稼働が急増したことがその要因である。また、NO<sub>x</sub>については、石油燃料の消費量、特に自動車起源の排出量が期間後半の排出量の増加に大きく寄与している。CO、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、OCは、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO<sub>2</sub>に比べて増加率が小さいが、これは主要な発生源の一つが家庭における石炭や植物燃料の燃焼であり、特にアジアでは過去においても排出量が比較的大きかったこと、これらの物質は不完全燃焼により多く排出されるため、燃焼温度が高い発電からの排出が比較的小さいことによる。近年の排出量の増加は、産業部門における燃料燃焼や製造プロセスからの排出に加え、COはガソリン車からの排出、BCはディーゼル車からの排出の寄与も増加している。NMVOCも、特に近年の排出量の増加率が大きい物質の一つである。過去においては主に家庭における植物燃料の燃焼が発生源の大部分であったが、近年では、自動車からの排出量の増加に加え、塗料や溶剤の使用など、蒸発起源からの寄与分が経済発展とともに増加してきている。NH<sub>3</sub>は、他の物質と異なり排出の大部分は農業活動が起源である。増加する人口を支える食糧を確保するために化学肥料の投入量が増加しており、他の物質に比べて増加率は低いものの、アジア域の排出量は増加傾向が続いている。

20世紀後半から現在にかけての60年単位で見ると、アジア域の大気汚染物質、地球温暖化関連物質の排出量が全て大きく増加したのは先に見た通りだが、そのトレンドには物質による違いだけでなく、国・地域による違いも存在している。図(2)-6は、1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量について、主要地域別の排出量相対比率を示したものである。SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>の特徴の一つは、1960年代から1970年代にかけて、日本の排出量の比率が大きいことである。1965年では、SO<sub>2</sub>は中国に匹敵し、NO<sub>x</sub>は中国を大きく凌駕していた。その後日本の比率は減少していき、2015年ではそれぞれ数%にまで低下している。BCについても、過去に比率が大きく、その後減少している傾向は同様である。全ての物質において、2015年の排出量比率が最も大きい国は中国である。しかしながら、多くの物質で近年の排出量は減少傾向にあることが見て取れる。特にSO<sub>2</sub>は顕著であり、ピークではアジアの約75%を占めていた排出量が、2015年で



図(2)-5 アジアにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、CO、NMVOC、NH<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC及びOCの主要地域別排出量。



	1965	1985	2005	2015	G.R.
中国	41%	64%	73%	49%	0.5
インド	11%	11%	14%	30%	1.7
日本	39%	6%	2%	2%	0.7

	1965	1985	2005	2015	G.R.
中国	28%	36%	53%	53%	1.3
インド	17%	14%	16%	22%	1.7
日本	40%	26%	8%	4%	0.7

	1965	1985	2005	2015	G.R.
中国	45%	51%	52%	50%	1.0
インド	26%	22%	24%	28%	1.2
日本	6%	3%	1%	1%	0.4

G.R.: 2015年/2005年の排出量比

図(2)-6 (上図) アジアにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量の主要地域別相対比率。

(下表) 上図各SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCの、1965、1985、2005、2015年における、中国、インド、日本のアジア全体に対する排出量の相対比率を抽出したデータ。(G.R.は実排出量の2005年から2015年の増加率)

は約50%まで低下した。他の物質についても、近年は減少から少なくとも横ばいの傾向にあり、2000年代の初頭から懸念され始めた大気汚染物質排出量の急増について、ピークは過ぎたと言えそうである。その一方で、インドの排出量の比率が増加してきており、実際アジア域内でのSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量の相対比率は、2005年から2015年の10年間で、それぞれ14%から30%、16%から22%、24%から28%と大幅に増加した。近年の排出量の増加傾向は、東南アジアやインド以外の南アジアの地域についても見られている。一方、日本・中国以外の東アジアについては、日本からやや遅れて排出量の比率が増加し、近年では減少傾向にある。これは、主には韓国、台湾の排出量のトレンドが反映されたものである。2)～5)でそれぞれの国・地域のトレンドの特徴について議論する。

## 2) 日本

本節では、日本の大気汚染物質排出量のトレンドに着目する。日本の2015年の排出量、1950-2015年におけるピークの排出量（ピークの年）、ピークに対する2015年の排出量の比率は以下となった。

SO<sub>2</sub>: 0.597Tg/年, 5.18Tg/年(1970), 0.115; NO<sub>x</sub>: 2.04TgNO<sub>2</sub>/年, 4.69TgNO<sub>2</sub>/年(1979), 0.434; CO: 4.00Tg/年, 10.9Tg/年(1973), 0.369; NMVOC: 0.984Tg/年, 2.09Tg/年(2000), 0.472; NH<sub>3</sub>: 0.365Tg/年, 0.512Tg/年(1979), 0.712; CO<sub>2</sub>: 1.29Pg/年, 1.38Pg/年(2013), 0.937; PM<sub>10</sub>: 0.138Tg/年, 1.26Tg/年(1957), 0.110; PM<sub>2.5</sub>: 0.108Tg/年, 0.732Tg/年(1969), 0.148; BC: 0.0172Tg/年, 0.0844Tg/年(1989), 0.203; OC: 0.0158Tg/年, 0.160Tg/年(1958), 0.0991

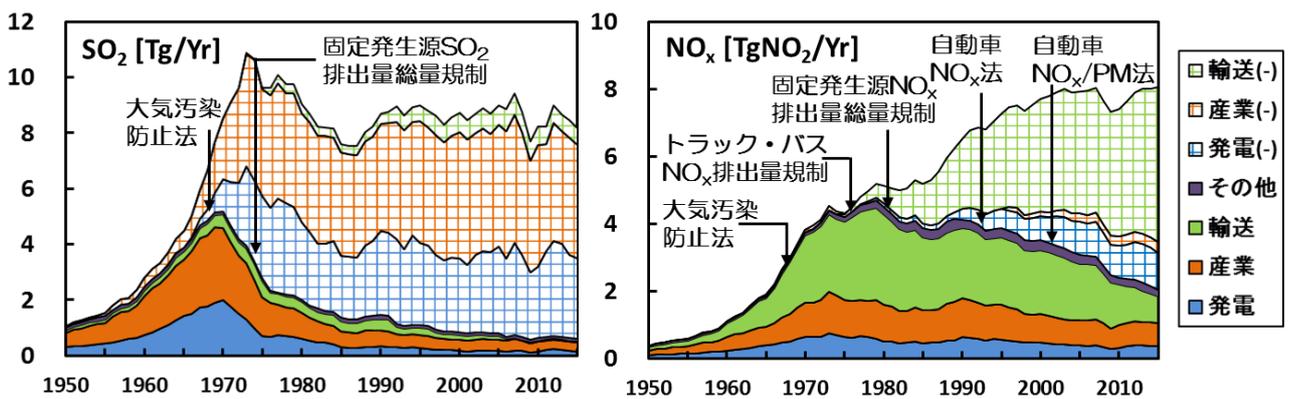
このようにCO<sub>2</sub>を除き、2015年の排出量はピーク時から大幅に減少している。また、排出量のピークは、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、OCは1960年頃、SO<sub>2</sub>、COは1970年頃、NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>は1980年頃、BCは1990年頃、NMVOCは2000年頃となっており、大気汚染物質の多くで排出量のピークは40年以上前となっている。

図(2)-7(左)は、日本のSO<sub>2</sub>総排出量について、セクター別の排出量と各発生源対策による効果を、図(2)-8(左)は、日本の発電所起源のSO<sub>2</sub>排出量について、燃料種類別の排出量と発電所に対する発生源対策の効果を示したものである。日本のSO<sub>2</sub>は、高度経済成長に伴って産業、発電を起源とする排出が1960年頃から急増し、その結果大気環境の悪化が大きな社会問題となった。燃料種類は、1950年代から1960年代初頭までは石炭が主流であったが、1960年代半ばから重油の消費量が急増し、これがSO<sub>2</sub>排出量激増の要因であった(1970年頃で約50%以上の寄与)。そこで、燃料に含まれる硫黄分の除去、または元々硫黄分の低い燃料への転換が進められることとなった。実際、図(2)-8(左)に示されている通り、仮にこの低硫黄化対策が取られなかった場合、発電起源の排出量はピーク時の約2倍まで伸びていたと推計されており、大気質の悪化は極めて深刻な事態になっていたと予想される。発生源の対策としては、排煙脱硫装置の設置も1970年代半ば頃から進み始め<sup>18)</sup>、SO<sub>2</sub>の排出量は1970年頃をピークに速やかに減少していった。日本の火力発電所では、1990年頃から石炭の消費量が増加しているが、低硫黄化策と排煙脱硫装置の効果により、その排出量は抑えられている。2015年では、仮に発生源対策が全く無かった場合の排出量から、約93%が除去されたと推定されている。

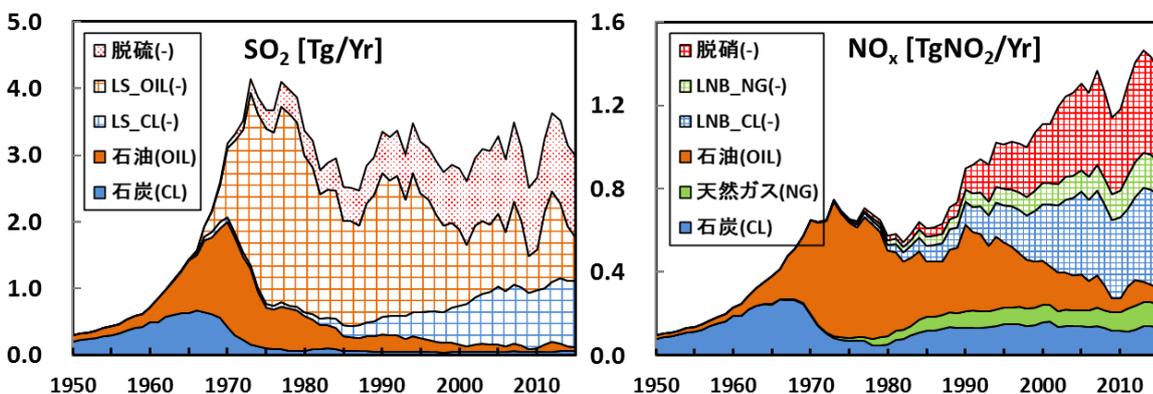
図(2)-7(右)、図(2)-8(右)は、日本のNO<sub>x</sub>排出量について、それぞれセクター別及び発電所起源の排出量と発生源対策の効果を示したものである。また、図(2)-9(左)は、日本の自動車起源のNO<sub>x</sub>排出量について、車種別の排出量と自動車排ガス規制による効果を示したものである。日本のNO<sub>x</sub>排出量は、SO<sub>2</sub>よりやや遅い1960年代後半から急増し、1970年以降微増が続いた後、1980年頃から緩やかに減少するトレンドを示している。NO<sub>x</sub>排出量の大きな増加率が1960年代後半から見られているのは、日本のNO<sub>x</sub>の主要発生源である自動車の走行量が急増し始めたからであり、ピーク時では約60%が自動車からの寄与分となっている。NO<sub>x</sub>排出量の減少については、SO<sub>2</sub>に比べて減少に転じるのが遅れており、また減少率もSO<sub>2</sub>より小さい。これは、NO<sub>x</sub>の規制がSO<sub>2</sub>よりもやや遅れてスタートしたこと、SO<sub>2</sub>に比べてNO<sub>x</sub>の排出量を削減することは容易ではないことが理由である。自動車規制の効果が本格的に現れ始めたのは1970年代後半からであるが、自動車走行量の増加も2000年頃まで続いたことから、自動車起源排出量の減少トレンドは緩やかなものとなった。また、排煙脱硝装置の導入についても、本格化したのは1990年代に入ってからである<sup>18)</sup>。削減量については、SO<sub>2</sub>の場合、燃料に含まれる硫黄分を削減することで排出量を大幅に減らすことができるが、NO<sub>x</sub>の場合、主には空気中の窒素と酸素から発生するため、燃焼管理または排

煙脱硝の技術が必要となる。その上、それぞれの除去効果もSO<sub>2</sub>の排煙脱硫の場合に比べて低いため、NO<sub>x</sub>の削減率はSO<sub>2</sub>に比べて低くなっている。しかしながら、SO<sub>2</sub>の場合と同様に見積もった削減効果は、2015年の段階で約75%にまで達している。

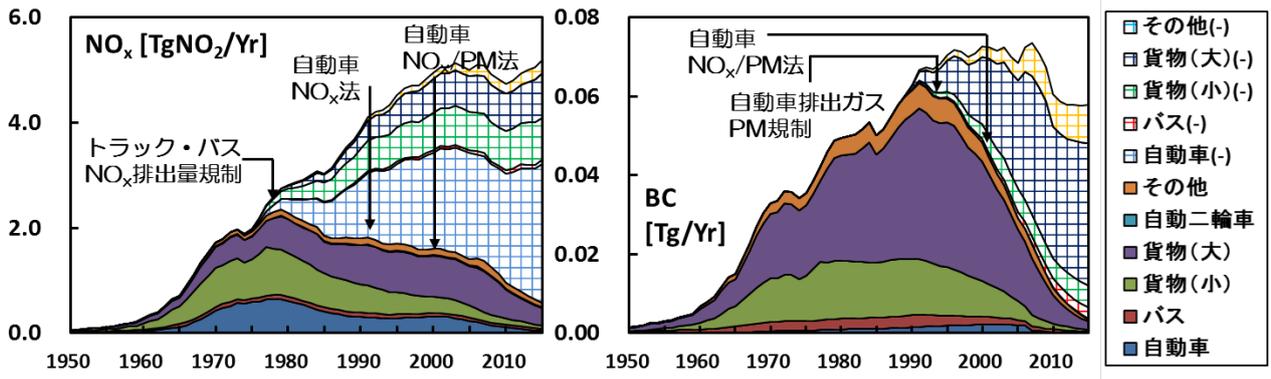
図(2)-10(左)、図(2)-9(右)は、日本のBC排出量について、それぞれセクター別及び自動車起源の排出量と発生源対策の効果を示したものである。日本のBC排出量は、期間初期、中期、直近で発生源の寄与率に明白な違いが見られているのが特徴的である。初期では産業及び家庭からの寄与が半々程度となっているが、1960年代以降それぞれの排出量が減少し、1970年代以降は自動車起源の排出量が急増した。その後、1990年以降自動車起源の排出量は大幅な減少傾向を示し始め、期間終盤には産業からの寄与が最大となっている。図(2)-10(右)は、日本の家庭における燃料種類別の消費量を積み上げたグラフである。1950年代は他のアジア諸国と同様に植物燃料と石炭が主要燃料であり、これが期間初期に家庭起源の寄与率が大きかった要因である。その後、天然ガス、LPGなどクリーンな燃料に代替が進み、家庭起源の排出量は大幅に減少した。産業は主に石炭燃焼が起源であるが、1960年代以降集塵装置の導入が進み、排出量が減少した。自動車起源の排出量は、特にディーゼル貨物車からの寄与が大きく、1990年には自動車からの寄与率が約80%までを占めていたが、その後自動車排出ガスPM規制、自動車NO<sub>x</sub>/PM法の導入を経て、排出量は大幅に減少した。その結果、2015年における排出量は、全ての対策が行われなかったと想定した場合の約10%まで削減されている。



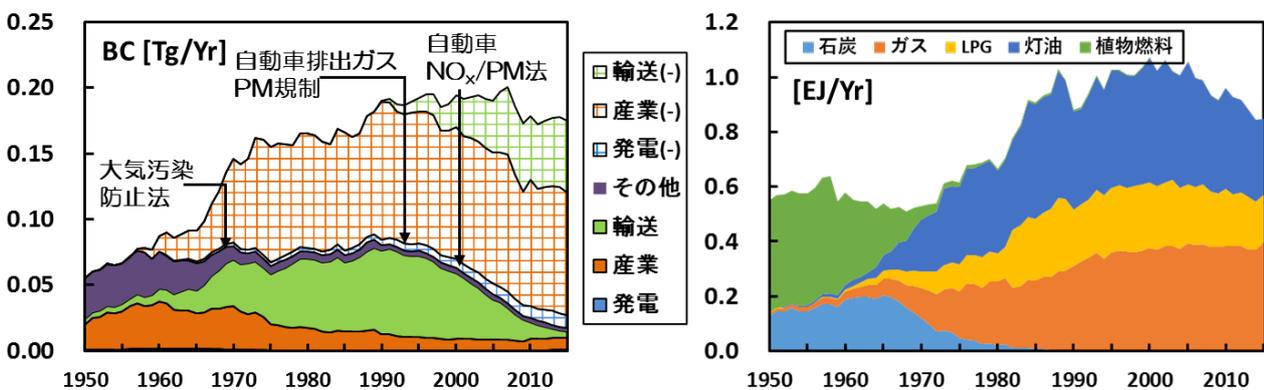
図(2)-7 日本の1950-2015年におけるSO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。



図(2)-8 日本の1950-2015年における発電起源のSO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。(LS:低硫黄化、LNB:低NO<sub>x</sub>バーナー)



図(2)-9 日本の1950-2015年における自動車起源のNO<sub>x</sub>及びBC排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。



図(2)-10 (左) 日本の1950-2015年におけるBC排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。(右)日本の1950-2015年における家庭部門の燃料種類別消費量。

### 3) 中国

本節では、中国の大気汚染物質排出量のトレンドに着目する。中国の2015年の排出量、1950-2015年におけるピークの排出量（ピークの年）、ピークに対する2015年の排出量の比率は以下となった。

SO<sub>2</sub>: 18.8Tg/年, 37.2Tg/年(2005), 0.506; NO<sub>x</sub>: 25.5TgNO<sub>2</sub>/年, 30.3TgNO<sub>2</sub>/年(2011), 0.840; CO: 153Tg/年, 163Tg/年(2011), 0.940; NMVOC: 30.3Tg/年, 30.3Tg/年(2015), 1.000; NH<sub>3</sub>: 14.8Tg/年, 14.8Tg/年(2014), 1.000; CO<sub>2</sub>: 11.9Pg/年, 12.0Pg/年(2014), 0.990; PM<sub>10</sub>: 15.2Tg/年, 20.6Tg/年(2004), 0.739; PM<sub>2.5</sub>: 11.0Tg/年, 15.3Tg/年(2004), 0.721; BC: 1.67Tg/年, 1.83Tg/年(2011), 0.912; OC: 2.69Tg/年, 3.33Tg/年(2006), 0.806

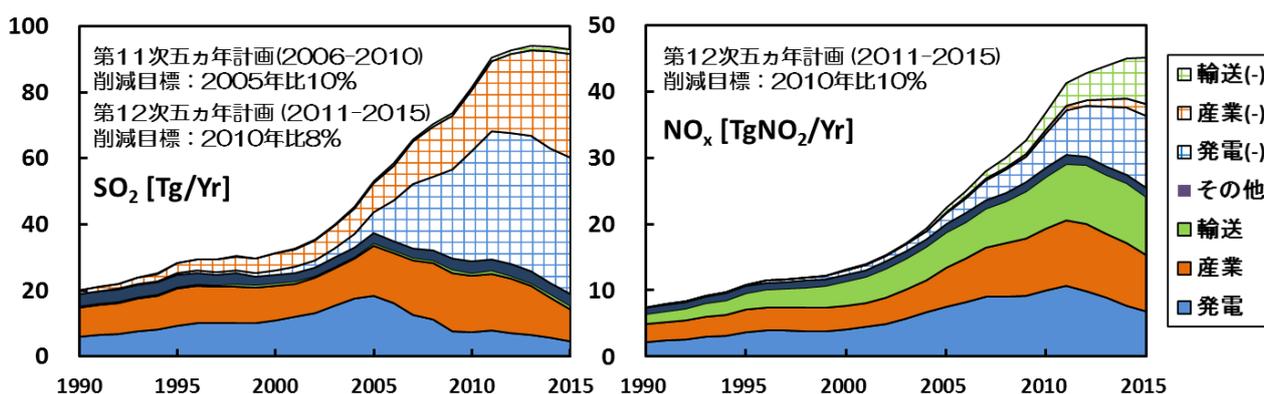
NMVOC、NH<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>以外の物質の排出量は、2015年より前にピークに達しており、またNMVOC、NH<sub>3</sub>、CO<sub>2</sub>も2015年付近では増加率が減少して横ばい傾向になっている。経済成長がやや停滞してきたことによるエネルギー需要などの鈍化の影響も考えられるが、大気汚染対策が功を奏してきたことが示唆される結果となった。

図(2)-11(左)は、中国のSO<sub>2</sub>総排出量について、セクター別の排出量と各発生源対策による効果を、図(2)-12(左)は、中国の発電所起源のSO<sub>2</sub>排出量について、燃料種類別の排出量と発電所に対する発生源対策の効果を示したものである。(それぞれ日本の場合と異なり1990-2015年を対象としていることに注意。図(2)-13、14についても同様。)。中国のSO<sub>2</sub>排出量は2000年代前半に急激に増加した後2005年を境に減少に転じている。減少は、主には第11次五カ年計画に基づいて大規模発電所に導入された排煙脱硫装置の効果によるものであり、2010年における発電起源のSO<sub>2</sub>排出量は、燃料中硫黄分の低下による対策も含めて約80%が削減された。2011年から始まる第12次五カ年計画では、SO<sub>2</sub>排

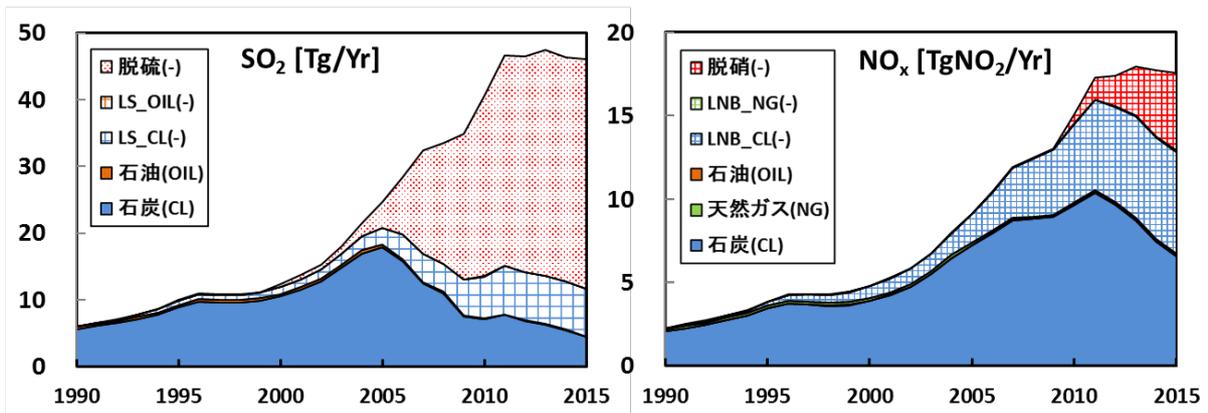
出量の更なる削減が目標に立てられたが、発電所への脱硫装置の設置率は既にかかなり高く、大きな削減効果は期待できないため、鉄鋼生産工場など大規模産業も脱硫装置の導入対象となった。その結果、2015年におけるSO<sub>2</sub>排出量は、全く発生源対策が行われなかった場合の約20%まで削減され、1990年時点とほぼ同等の排出量となった。

図(2)-11(右)、図(2)-12(右)は、中国のNO<sub>x</sub>排出量について、それぞれセクター別及び発電所起源の排出量と発生源対策の効果示したものである。また、図(2)-13(左)は、中国の自動車起源のNO<sub>x</sub>排出量について、車種別の排出量と自動車排ガス規制による効果を示したものである。中国のNO<sub>x</sub>排出量に対する発生源対策は、発電所における低NO<sub>x</sub>バーナーの設置や自動車排ガス規制の導入が2000年初頭から徐々に進められたが、その効果は限定的であり、SO<sub>2</sub>とは異なり2000年代は排出量の増加傾向が続いた。その後、2011年を境に排出量は減少に転じているが、これは2011年から開始された第12次五カ年計画ではNO<sub>x</sub>排出量の削減にも数値目標が掲げられ、大規模発電所及びセメント生産工場に対する排煙脱硝装置の導入が本格的に開始されたこと、自動車排ガス規制が更に進んだことによる。その結果、2015年の排出量は2010年の約90%まで減少し、発生源対策が行われなかったと想定した場合の排出量と比較して、発電起源で約62%、自動車起源で約51%、総排出量で約43%が削減された。

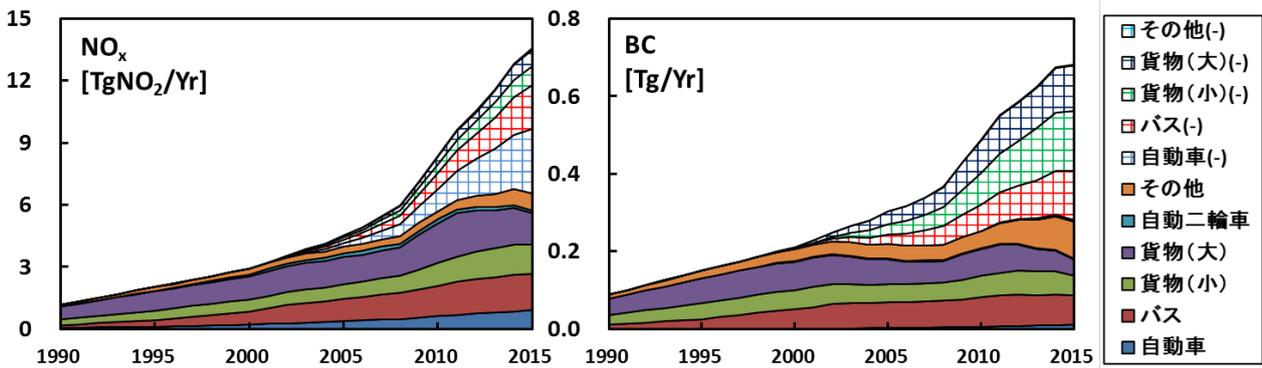
図(2)-14(左)、図(2)-13(右)は、中国のBC排出量について、それぞれセクター別及び自動車起源排出量と発生源対策の効果を示したものである。BCの排出量は、SO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>に比べて変動が小さいが、産業起源及び自動車起源の排出量の増加が、対策効果によって抑えられていることがその一因である。2015年では、発生源対策が行われなかったと想定した場合の排出量に比べ、産業起源で約67%、自動車起源で約58%、総排出量では約53%が削減されている。特に産業起源への対策効果が全対策効果の約75%を占めており、排出量の増加を抑制している。BCの排出量は2011年以降減少に転じているが、これは、特に家庭における植物燃料の消費量が減少していることが効いており、2015年の消費量は2010年から約30%減少している。しかしながら、2011年から2015年の減少率は10%にも届いておらず、主要発生源である産業及び家庭に対する更なる発生源対策が必要である。図(2)-14(右)は、産業及び家庭部門における2015年の排出量の内訳を示したものである。産業部門では、コークス生産、レンガ生産からの寄与率が大きく、それぞれの対策が効果的と考えられる。また、家庭部門ではまだ約72%が植物燃料の燃焼を起源としており、日本の場合と同様に、天然ガス、LPGなどクリーンな燃料への代替を進める対策が考えられる。



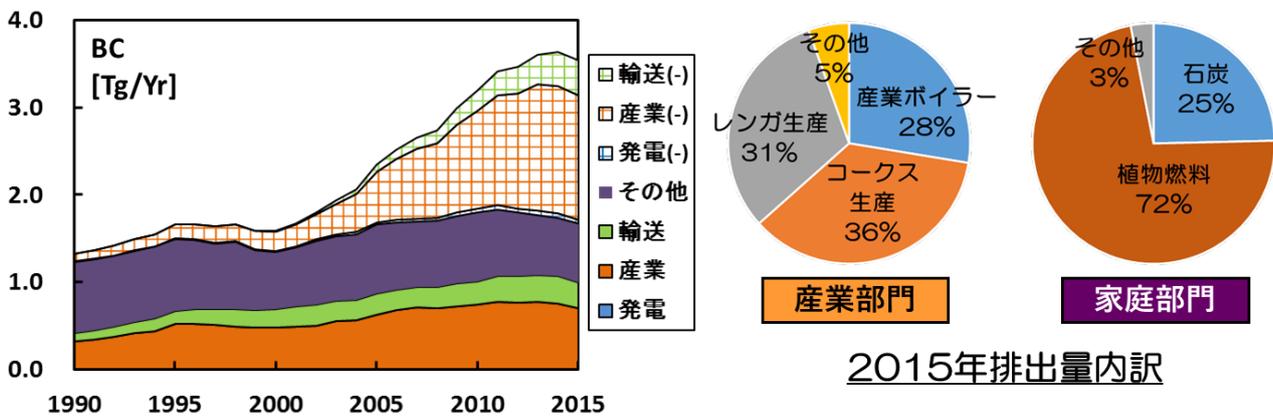
図(2)-11 中国の1990-2015年におけるSO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。



図(2)-12 中国の1990-2015年における発電起源のSO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。(LS: 低硫黄化、LNB: 低NO<sub>x</sub>バーナー)



図(2)-13 中国の1990-2015年における自動車起源のNO<sub>x</sub>及びBC排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。



図(2)-14 (左) 中国の1990-2015年におけるBC排出量と規制効果。色塗り部分は実排出量、網掛け部分(-)は排出規制の効果による除去分。(右) 中国の2015年における産業部門、家庭部門のBC排出量の主要発生源別相対比率。

#### 4) インド

本節では、インドの大気汚染物質排出量のトレンドに着目する。インドの排出量は1950年から2015年にかけて、基本的には増加傾向が続いている。各物質のインドにおける1950-1955年平均年間排出量、2010-2015年平均年間排出量、その間の増加率は以下となった。

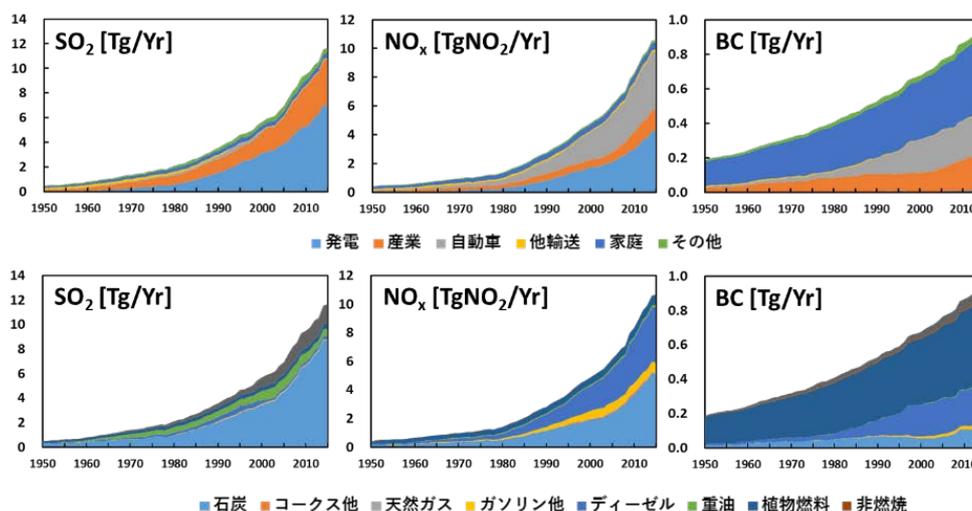
SO<sub>2</sub>: 0.541Tg/年, 10.5Tg/年, 19.5; NO<sub>x</sub>: 0.485TgNO<sub>2</sub>/年, 9.66TgNO<sub>2</sub>/年, 19.9; CO: 13.8Tg/年, 48.1Tg/年, 3.48; NMVOC: 2.48Tg/年, 12.2Tg/年, 4.92; NH<sub>3</sub>: 3.23Tg/年, 10.0Tg/年, 3.08; CO<sub>2</sub>: 0.299Pg/年, 2.64Pg/年, 8.83; PM<sub>10</sub>: 1.40Tg/年, 6.32Tg/年, 4.50; PM<sub>2.5</sub>: 1.17Tg/年, 4.57Tg/年,

3.91; BC: 0.203Tg/年, 0.903Tg/年, 4.45; OC: 0.701Tg/年, 1.98Tg/年, 2.83

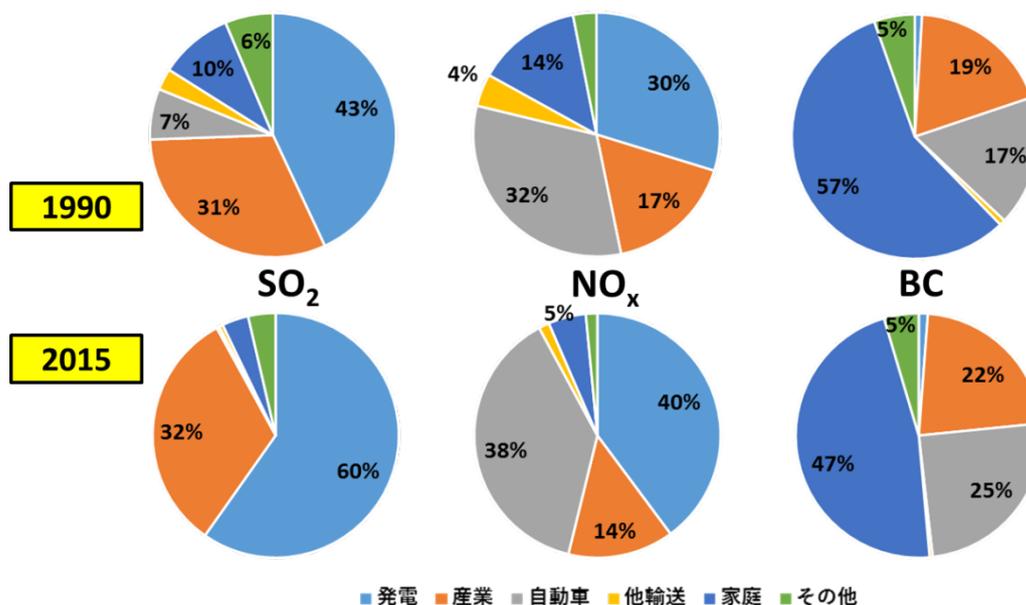
SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、NMVOC、CO<sub>2</sub>は、比較的近年に増加率が急増する時系列変化を示した。一方、CO、NH<sub>3</sub>、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、OCは、過去から現在にかけての増加率の変化は比較的小さいという違いが見られた。

図(2)-15は、インドにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量について、主要セクター別、主要燃料種類別に積み上げたグラフである。排出構造が明白に異なっていることが見て取れる。SO<sub>2</sub>は、大部分が発電及び産業での石炭燃焼を起源としており、近年の排出量の増加については、特に石炭火力発電所からの寄与が大きい。NO<sub>x</sub>は、発電所起源と自動車起源の排出量が、絶対量、増加率それぞれ比較的近い時系列変化を示している。発電所はSO<sub>2</sub>と同様に石炭火力発電所からの寄与が大きく、自動車は主にはディーゼル車からの排出である。BCは、家庭起源からの寄与分が大きく、その排出量は1950年で約76%、2015年でも約47%を占めている。燃料種類では、一部が産業などでも使用されている植物燃料からの寄与が特に大きく、1950年で約87%、2015年で約53%の寄与率となっている。家庭起源、植物燃料起源の排出量は増加傾向にはあるが、一方で、近年の排出量の増加はディーゼル車及び産業における石炭燃焼であることも見て取れる。図(2)-16は、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCのセクター別排出量比率を、1990年と2015年で比較したグラフである。SO<sub>2</sub>は、発電起源の排出量が43%から60%まで増加している。NO<sub>x</sub>は、発電所が約10%、自動車が約6%増加し、両者の排出量が2015年では約80%を占めている。BCは、先に見たとおり2015年でも半分近くは家庭からの排出であるが、産業及び自動車からの寄与率が36%から47%に増加している。これらの構造の変化は、日本や中国で大気汚染物質の排出量が急増した際にも見られた傾向であり、インドの大気質の悪化が懸念される。

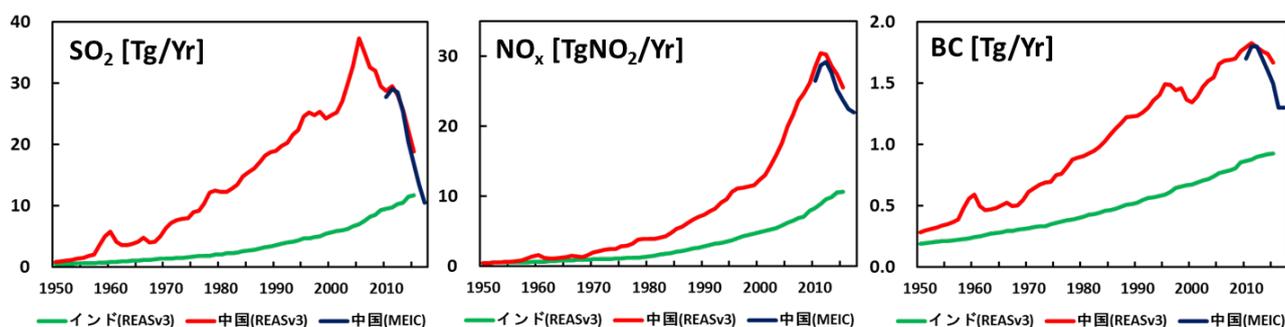
図(2)-17は、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCの排出量について、インドと中国の時系列変化を比較したグラフである。中国については、2010年から2017年まで排出量が推計されているZheng et al. (2018)<sup>19)</sup>の結果も合わせて示した。SO<sub>2</sub>については、2005年では中国の排出量はインドの約5.4倍であったが、2015年では約1.6倍まで縮まっている。Zheng et al. (2018)<sup>19)</sup>は、中国のSO<sub>2</sub>排出量は2015年以降も大幅な減少が続いていると推計しており、現在ではインドが中国を逆転していることが推測される。NO<sub>x</sub>については、中国の排出量がピークの2011年でインドの約3.42倍、2015年でも約2.39倍となっており、その差が縮まってはいるが、両者の間にはまだ差が存在している。しかしながら、Zheng et al. (2018)<sup>19)</sup>は中国のNO<sub>x</sub>排出量はSO<sub>2</sub>と同様に減少が続いていると推計しており、現在の傾向が続けば、いずれ両者が逆転する可能性は存在する。BC排出量についても、本推計では中国の排出量は、ピークの2011年でインドの約2.1倍、2015年でも約1.8倍であるが、Zheng et al. (2018)<sup>19)</sup>は、2012年以降について本研究よりも大幅な減少傾向を推計しており、BCの排出量についても、インドと中国の差が急速に縮まっている可能性は存在する。本研究の対象期間（最新年2015年）では、近年のアジアにおける最大の排出国は全ての物質について中国であったが、今後インドの重要性が増してくると考えられ、排出インベントリの年次更新を継続することが必要である。



図(2)-15 インドにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCのセクター別燃料種類別排出量。



図(2)-16 インドの1990年及び2015年におけるSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量の主要セクター別相対比率。



図(2)-17 1950-2015年におけるSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量のインドと中国との比較。REASv3は本研究の結果。MEIC(Multi-resolution emission inventory for China: 清華大学によって開発された中国の排出インベントリ)はZheng et al. (2018)<sup>19)</sup>の結果。

## 5) 東南アジア

本節では、東南アジアの大気汚染物質排出量のトレンドに着目する。東南アジアの排出量も、インドと同様に基本的には1950年から2015年にかけて増加傾向が続いている。各物質の東南アジアにおける1950-1955年平均年間排出量、2010-2015年平均年間排出量、その間の増加率は以下となった。

SO<sub>2</sub>: 0.161Tg/年, 4.59Tg/年, 28.5; NO<sub>x</sub>: 0.215TgNO<sub>2</sub>/年, 6.27TgNO<sub>2</sub>/年, 29.1; CO: 9.62Tg/年, 37.6Tg/年, 3.91; NMVOC: 1.06Tg/年, 10.1Tg/年, 9.54; NH<sub>3</sub>: 0.910Tg/年, 4.43Tg/年, 4.87; CO<sub>2</sub>: 0.161Pg/年, 1.57Pg/年, 9.77; PM<sub>10</sub>: 0.680Tg/年, 3.07Tg/年, 4.51; PM<sub>2.5</sub>: 0.636Tg/年, 2.28Tg/年, 3.59; BC: 0.119Tg/年, 0.423Tg/年, 3.56; OC: 0.486Tg/年, 1.28Tg/年, 2.63

この60年間の増加率では、SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、NMVOC、CO<sub>2</sub>が大きい、それぞれ比較的コンスタントな増加を示している。その傾向は、増加率がやや低めのCO、NH<sub>3</sub>、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC、OCについても同様である。

図(2)-18の上段及び中段は、東南アジアにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量について、それぞれ主要セクター別、主要燃料種類別に積み上げたグラフである。物質間の排出構造の違いは、基本的にはインドに近いが、セクター間、燃料種類間の割合には違いが見られている。SO<sub>2</sub>は、近年では石炭燃焼の割合が高いが、過去に遡るほど重油燃焼の割合が高くなっている。セクターは、発電起源、産業起源が半々程度であるが、2010年以降石炭火力発電所の増加によって排出量が急増している。NO<sub>x</sub>はイ

ンドに比べて自動車起源の割合が大きく、ディーゼル車だけでなくガソリン車からの寄与率も比較的高い。近年では石炭火力発電所の排出量も増加している。BCについては、インド同様家庭、植物燃料からの寄与分が大きい。寄与率は2015年でもそれぞれ62%、67%とインドの場合よりも高い。近年の排出量の増加については、産業での石炭燃焼、ディーゼル車からの影響が大きいのもインドと同様である。

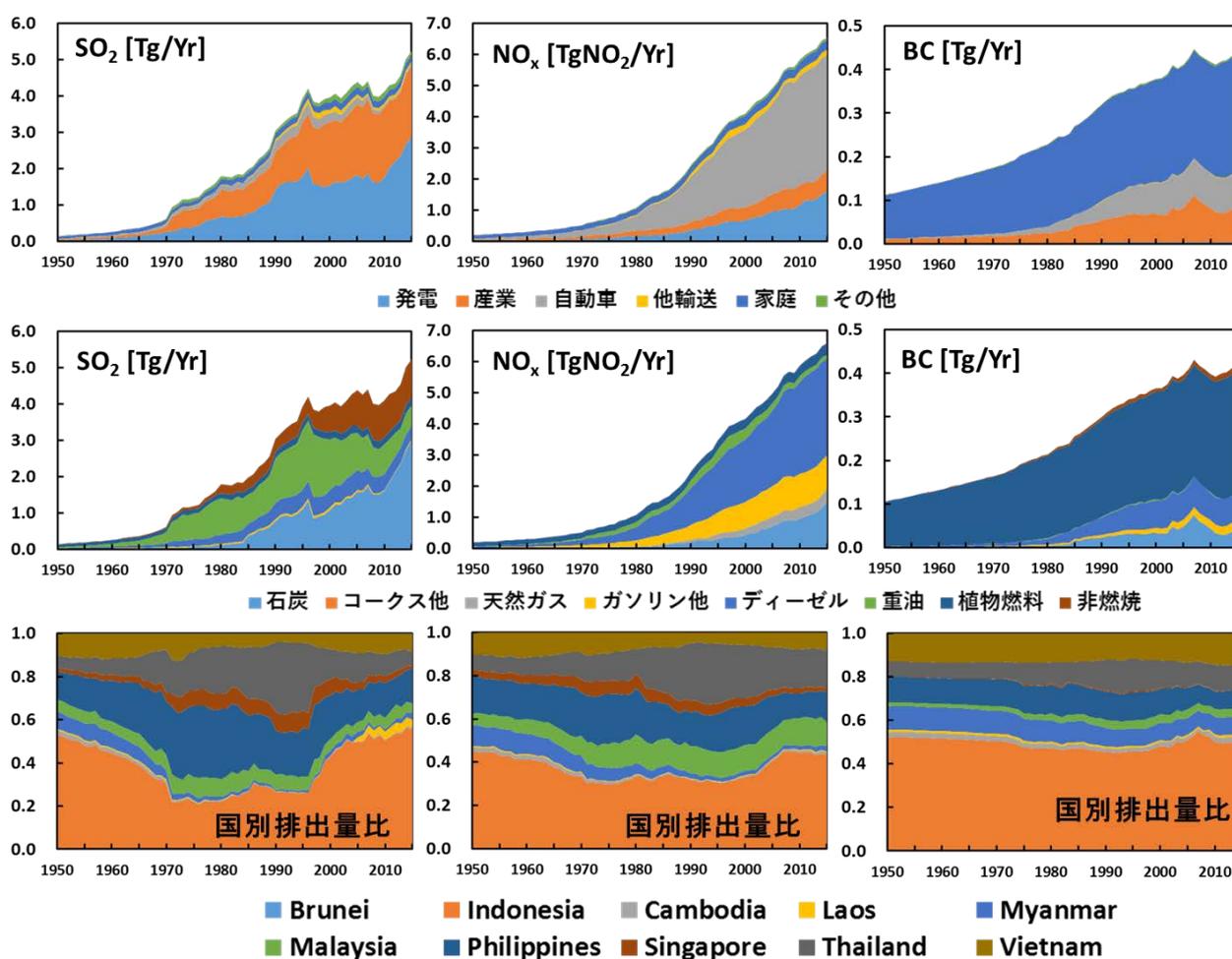
図(2)-18の下段は、東南アジアにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BC排出量について、各国の排出量比を比較したものである。2015年の各物質の上位5排出国（排出比率）は以下の通りであった。

SO<sub>2</sub>: Indonesia(55%)、Philippines(16%)、Vietnam(8%)、Thailand(6%)、Malaysia(5%)

NO<sub>x</sub>: Indonesia(43%)、Thailand(17%)、Philippines(14%)、Malaysia(11%)、Vietnam(9%)

BC: Indonesia(51%)、Vietnam(15%)、Thailand(11%)、Philippines(9%)、Myanmar(8%)

いずれの物質についても、近年の東南アジアにおける最大の排出国はインドネシアである。続く国は物質によって異なっているが、タイ、フィリピン、ベトナムは全ての物質について上位5排出国の中に入っている。過去から現在への変化に着目すると、タイのSO<sub>2</sub>の割合が1990年代の半ば頃から急速に減少していることが見て取れる。これは、1990年代前半に深刻な大気汚染を引き起こした大規模発電所に脱硫装置が設置されたためである。その結果、ピーク時の1996年の排出量に比べ、2015年では約25%まで減少している。



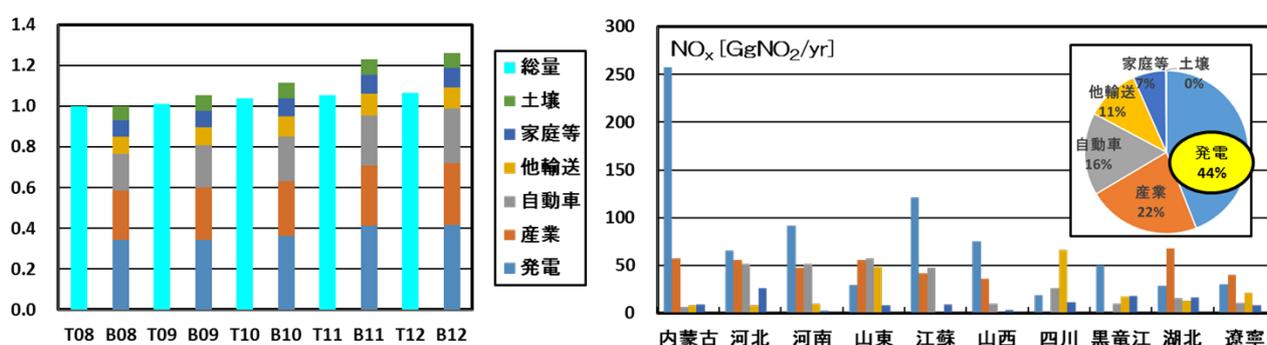
図(2)-18 東南アジアにおける1950-2015年のSO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、BCの（上段）セクター別（中段）燃料種類別排出量及び（下段）国別排出量比。

### （3）排出量逆推計結果による排出インベントリの評価

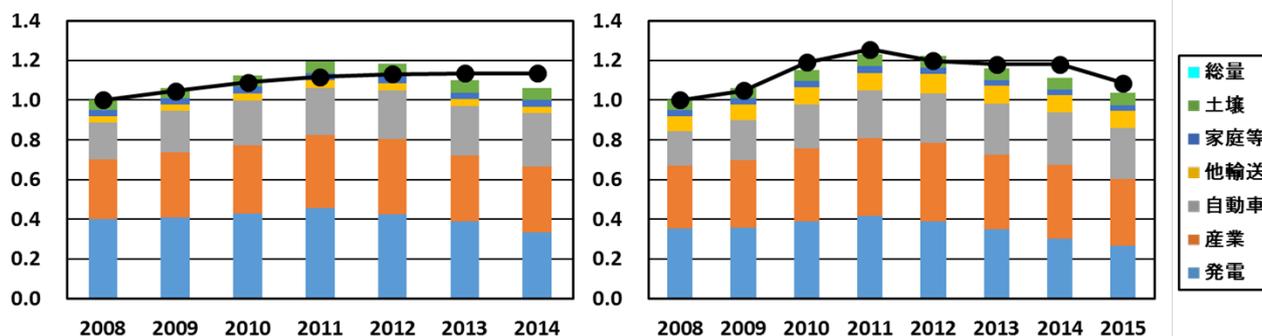
本研究では、平成26年度から30年度の5年間をかけてREASv3の開発を行ったが、3（3）2）に記述した通り、プロジェクト初期に、排出インベントリと排出量逆推計モデルによる中国NO<sub>x</sub>排出量の比較・解析を行った。図(2)-19の左のグラフは、2008年から2012年のトレンドを比較したものである。排

出量逆推計結果は全期間を通して微増であるのに対し、排出インベントリによる排出量は期間中に20%以上の増加を示し、特に2010年から2011年にかけて増加率の差が大きかった。そこで、2010年から2011年の省別の増加率に着目し、排出インベントリと排出量逆推計結果間で差が大きい上位10省について、排出インベントリにおけるセクター別の増分を比較した（図(2)-19右の棒グラフ）。セクター別の寄与率は省によって異なっているが、発電起源の増分が大きい省が目立っている。図(2)-19右の円グラフは、上位10省合計の増加分についてセクター別の比率を示したものであるが、実際に約45%は発電所からの寄与分であった。中国の第12次五ヵ年計画（2011-2015年）では、特に発電所への脱硝装置導入が計画されており、初期の排出インベントリでは、その効果の考慮が不十分であることが示唆された。そこで、Chen et al. (2014)<sup>20)</sup>などを参考に、主に発電所への脱硝装置の導入率について見直しを行い、排出インベントリを改良した。

図(2)-20の左のグラフは、プロジェクト中期において、排出インベントリと排出量逆推計モデルの中国NO<sub>x</sub>排出量のトレンドを比較したものである。排出インベントリでは、2011年まで排出量が増加した後、2012年以降排出量が減少に転じているが、排出量逆推計モデルによる排出量は、2011年まで排出量が微増した後減少傾向にはならず、2014年までほぼ横ばいとなっている。そこで、本研究以外のボトムアップ方式による排出インベントリの排出量についても調査を行った所、Li et al. (2017)<sup>13)</sup>に示された様々な排出インベントリのトレンドと比較しても、排出量逆推計モデルによるトレンドはやや不自然に平坦であった。排出インベントリの排出量は、Li et al. (2017)<sup>13)</sup>に示された全てのデータで2008年から2011年にかけて大幅に増加しており、2008年の排出量を先験情報として使用した場合、排出量の調整量に限界があることが考えられ、サブテーマ3に報告した。一方、排出インベントリについても、活動量データの経年連続性を調査し、使用された統計データの出版年の違いによるギャップについてなど、最新の統計データを用いて修正した。また、排出係数及び除去率の設定についても、Zeng et al. (2018)<sup>19)</sup>など最新の文献に基づいて更新し、排出量の再推計を行った。図(2)-20の右のグラフは、排出インベントリ、排出量逆推計モデルそれぞれのプロジェクト最終成果物の結果を比較したものである。排出インベントリ、排出量逆推計モデルの改良が行われた結果、両者のトレンドは極めて良い一致を示した。排出インベントリと排出量逆推計モデルの結果を比較・解析することは、排出インベントリの不確実性を評価・低減するだけでなく、排出量逆推計モデルの改良においても有用であることが本研究によって示された。



図(2)-19 (左) プロジェクト初期の排出インベントリ (Byy) と逆推計モデル (Tyy) によって推計された中国NO<sub>x</sub>排出量の比較。(排出インベントリはセクター別に積み上げられた排出量、逆推計モデルは総排出量で、それぞれ2008年の総排出量を1.0とした場合の比率。yyは2000年以降の西暦年の下二桁。) (右) 同排出インベントリによる省別NO<sub>x</sub>排出量推計値の、2010年から2011年のセクター別増分。(2010年から2011年の増加率について、排出インベントリと逆推計モデルの結果間で差が大きかった10省。円グラフは、10省の増分の合計値におけるセクター別の比率。)



図(2)-20 (左) プロジェクト中期の排出インベントリと逆推計モデルによって推計された中国NO<sub>x</sub>排出量の比較。(右) プロジェクト最終の排出インベントリと逆推計モデルによって推計された中国NO<sub>x</sub>排出量の比較。(棒グラフが排出インベントリによるセクター別に積み上げられた排出量、線グラフが逆推計モデルによる総排出量で、2008年の総排出量を1.0とした場合の比率。)

#### (4) まとめと今後の課題

本研究では、任意の発生源、排出プロセス、排出に関連する技術、除去に関連する技術に対する排出量の推計、個別発生源対策の定量評価、任意のシナリオに対する排出量の推計、任意のシナリオに対する大気モデル入力用グリッドデータの作成を可能とする、アジア域排出インベントリシステムを開発した。また、開発されたシステムを用いて1950-2015年を対象としたアジア域長期ヒストリカル排出インベントリを開発し、アジアのSLCP関連物質の排出実態と経年変化について解析を行った。

大気汚染物質、地球温暖化関連物質のアジア全域における1950-1955年平均年間排出量、2010-2015年平均年間排出量、その間の増加率は、SO<sub>2</sub>: 3.19Tg/年, 43.5Tg/年, 13.6; NO<sub>x</sub>: 1.84TgNO<sub>2</sub>/年, 49.9TgNO<sub>2</sub>/年, 27.1; CO: 55.7Tg/年, 269Tg/年, 4.82; NMVOC: 6.90Tg/年, 57.1Tg/年, 8.27; NH<sub>3</sub>: 8.98Tg/年, 33.3Tg/年, 3.71; CO<sub>2</sub>: 1.12Pg/年, 18.4Pg/年, 16.4; PM<sub>10</sub>: 5.76Tg/年, 28.4Tg/年, 4.92; PM<sub>2.5</sub>: 4.52Tg/年, 20.3Tg/年, 4.50; BC: 0.751Tg/年, 3.39Tg/年, 4.52; OC: 2.62Tg/年, 6.92Tg/年, 2.64であった。この60年の間に全ての物質の排出量は大幅に増加したが、増加の傾向には物質・地域によって違いが見られていた。日本の大気汚染物質排出量は、主に1960-70年代に増加した後、発生源対策の効果によって減少傾向を示し、2015年では、対策が全く行われなかったと想定した場合の排出量（以下未規制想定排出量）から、SO<sub>2</sub>は約93%、NO<sub>x</sub>は約75%が削減された。中国では、2000年代初頭から大気汚染物質の排出量が急増したが、近年では多くの物質で排出量は減少傾向に転じた。特にSO<sub>2</sub>でその傾向が顕著であり、発生源対策の効果によって2015年では未規制想定排出量から約80%が削減され、1990年時点とほぼ同等の排出量まで減少した。NO<sub>x</sub>も2011年を境に減少に転じており、2015年では未規制相当排出量から約43%が削減され、2010年から約10%排出量が減少した。一方、インドや東南アジアでは排出量の増加傾向が続いている。特にインドについては、近年中国の排出量が減少傾向にあることもあり、アジアにおける重要性が増してきている。

本研究では、中国のNO<sub>x</sub>を対象に、衛星観測データを使用した排出量逆推計モデルの結果を用いて、排出インベントリの改良を試みた。特に、排出インベントリの2010年から2011年の増加率が排出量逆推計の結果より大きいことに着目し、差異の大きい省のセクター別排出量の増分を比較した結果を踏まえ、発電所における脱硝装置導入率の見直しを行った。その一方で、改良された排出インベントリの結果から、排出量逆推計モデルの問題点が判明し、改良された排出量逆推計モデルの結果は、改良された排出インベントリと良い一致を示した。この様に、排出インベントリと排出量逆推計モデルの結果を比較することは、両者の改善につながることを示された。

本研究で示された通り、アジアは大気汚染物質、地球温暖化関連物質の排出の時間変動、空間変動が大きい地域である。また、最近ではアジアの様々な国を対象とする排出インベントリの研究も進んできた<sup>21), 22)</sup>。従って、アジア域排出インベントリシステムについても、継続的な更新・改良が必要である。今後の重要な課題点について、以下に整理する。

- 最新基準年の定常的な更新。
- インド、東南アジアにおける、大気汚染物質・地球温暖化関連物質の排出及び除去に関連する技術情報の収集、対応する活動量・排出係数・除去率データの整備。
- 非燃料燃焼発生源（NMVOC蒸発起源、NH<sub>3</sub>農業起源、産業プロセス起源など）の排出量推計手法の詳細化及び関連データの整備。
- 本研究で対象外としたSLCP関連物質（特にCH<sub>4</sub>）の対象物質への追加。
- 排出量時間変動ファクター（月変動、週内変動、日内変動）の更新。
- 排出量空間分配指標（鉛直プロファイルを含む）の更新。
- 発電所以外の大規模発生源の点源化。
- NO<sub>x</sub>以外を対象とした排出量逆推計モデルの結果に基づく、排出インベントリの検証・改良。
- 複数物質の排出量逆推計モデルと排出インベントリの連携による、準リアルタイム排出インベントリの開発。特に衛星観測データの活用。

## 5. 本研究により得られた成果

### （1）科学的意義

大気汚染物質、地球温暖化関連物質の動態において、地表面からの排出はその根本であり、大気中での輸送、反応、除去などのプロセスを含めた総合的な動態解明において基礎となるデータである。アジア域は20世紀後半から現在にかけて大気汚染物質、地球温暖化関連物質が大幅に増加したが、そのトレンドは国・地域によって異なっており、各国の実態を反映させた長期ヒストリカル排出インベントリが必要である。これまでにアジア諸国の年々の変動に重点を置いて開発された排出インベントリは、特定の国や対象期間が比較的近年のものに限られていた。また、長期ヒストリカル排出インベントリは全球レベルでは存在するものの、アジア諸国に対する精度は十分ではなかった。本研究では、世界で初めてアジア全域の国・地域に特化した長期ヒストリカル排出インベントリを開発した。この排出インベントリと、大気質モデル・化学気候モデルと組み合わせた研究を進めることで、アジアの大気汚染物質、地球温暖化関連物質の基礎的な動態解明に加え、局所的な大気汚染、比較的近い地域での越境大気汚染、広域的な越境大気汚染、気候変動への影響などに関する科学的な理解が進むことが期待される。

ボトムアップ方式の排出インベントリと排出量逆推計モデルの連携を通じた排出インベントリの改良は、世界的に見ても研究の進捗が不十分な分野である。本研究では中国のNO<sub>x</sub>を対象に、排出インベントリと、NO<sub>2</sub>カラム濃度衛星観測データを用いた排出量逆推計モデルによる排出量のトレンドを比較し、その結果を基に排出インベントリの除去率設定の見直しを行った。また、改良された排出インベントリの結果が、排出量逆推計モデルの改良に結びついた。衛星観測データを用いた排出インベントリの精緻化は、衛星センサーによる測定対象の広がりや精度の向上とともに重要性が増していく分野と考えられ、本研究の成果はその発展に寄与するものである。

### （2）環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

- 1) 平成26年度全国環境研協議会北海道・東北支部酸性雨広域大気汚染調査研究専門部会において、エミッションインベントリの開発と改良に関する講演を行い、本研究の概要や手法についても紹介し、会員の排出インベントリに関する知見の向上に貢献した。
- 2) 「平成27及び28年度光化学オキシダント調査検討業務」における「光化学オキシダント調査検討会」、「光化学オキシダントシミュレーションによる解析作業部会」、「平成28年度微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）発生源寄与割合推計に関する検討業務」における「平成28年度微小粒子状物質（PM<sub>2.5</sub>）発生源寄与割合推計に関する検討会」（以上、環境省）、「平成28年度大気汚染物質排出インベントリフレームワークの検討業務」、「光化学オキシダント等に関する文献等調査業務」（以上、大気環境学会による環境省委託調査）に、本業務で得られたアジア域の人為起源排出インベントリに関する知見・情報を提供した。また、環境省越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（平成25

～29年度)において、本研究の成果が使用された(5.2.5 アジア域排出インベントリシステムの開発、排出量変化分析)。

- 3) 本研究の成果である日本のBC排出量推計結果が、2017年2月に開催されたCCAC Scientific Advisory Panel Experts Workshopでの発表資料に使用された(発表者: 国立環境研究所茶谷聡氏)。また、平成29年度に開催された、CCAC高級担当者会合の資料作成のために同データが提供された。
- 4) 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)が主催し、EANET参加国の実務担当者及びその管理者を対象として2017年11月に開催された、排出インベントリトレーニングワークショップにおいて、本研究の成果が活用された。また、平成30年度に環境省とタイ公害管理局とで立ち上げられた、日タイクリーン・エアー・パートナーシップの公開ワークショップ、プロジェクト会合などにおいて、本研究で得られたアジア域排出インベントリの開発手法、活用事例、排出量逆推計モデルを用いた排出インベントリの評価などに関する知見・情報を提供した。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

本研究によって開発されたアジア域長期ヒストリカル排出インベントリは、大気汚染物質、SLCP関連物質濃度の緩和を検討する際の基礎データとなるものである。大気質モデル、化学気候モデル、統合モデルによるシナリオと組み合わせることによって、関連物質の大気濃度変動、越境大気汚染を含めた発生源寄与割合の解析、大気汚染対策の効果、気候変動による大気濃度への影響などについて定量評価が可能となり、大気汚染・気候変動の緩和及び適応に関する政策検討への貢献が期待される。具体的には、環境省環境研究総合推進費の研究や、大気汚染物質、気候変動に関する環境省の検討会・作業部会などで活用されることが見込まれる。

## 6. 国際共同研究等の状況

### (1) MICS-Asiaプロジェクト

【カウンターパート】 Zifa Wang・中国科学院大気物理研究所・中国、Gregory R. Carmichael・アイオワ大学・米国、Qiang Zhang・清華大学・中国、Jung-Hun Woo・建国大学・韓国ほか多数

【参加・連携状況】 アジアにおける大気質モデル・化学気候モデルの比較研究プロジェクトMICS-Asia (Model Inter-Comparison Study for Asia) は、共通の入力データを使用して複数の異なるモデルによるシミュレーションを実行し、その結果を比較することによって、現在のモデルの性能や課題点を把握すること、シミュレーション結果を用いて大気汚染物質濃度、沈着量などについて解析することを目的としている。MICS-Asia第3期では、共通排出インベントリとして、共同研究者の排出インベントリを組み合わせることで、信頼性の高いアジア域排出インベントリMIXを開発した<sup>2)</sup>。本研究で開発したアジア域排出インベントリの2010年データ(MIXインベントリ開発当時のデータ)がアジア域のベースデータとして使用されており、第4期で開発することが計画されている後継インベントリにおいても、本研究で開発されたREASv3が活用される予定となっている。

【国際的な位置づけ】 MICS-Asiaは、大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース(The Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP))とも連携しており、MIXインベントリはHTAPv2のインベントリに組み込まれ、世界中の様々な研究者によって活用されている<sup>3)</sup>。また、第4期で開発されるMIXの後継インベントリは、HTAPの後継インベントリにも活用されることが想定される。

### (2) GlobEmissionプロジェクト

【カウンターパート】 Ronald van der A, Bas Mijling・Royal Netherlands Meteorological Institute・オランダ、Trissevgeni Stavrakou・Belgian Institute for Space Aeronomy・ベルギー

【参加・連携状況】 アジア域排出インベントリ開発者の立場から、ボトムアップ方式による排出インベントリの開発と逆推計モデルとの連携状況についての情報提供、プロジェクトの活動や成果物に対する希望や助言をまとめた資料を提供した。その内容も含めたプロジェクト最終報告書がまとめられた([http://www.globemission.eu/docs/GE\\_Final\\_Report\\_public.pdf](http://www.globemission.eu/docs/GE_Final_Report_public.pdf))。

【国際的な位置づけ】GlobEmissionプロジェクトは、ESA (European Space Agency)の助成により立ち上げられ、2016年4月まで第2フェーズが継続された。衛星観測を利用して新しい排出インベントリを生成するシステムを設計・開発・検証すること、既存の排出インベントリの検証・更新・改良を行うことをその目的とした先駆的プロジェクトであり、衛星観測データの充実とともに、今後の発展が期待される研究分野である。

### (3) CEDSプロジェクト

【カウンターパート】Steven J. Smith・Joint Global Change Research Institute/University of Maryland・米国

【参加・連携状況】第6期結合モデル相互比較プロジェクト (Coupled Model Intercomparison Project Phase 6 (CMIP6)) 用排出インベントリを開発するために、本研究で開発したアジア域長期ヒストリカル排出インベントリの日本の1950-2010年データ (CMIP6インベントリ開発当時のデータ) を提供した。

【国際的な位置づけ】米国エネルギー省の地球システムモデリングプログラムの助成によって立ち上げられた、Community Emission Data System (CEDS)を開発するプロジェクトであり、初期の結果がCMIP6インベントリに使用された<sup>23)</sup>。CEDSの開発・改良は今後も継続される予定であり、本研究の最終プロダクトであるREASv3が活用されることが期待される。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文 (査読あり) >

- 1) S. K. SAHU, T. OHARA, G. BEIG, J. KUROKAWA, T. NAGASHIMA : Environmental Research Letters, 10, doi:10.1088/1748-9326/10/9/095002 (2015), Rising critical emission of air pollutants from renewable biomass based cogeneration from the sugar industry in India
- 2) G. JANSSENS-MAENHOUT, M. CRIPPA, D. GUIZZARDI, F. DENTENER, M. MUNTEAN, G. POULIOT, T. KEATING, Q. ZHANG, J. KUROKAWA, R. WANKMÜLLER, H. DENIER VAN DER GON, J. J. P. KUENEN, Z. KLIMONT, G. FROST, S. DARRAS, B. KOFFI, M. LI : Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 11411-11432 (2015), HTAP\_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution
- 3) H. IRIE, T. MUTO, S. ITAHASHI, J. KUROKAWA, I. UNO : SOLRA, 12, 170-174, (2016), Turnaround of tropospheric nitrogen dioxide pollution trends in China, Japan, and South Korea
- 4) M. LI, Q. ZHANG, J. KUROKAWA, J.-H. WOO, K. HE, Z. LU, T. OHARA, Y. SONG, D. G. STREETS, G. R. CARMICHAEL, Y. CHENG, C. HONG, H. HUO, X. JIANG, S. KANG, F. LIU, H. SU, B. ZHENG : Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 935-963 (2017), MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP
- 5) E. SAIKAWA, M. TRAIL, M. ZHONG, Q. WU, C. L. YOUNG, G. JANSSENS-MAENHOUT, Z. KLIMONT, F. WAGNER, J. KUROKAWA, A. S. NAGPURE, B. R. GURJAR : Environmental Research Letters, 12, 065002 (2017), Uncertainties in emissions estimates of greenhouse gases and air pollutants in India and their impacts on regional air quality
- 6) E. SAIKAWA, H. KIM, M. ZHONG, A. AVRAMOV, Y. ZHAO, G. JANSSENS-MAENHOUT, J. KUROKAWA, Z. KLIMONT, F. WAGNER, V. NAIK, L. W. HOROWITZ, Q. ZHANG : Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 6393-6421 (2017), Comparison of emissions inventories of anthropogenic air pollutants and greenhouse gases in China
- 7) A. H. SOURI, Y. CHOI, W. JEON, J.-H. WOO, Q. ZHANG, J. KUROKAWA : Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 122, 2474-2492 (2017), Remote sensing evidence of decadal changes

in major tropospheric ozone precursors over East Asia

- 8) J. DING, K. MIYAZAKI, R. J. VAN DER A., B. MIJILING, J. KUROKAWA, S. Y. CHO, G. JANSSENS-MAENHOUT, Q. ZHANG, F. LIU, P. F. LEVELT: Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 10125-10141 (2017), Intercomparison of NO<sub>x</sub> emission inventories over East Asia
- 9) R. M. HOESLY, S. J. SMITH, L. FENG, Z. KLIMONT, G. JANSSENS-MAENHOUT, T. PITKANEN, J. J. SEIBERT, L. VU, R. J. ANDRES, R. M. BOLT, T. C. BOND, L. DAWIDOWSKI, N. KHOLOD, J. KUROKAWA, M. LI, L. LIU, Z. LU, M. C. P. MOURA, P. R. O'ROURKE, Q. ZHANG: Geoscientific Model Development, 11, 369-408 (2018), Historical (1750-2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the Community Emissions Data System (CEDs)
- 10) 大原利眞、黒川純一: エアロゾル研究, 33, 95-101 (2018), アジア全域と中国・日本における大気エアロゾル関連物質排出量の長期変化
- 11) S. ITAHASHI, I. UNO, H. IRIE, J. KUROKAWA, T. OHARA: Land-Atmospheric Research Applications in South and Southeast Asia, 67-81, (eds.) K. P. VADREVU, T. OHARA, C. JUSTICE, Springer Remote Sensing/Photogrammetry, Springer International Publishing (2018), Impacts of biomass burning emissions on tropospheric NO<sub>2</sub> vertical column density over continental Southeast Asia

#### <その他誌上発表(査読なし)>

- 1) 黒川純一: 日本大気化学会ニューズレター, 32, 10-11 (2015), アジアにおける長期ヒストリカル排出インベントリの開発に向けて

#### (2) 口頭発表(学会等)

- 1) J. KUROKAWA, T. OHARA: 16<sup>th</sup> GEIA Conference, Colorado, United States (2014), Historical trends of anthropogenic emissions of air pollutants in Asia estimated in REAS (Regional Emission inventory in Asia)
- 2) J. KUROKAWA, Y. INOMATA, T. OHARA: 2<sup>nd</sup> ABC-SLCP Symposium, Tokyo, Japan (2014), Development of a system for creating and improving Asian emission inventory
- 3) J. KUROKAWA: High Level Sub-regional Consultation Advancing on Short-Lived Climate Pollutants (SLCPs) in Southeast and Northeast Asia, Bangkok, Thailand (2014), SLCP and other air pollutants: an introduction for policy makers
- 4) 黒川純一、大原利眞: 第55回大気環境学会年会 (2014), アジアにおける長期ヒストリカル排出インベントリの開発
- 5) 黒川純一: 平成26年度全環研北海道・東北支部酸性雨広域汚染調査研究専門部会 (2015), エミッションインベントリの開発と改良
- 6) 黒川純一、大原利眞: 第56回大気環境学会年会 (2015), アジアにおける長期ヒストリカル排出インベントリの開発(2)
- 7) J. KUROKAWA, T. OHARA: 13<sup>th</sup> international conference on ASAAQ, Kobe, Japan (2015), Developing historical emission inventory of air pollutants and greenhouse gases in Asia
- 8) J. KUROKAWA, T. OHARA: 17<sup>th</sup> GEIA conference, Beijing, China (2015), Long-term trend of air pollutants emissions in Japan
- 9) J. KUROKAWA, T. OHARA (presentation by T. STAVRAKOU): GlobEmission User Consultation Meeting, Doha, Qatar (2015), Developing historical emission inventory of air pollutants and greenhouse gases in Asia
- 10) 黒川純一、大原利眞、弓本桂也、板橋秀一、眞木貴史: 第57回大気環境学会年会 (2016), アジアにおける長期ヒストリカル排出インベントリの開発とその改良に向けて
- 11) J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, T. MAKI, T. NAGASHIMA, T. OHARA: 2016 AGU Fall

Meeting, California, United States (2016), Development and improvement of historical emission inventory in Asia

- 12) 黒川純一：環境省環境研究総合推進費戦略研究プロジェクトS-12第3回公開シンポジウム (2017) , 東アジアにおけるSLCP原因物質の排出実態と経年変化
- 13) J. KUROKAWA, T. NAGASHIMA, T. MAKI, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, T. OHARA : International workshop on Short-Lived Climate Pollutants (SLCP) emissions and impacts in East Asia, Kashiwa, Japan (2017), Historical trend of SLCP emissions in Asia over the past six decades
- 14) 黒川純一、大原利眞：第58回大気環境学会年会 (2017) , アジアにおけるSLCP関連物質排出量長期トレンドの評価
- 15) J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, T. NAGASHIMA, T. MAKI, T. OHARA : 18<sup>th</sup> Global Emission Initiative (GEIA) Conference, Hamburg, Germany (2017), Evaluation of historical emission inventory in Asia
- 16) 黒川純一、眞木貴史、弓本桂也、板橋秀一、永島達也、大原利眞：第23回大気化学討論会 (2017) , 排出インベントリと逆推計手法によるSLCP関連物質排出量の評価
- 17) J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, T. MAKI, T. NAGASHIMA, T. OHARA : Land Cover/Land Use Changes and Impacts on Environment in South/Southeast Asia, Quezon City, Philippines (2018), Historical analysis and inverse modeling of air pollutant emissions in Asia
- 18) J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, T. MAKI, T. NAGASHIMA, T. OHARA : Spring Meeting of the Korean Society of Climate Change Research, Jeju Island, Korea (2018), Development and evaluation of historical emission inventory in Asia
- 19) 黒川純一、弓本桂也、板橋秀一、眞木貴史、永島達也、大原利眞：第59回大気環境学会年会 (2018), 東南・南アジアにおける大気汚染物質の排出実態と経年変化
- 20) 黒川純一：第59回大気環境学会年会 (2018), 排出インベントリの開発・改良・検証の現状
- 21) J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, S. ITAHASHI, T. NAGASHIMA, T. MAKI, T. OHARA : 14<sup>th</sup> iCACGP Quadrennial Symposium/15<sup>th</sup> IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan (2018), Historical trends of air pollutant emissions in Asia: Development of Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3
- 22) 黒川純一、弓本桂也、板橋秀一、眞木貴史、永島達也、大原利眞：日本気象学会2018年秋季大会 (2018), アジアにおけるSLCP関連物質排出量と長期トレンドの評価
- 23) J. KUROKAWA : 2<sup>nd</sup> Workshop of Japan-Thailand Clean Air Partnership, Bangkok, Thailand (2018), Development of emission inventory and its applications

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

### (4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) アジア大気汚染研究センター一般公開 (平成26年8月7日、アジア大気汚染研究センター、参加者約40名) にて成果紹介
- 2) アジア大気汚染研究センター一般公開 (平成27年8月7日、アジア大気汚染研究センター、参加者約40名) にて成果紹介
- 3) 環境研究総合推進費戦略研究プロジェクトS-12第3回公開シンポジウム「地球温暖化と大気汚染による影響軽減に向けたあらたな取り組みー短寿命気候汚染物質 (SLCP) の影響評価とその削減対策ー」 (主催：環境研究総合推進費戦略研究プロジェクトS-12、2017年1月17日、東京大学福武ホール、一般参加者約100名) にて講演

- 4) 国立環境研究所公開シンポジウム（平成29年6月16日（滋賀県、びわ湖ホール）及び23日（東京都、メルパルクホール）、参加者それぞれ約200、600名）にて、本研究の成果が発表に使用された（発表者：国立環境研究所森野悠氏）
- 5) 新潟市立木崎中学特別授業（平成30年10月11日、アジア大気汚染研究センター、参加者約30名）にて講演

#### （5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

#### （6）その他

特に記載すべき事項はない。

### 8. 引用文献

- 1) J. KUROKAWA, T. OHARA, T. MORIKAWA, S. HANAYAMA, G. JANSSENS-MAENHOUT, T. FUKUI, K. KAWASHIMA, H. AKIMOTO : Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 11019-11058 (2013), Emission of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2
- 2) M. LI, Q. ZHANG, J. KUROKAWA, J.-H. WOO, K. HE, Z. LU, T. OHARA, Y. SONG, D. G. STREETS, G. R. CARMICHAEL, Y. CHENG, C. HONG, H. HUO, X. JIANG, S. KANG, F. LIU, H. SU, B. ZHENG : Atmospheric Chemistry and Physics, 17, 935-963 (2017), MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP
- 3) G. JANSSENS-MAENHOUT, M. CRIPPA, D. GUIZZARDI, F. DENTENER, M. MUNTEAN, G. POULIOT, T. KEATING, Q. ZHANG, J. KUROKAWA, R. WANKÜLLER, H. DENIER VAN DER GON, J. J. P. KUENEN, Z. KLIMONT, G. FROST, S. DARRAS, B. KOFFI, M. LI : Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 11411-11432 (2015), HTAP\_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution
- 4) T. OHARA, H. AKIMOTO, J. KUROKAWA, N. HORII, K. YAMAJI, X. YAN, T. HAYASAKA : Atmospheric Chemistry and Physics, 7, 4419-4444 (2007), An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020
- 5) ブライアン・R・ミッチェル編著、北村甫監訳：マクミラン新編世界歴史統計[2]アジア・アフリカ・大洋州歴史統計1750-1993、東洋書林
- 6) D. WHEELER, K. UMMEL : Center for Global Development, Working Paper 145 (2008), Calculating CARMA: Global estimation of CO<sub>2</sub> emissions from the power sector
- 7) J. PRAKASH, G. HABIB : Atmospheric Environment, 180, 192-205 (2018), A technology-based mass emission factors of gases and aerosol precursor and spatial distribution of emissions from on-road transport sector in India
- 8) H. HUO, Q. ZHANG, K. HE, Z. YAO, M. WANG : Energy Policy, 43, 6-16 (2012), Vehicle-use intensity in China: Current status and future trend
- 9) CLEAN AIR ASIA : Clean Air Initiative for Asian Cities Center Inc. (2012), Accessing Asia: Air Pollution and Greenhouse Gas Emissions Indicators for Road Transport and Electricity
- 10) 一般財団法人日本自動車研究所：自動車排出量推計業務（2010年版）報告書（2013）
- 11) N. KATO, H. AKIMOTO : Atmospheric Environment, 26A, 2997-3017 (1992), Anthropogenic emissions of SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> in Asia: emission inventories
- 12) T. C. BOND, D. G. STREETS, K. F. YARBER, S. M. NELSON, J.-H. WOO, Z. KLIMONT : Journal

- of Geophysical Research, 109, D14203 (2004), A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion
- 13) M. LI, H. LIU, G. GENG, C. HONG, F. LIU, Y. SONG, D. TONG, B. ZHENG, H. CUI, H. MAN, Q. ZHANG, K. HE : National Science Review, 4, 834-866 (2017), Anthropogenic emission inventories in China: a review
  - 14) P. SADAVARTE, C. VENKATARAMAN : Atmospheric Environment, 99, 353-364 (2014), Trends in multi-pollutant emissions from a technology-linked inventory for India: I. Industry and transport sectors
  - 15) D. A. PERMADI, A. SOFYAN, N. T. K. OANH : Atmospheric Environment, 154, 82-94 (2017), Assessment of emissions of greenhouse gases and air pollutants in Indonesia and impacts of national policy for elimination of kerosene use in cooking
  - 16) L. SLOSS: IEA Clean Coal Center, ISBN 978-92-9029-528-0 (2012), Mercury emissions from India and South East Asia
  - 17) J.-F. LAMARQUE, T. C. BOND, V. EYRING, C. GRANIER, A. HEIL, Z. KLIMONT, D. LEE, C. LIOUSSE, A. MIEVILLE, B. OWEN, M. G. SCHULTZ, D. SHINDELL, S. J. SMITH, E. STEHFEST, J. VAN AARDENNE, O. R. COOPER, M. KAINUMA, N. MAHOWALD, J. R. MCCONNELL, V. NAIK, K. RIAHI, D. P. VAN VUUREN: Atmospheric Chemistry and Physics, 10, 7017-7039 (2010), Historical (1850-2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application
  - 18) 環境省 : 平成14年度大気環境に係る固定発生源状況調査 (結果概要) (2003)
  - 19) B. ZHENG, D. TONG, M. LI, F. LIU, C. HONG, G. GENG, H. LI, X. LI, L. PENG, J. QI, L. YAN, Y. ZHANG, H. ZHAO, Y. ZHENG, K. HE, Q. ZHANG : Atmospheric Chemistry and Physics, 18, 14095-14111 (2018), Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions
  - 20) L. CHEN, Y. SUN, X. WU, Y. ZHANG, C. ZHENG, X. GAO, K. CEN : Atmospheric Environment, 99, 527-535 (2014), Unit-based emission inventory and uncertainty assessment of coal-fired power plants
  - 21) S.-Q. DOTSE, L. DAGAR, M. I. PETRA, L. C. DE SILVA: Atmospheric Environment, 133, 81-92 (2016), Evaluation of national emissions inventories of anthropogenic air pollutants for Brunei Darussalam
  - 22) T. JAYARATHNE, C. E. STOCKWELL, P. V. BHAVE, P. S. PRAVEEN, C. M. RATHNAYAKE, MD. R. ISLAM, A. K. PANDAY, S. ADHIKARI, R. MAHARJAN, J. D. GOETZ, P. F. DECARLO, E. SAIKAWA, R. J. YOKELSON, E. A. STONE: Atmospheric Chemistry and Physics, 18, 2259-2286 (2018), Nepal Ambient Monitoring and Source Testing Experiment (NAMASTE): emissions of particulate matter from wood- and dung-fueled cooking fires, garbage and crop residue burning, brick kilns and other sources
  - 23) R. M. HOESLY, S. J. SMITH, L. FENG, Z. KLIMONT, G. JANSSENS-MAENHOUT, T. PITKANEN, J. J. SEIBERT, L. VU, R. J. ANDRES, R. M. BOLT, T. C. BOND, L. DAWIDOWSKI, N. KHOLOD, J. KUROKAWA, M. LI, L. LIU, Z. LU, M. C. P. MOURA, P. R. O'ROURKE, Q. ZHANG : Geoscientific Model Development, 11, 369-408 (2018), Historical (1750-2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the Community Emissions Data System (CEDS)

## II-3 地域スケールの排出量逆推計システムの構築

国土交通省気象庁気象研究所

環境・応用気象研究部 第一研究室

眞木 貴史

環境・応用気象研究部 第四研究室

田中 泰宙

九州大学 応用力学研究所

弓本 桂也（平成26～28年度）

<研究協力者>

国土交通省気象庁気象研究所

環境・応用気象研究部 第四研究室

梶野 瑞王

環境・応用気象研究部 第一研究室

大島 長

一般財団法人電力中央研究所 環境科学研究所

板橋 秀一

平成26～30年度累計予算額：88,500千円

（うち平成26年度：20,352千円、平成27年度：19,334千円、平成28年度：18,367千円、平成29年度：15,614千円、平成30年度：14,833千円）

累計予算額は、間接経費を含む。

### [要旨]

観測データと化学輸送モデルを用いてSLCP（NO<sub>x</sub>、BC）の排出量を逆推計するシステムを開発した。NO<sub>x</sub>に関しては中国とインドに関して2008年から2016年にかけての解析を行った結果、中国においては2011年頃にNO<sub>x</sub>の排出量が最大となり、これ以降は排出量が減少する傾向となった。一方、インドにおいてはほぼ単調にNO<sub>x</sub>排出量が増加しておりこのままの傾向が続くと仮定すると2020年代半ばに両国のNO<sub>x</sub>排出量が拮抗し、それ以降はインドが世界最大のNO<sub>x</sub>排出国になることが示唆された。BCに関しては中国、日本、韓国に関して2011年から2014年に関する排出量逆推計を実施した。その結果、2014年時点で日本、韓国では排出量が2010年に対して微減、中国では5%の減少となった。中国では主に東北部と沿岸部での減少幅が他の地域と比較して大きかった。

### [キーワード]

大気汚染、数値モデル、排出インベントリ、逆推計、衛星観測

### 1. はじめに

発展途上国の急激な経済発展を背景とし、短寿命大気汚染物質（SLPC）を含むエアロゾル・大気微量気体の排出量増加、それに伴う大気質の悪化が大きな社会問題となっている。これは特に東アジア域において顕著であり、我が国においても越境大気汚染として強い関心を集めた。SLPCは気候への影響も指摘されており、これらの影響の正確な評価が今後の環境政策の立案においても求められる。

こういった大気汚染物質の環境影響評価と対策立案の第一歩が、汚染物質の排出イベントリ（EI）の推定である。EIはそれ自体が排出量の推移を知る重要なデータベースである一方、アジア太平洋統合モデル（AIM）・化学輸送モデル（CTM）・全球気候モデル（GCM）など様々なアプリケーションに必要な不可欠な入力情報となっている。しかし、以下のような問題点も残されている。

#### ①不確実性

様々な統計量・仮定を元に作成されるEIは、それぞれに含まれる誤差を積算し大きな不確実性をもつ。この不確実性はEIを入力条件としたアプリケーションの結果に反映されてしまう。

#### ②即応性

EIは統計量が出揃ってからの作成となるため、即応性に欠け、算出が2～5年遅れてしまう。そのため、最新の解析を行うには外挿などで得た仮想的な値を用いる必要がある。

### ③時間再現性

EIの多くは時間分解能が月単位までであり、特別なイベントや日変化を詳しく推定することは難しい。

## 2. 研究開発目的

上述の問題点に対して、本研究ではデータ同化を応用した逆推計モデル（IM）の確立を目的とする。IMでは、EIを「基礎データ」、数値モデルを「感度」、観測データを「拘束条件」として融合し、汚染物質排出量を逆推計（最適化）することで、含まれる誤差を最小にする。得られた排出量を各アプリケーションに入力することで、大気汚染解析や影響評価をより高精度で行え、現象の理解や政策策定に大きく貢献することができる。最新の観測データを用いて、排出量の速報値の作成や変動の検出も可能である。

## 3. 研究開発方法

本サブテーマにおいては、短寿命気候汚染物質（SLCP）の人為的排出量を観測データと化学輸送モデルを用いて解析する手法を開発した。主なターゲットはNO<sub>x</sub>とBCである。NO<sub>x</sub>に関しては、衛星観測データを用いた逆解析手法を新たに開発して検証および改良等を実施した。BCに関しては長寿命大気組成の逆推計で実績のあるベイズ統合逆推計の手法を導入した。

### （1）窒素酸化物（NO<sub>x</sub>）排出量逆推計システム

衛星観測データ、サブテーマ1から提供された化学輸送モデルを統合させ、サブテーマ2から提供された排出インベントリを補完し逆推計を行う窒素酸化物（NO<sub>x</sub>）排出量逆推計システムの開発を行った。逆推計システムは次の4つの要素で構成される（図(3)-1）。①先見情報である排出量インベントリ（EI）、②拘束条件となる観測データ、③排出量と観測値を繋ぐ感度を提供する化学輸送モデル（CTM）、そして④統計学的に最適値を求める計算モジュール（逆推計モデル）である。

- ① 先見情報である排出量インベントリには、サブテーマ2から提供されたREASv2.1（Regional Emission inventory in ASia version 2.1）を用いる。REASv2.1は2000年から2008年まで整備されている。2009年以降は2008年の排出インベントリを先見情報として逆推計を行った。
- ② 拘束条件となる観測データには、Aura衛星に搭載されているOMIセンサーの観測から得られた対流圏NO<sub>2</sub>鉛直カラム濃度（VCD）を用いた。OMIは紫外から可視にかけ観測バンドを有し、赤道を現地遅刻の13時40分に通過する。観測ピクセルの解像度は13×24 kmから24×135 kmである。本研究では、Tropospheric Emission Monitoring Internet Service（TEMIS）で提供されているDOMINO v2.01（Ducth OMI tropospheric NO<sub>2</sub> data product: Boersma et al., 2011<sup>1)</sup>）による走査ごとのデータを用いた。晴天時のみのデータを利用し、モデルの解像度に合わせて内挿を行った。
- ③ 感度の情報として用いる化学輸送モデルの計算結果はサブテーマ1から提供された。サブテーマ1と同じモデルを同じ計算設定で用いることで、モデルを用いた大気質変件事例の解析において、逆推計の結果（すなわち、排出量の影響）を適切に考慮に入れることができる。化学輸送モデル（CMAQ）の詳細については、サブテーマ1の項目を参考にされたい。また、逆推計過程での化学輸送モデルの影響（不確実性）を評価するために、CMAQモデルとは別にGEOS-Chemモデルを用いた逆推計も行った（マルチモデルアンサンブル）。両モデルで得られた結果を比べることで、化学輸送モデルの反応過程、輸送、沈着過程等の違いが逆推計に与える影響を評価でき、逆推計で得られた排出量に含まれる誤差の客観的な推定にも繋がる。GEOS-Chem（Bey et al., 2001<sup>2)</sup>）は全球対流圏輸送モデルで、1方向ネスティングを利用した東アジア域0.5° × 0.667°の計算結果を用いた。CMAQを用いた逆推計は2005-2015年、GEOS-Chemを用いた逆推計は2009-

2012年に対して行った。逆推計を行うためには、観測で得られたNO<sub>2</sub> VCDとモデルの出力を適切に比較する必要がある。本研究では、モデル出力を観測ピクセルの位置に内挿し、それぞれの観測ピクセルに合わせたNO<sub>2</sub> VCDを求めた後、それぞれのNO<sub>2</sub> VCDをモデルと同じグリッド上に平均することで実現した。これにより、モデルの結果を観測に合わせてピックアップでき、サンプリングエラーやスムージングエラーを除外することができる。

- ④ 逆推計のための手法の設計と計算プログラムの構築を行った。Martin et al. (2006)<sup>3)</sup>、Lamsal et al. (2011)<sup>4)</sup>で提唱された手法を拡張し、以下の様な逆推計手法を新たに開発した。Martin et al. (2006)<sup>3)</sup>では、NO<sub>x</sub>排出量とNO<sub>2</sub>気柱量が式(1)のような線形関係であると仮定し、逆推計を行っている

$$E = \alpha \Omega \quad (1)$$

しかし、この線形関係を用いるのは少々乱暴である。本手法では、あるNO<sub>x</sub>排出量( $E_0$ )からのある変化( $\Delta E_0$ )の範囲内では、排出量の変化とNO<sub>2</sub>気柱量の変化( $\Delta \Omega_0$ )との間に線形関係が成り立つと仮定する。

$$\Delta E_0 = \beta \Delta \Omega_0 \quad (2)$$

この関係式の肝である係数 $\beta$ は化学輸送モデルによる感度実験で求める。ここでは、標準 (a priori) の排出量を20%増加させたシミュレーションを追加で行った。標準計算の排出量と気柱

量をそれぞれ $E_f$ 、 $\Omega_f$ 、追加感度実験の排出量と気柱量をそれぞれ $E'_f = (1 + \delta)E_f$ 、 $\Omega'_f$ とすると、式(2)と係数 $\beta$ は以下の式で計算することができる。

$$E'_f - E_f = \beta(\Omega'_f - \Omega_f) \quad (3)$$

$$\beta = \frac{\delta E_f}{(\Omega'_f - \Omega_f)} \quad (4)$$

つぎに、線形不偏最適推定をNO<sub>2</sub>気柱量に対して行う（観測されたNO<sub>2</sub>気柱量を同化して、モデルのNO<sub>2</sub>気柱量を最適化する）。NO<sub>2</sub>気柱量の誤差が対数正規分布に従うと仮定し、観測値を $\Omega_o$ 、その誤差を $\varepsilon_o$ 、標準計算の気柱量を $\Omega_f$ 、その誤差を $\varepsilon_f$ とすれば、最適化された気柱量( $\Omega_a$ )とその誤差（解析誤差 $\varepsilon_a$ ）を次のように求めることができる。

$$\ln \Omega_a = \frac{(\ln \Omega_o)(\ln \varepsilon_f)^2 + (\ln \Omega_f)(\ln \varepsilon_o)^2}{(\ln \varepsilon_f)^2 + (\ln \varepsilon_o)^2} \quad (5)$$

解析誤差は、

$$\frac{1}{\ln(\varepsilon_a)^2} = \frac{1}{\ln(\varepsilon_f)^2} + \frac{1}{\ln(\varepsilon_o)^2} \quad (6)$$

で表すことができる。

あらかじめ求めたモデルのバイアス( $B$ )の影響を、逆推計に含めるためには、 $\Omega_f$ の代わりに

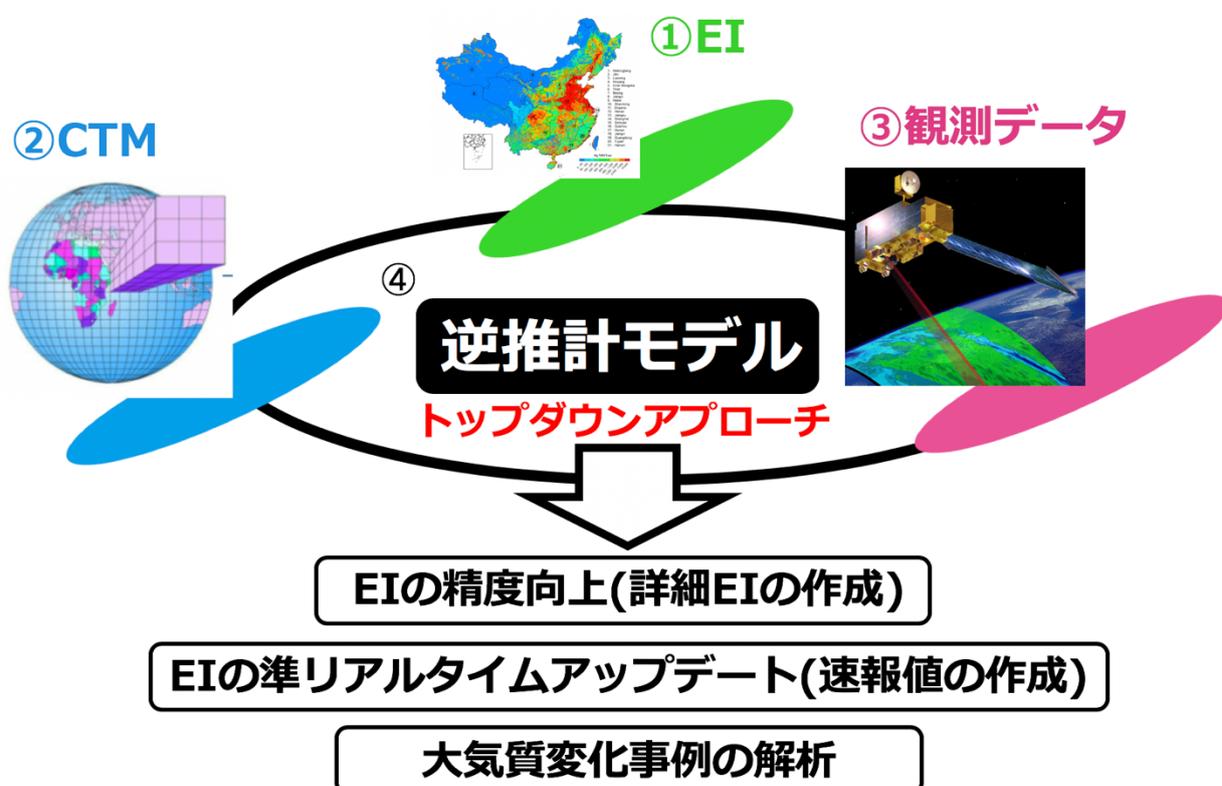
$$\hat{\Omega}_f = \Omega_f - B$$

を用いて式(5)を解く。最後に式(3)の関係を用いて、気柱量 $\Omega_a$ に対応するNO<sub>x</sub>排出量( $E_a$ )を計算する。

$$E_a = \left( 1 + \delta \frac{\Omega_a - \Omega_f}{\Omega'_f - \Omega_f} \right) E_f \quad (7)$$

本手法の独創的な部分は、準リアルタイム更新に必要な計算の簡便さを維持しつつ、線形不偏最適推定を適用しモデルと観測の誤差を解析に含めたこと、モデルのバイアスの効果を考慮したことである(弓本他、2015<sup>5)</sup>)。背景誤差はサブテーマ2で見積もられた値を、観測誤差は観測データに付記された誤差情報を、モデルのバイアスは2005-2008年の計算結果との比較から予め見積もった。また、中国においては2009-2011年にかけてNO<sub>x</sub>の排出量が大幅に増加した。そのため、2008年の排出インベントリを先見情報として利用したところ、現実との乖離が大きいため、逆推計システムは排出量を過小評価した。そのため、2009-2011年にかけては、REASv2.1を先見情報とはせず、前年の逆推計結果を用いる逐次法を採用した(たとえば、2011年の逆推計には、逆推計で得られた2010年の排出量を先見情報として用いる)。これにより、中国の排出量の急激な伸びとピーク年を逆推計によって正確に再現できるようになった。

開発した逆推計システムを用い、2005-2016年の長期に渡る中国及びインドのNO<sub>x</sub>排出量の推定を行った。得られた逆推計結果は各サブテーマにフィードバックされている。サブテーマ1では、逆推計前後の排出量を用いた数値シミュレーションを行うことで排出量の変化が大気質に与える影響を評価している。サブテーマ2では、排出インベントリ作成プロセスの改良に活用されている。



図(3)-1 排出量逆推計システム (IM) の概要。構築した逆推計モデルで排出インベントリ (EI)、観測データ、化学輸送モデル (CTM) の三者を統合する。

## (2) ブラックカーボン (BC) 排出量逆推計システム

BCに関しては、NO<sub>x</sub>と比較して化学変化よりは輸送過程が濃度変化における支配的な要因と考えられるため、これまでに研究グループが長寿命物質(二酸化炭素、黄砂等)用に研究開発を続けてきたベイズ統合逆推計を用いた解析システム(Gurney et al., 2002<sup>6)</sup>)を適用した。この手法では、解析したい物質を一定量解析したい領域からのみ放出し(タグ付き輸送実験)、観測値における当該物質の濃度はタグ付き輸送実験の線形結合で表現できると仮定する(式(8))。ここで、 $y$ は観測値を、 $x$ は各領域のBC排出量を、 $A$ はタグ付き輸送実験による輸送係数を示す。

$$\begin{pmatrix} y_1 \\ y_2 \\ \bullet \\ \bullet \\ y_m \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} & \bullet & \bullet & A_{1n} \\ A_{21} & A_{22} & \bullet & \bullet & \bullet \\ \bullet & \bullet & \bullet & \bullet & \bullet \\ \bullet & \bullet & \bullet & \bullet & \bullet \\ A_{m1} & \bullet & \bullet & \bullet & A_{mn} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \\ \bullet \\ \bullet \\ x_n \end{pmatrix} \quad (8)$$

得られた観測データの結果を最もよく再現できるように各タグ付き輸送実験の結果をどう調整すればよいかを評価関数を用いて決定する（式(9)）。ここで、 $x_p$ は各領域フラックスの先験情報（今回の場合はREASv2.1）、 $C_y$ は観測誤差を、 $C_x$ は先験情報の誤差を示す。今回は感度実験の結果 $C_y$ を20%とし、 $C_x$ を20%とした。

$$S(\mathbf{x}) = (\mathbf{Ax} - \mathbf{y})^T C_y^{-1} (\mathbf{Ax} - \mathbf{y}) + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_p)^T C_x^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_p) \quad (9)$$

この評価関数では、観測値とタグ付き輸送計算結果の線形結合の距離と、あらかじめ分かっている先験情報と線形結合に用いる解析値との距離の和を最小化するように解析値を決定する（式(10)）。

$$\mathbf{x} = \mathbf{x}_p + (\mathbf{A}^T C_y^{-1} \mathbf{A} + C_x^{-1}) \mathbf{A}^T C_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{Ax}_p) \quad (10)$$

このため、観測値とも整合性を取りつつ自然な解を得られるという特徴がある。実際の解析に際しては特異値分解と呼ばれる手法を用いて数値的に解析を行う。この解析手法の大きな特徴としては、解析値とともに解析値の不確かさがあくまでも先験情報との相対的なものとなるが数値的に求まるという点である。このため、ある観測網がフラックス収支逆推定を行った後にどれくらい不確かさの低減に繋がったかを数値的に示すことができるという特徴がある。

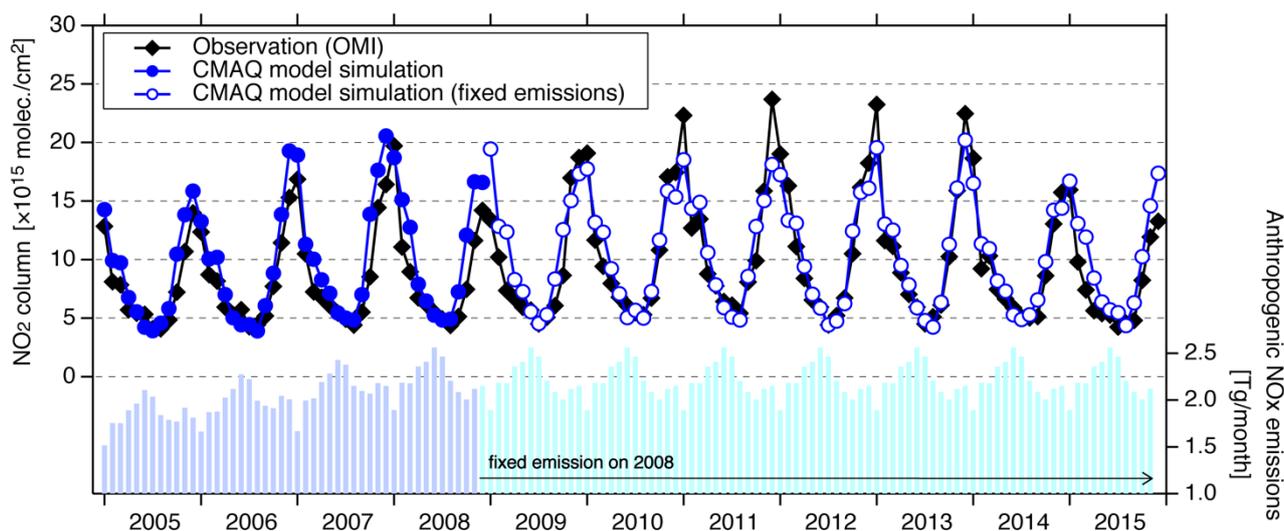
今回の逆推計には気象研究所が開発した全球エアロゾル輸送モデル（MASINGAR mk-2 ; Tanaka et al., 2005<sup>7)</sup>）を用いた。このモデルは気候予測研究に用いられると共に、気象庁の黄砂予測業務にも用いられている。本解析に領域モデルではなく全球モデルを用いた理由は、月平均のBC排出量推計を実施するためタグ付き輸送計算を最低でも2ヶ月は行う必要があり、領域化学輸送モデルでは境界条件のために正確な輸送計算が実施できないためである。解析領域としては中国の各省・自治区・特別行政区（33領域）、韓国、日本を対象とした。観測データとしては主に連続測定器（COSMOS）で取得されている地上観測データに加え、衛星観測データ（OMIによるAAOD）を用いた。地上観測データは辺戸、五島、富山、八方、Lulin（台湾）のデータを用いた。観測データはいずれも月平均値を算出し、品質評価を行った。解析期間は2011～2014年としてモデルを駆動する気象データとして気象庁再解析（JRA-55）を用いた。2010年についてはサブテーマ2より提供を受けた排出量インベントリ（REASv2.1）を用いたモデル計算を行い、モデルと観測値の差をモデルのバイアスと見なして2011年以降の観測値に対するバイアス補正を行った。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) 窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) 排出量逆推計システム

図(3)-2に中国東部における衛星とモデルのNO<sub>2</sub> 対流圏NO<sub>2</sub>鉛直カラム濃度（VCD）の推移を示す。中国におけるNO<sub>2</sub> VCDは明確な季節変動を示し、夏に過小、冬に過大となる。また、2008年から2009年にかけて特徴的な推移が見られる。それまでは増加傾向だったNO<sub>2</sub> VCDが減少している。これはリーマン

ショックを発端にした世界的な景気減退の影響だと考えられる。2010年以降は再び増加傾向となっている。この増加傾向は2013年まで続き、2014年あたりからNO<sub>2</sub> VCDは減少を始めている。同図中の下段にはREASv2.1によるNO<sub>x</sub>排出量の推移を示す。REASv2.1は2008年までの推定なので、それ以降は2008年の排出量が繰り返し使われている。NO<sub>2</sub> VCDとは逆に夏で過大に、冬に過小となる点に特徴がある。排出量も2005年以降2008年にかけて増加している。OMIの観測結果に、REASv2.1を使ったCMAQの計算結果を重ねてみる。CMAQはOMIで観測されたNO<sub>2</sub> VCDの季節変化、年々変動をよく捉えている。ただし、2008年以降は同じ排出量を使用しているため、2008-2009年の景気減退の影響が取り入れられておらず、その期間は過大となっている。また、増加が続いた2010-2013年においてもその増加傾向を再現出来ていない。こういった社会経済情勢や環境施策に影響を受ける排出量のダイナミックな影響を正確にモデル計算に取り入れるには逆推計による排出インベントリの補完が重要となる。



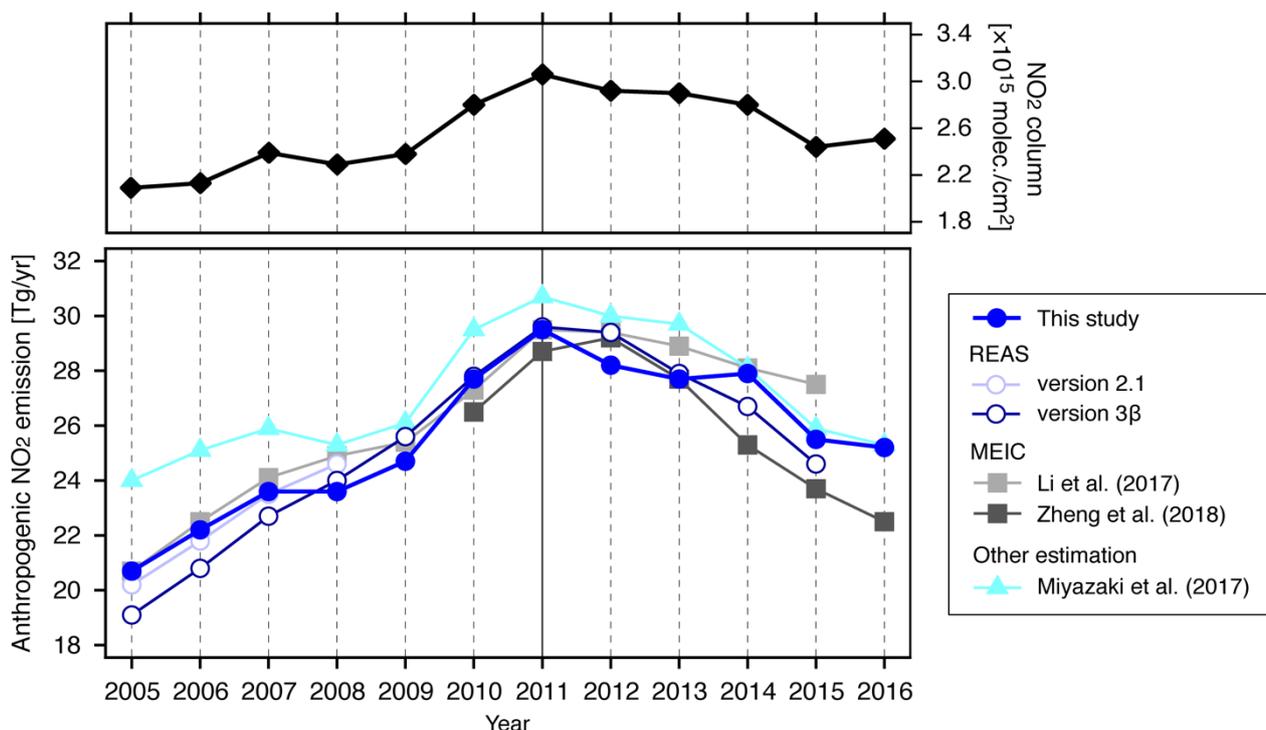
図(3)-2 中国東部（東経 105-134°、北緯 24-42°）における OMI 観測と CMAQ モデルによる NO<sub>2</sub> VCD の推移。下のバーは REASv2.1 による NO<sub>x</sub> 排出量の推移。

図(3)-3に中国における、OMI衛星で観測されたNO<sub>2</sub> VCDと逆推計で得られたNO<sub>x</sub>排出量の推移を示す。逆推計結果を検証するため、サブテーマ2で更新されたREAS排出インベントリの値 (Updated REAS; Kurokawa et al., 2018<sup>8)</sup>) および、中国の研究グループによる見積もり (MEIC; Li et al., 2017<sup>9)</sup>; Zheng et al., 2018<sup>10)</sup>)、Miyazaki et al. (2017)<sup>11)</sup>らによる別システムによる逆推計結果を示す。まず、OMIで観測されたNO<sub>2</sub> VCDを始め、全ての排出量推計で増加傾向が見られる。増加傾向は2011年まで続いており、2012年以降がVCD、排出量ともに減少傾向に転じている。増加傾向にある2005-2011年においても、突然の減少がVCDおよび排出量推定に見られる。これは、2008年後半に起こった世界的な景気後退 (いわゆるリーマン・ショック) が要因の一つであると考えられている (Lin and McElroy, 2011<sup>12)</sup>; Itahashi et al., 2014<sup>13)</sup>)。われわれの逆推計結果 (図(3)-3の青線) は、他の排出インベントリによる推計および逆推計結果とも良い一致をみせており、構築した逆推計システムが現実的な排出量の推定を行えていることを表している。

排出量のピークを迎えた2011年前後の排出量の傾向を表(3)-1に示す。2005年から2011年にかけては、どの排出量推計も増加傾向を示し、その増加量 (率) は1.0-1.7 Tg/year (+3.9-7.1 %/year)であった。本研究によって推計された増加量 (率) は1.4 Tg/year (5.6 %/year)で、推計量の中でも中間の値であった。2012年以降は一転して減少傾向になっている。本研究では2011-2016年間の減少量 (率) を-0.8 Tg/year (3.0 %/year)と見積もっている。他の排出量推計と合わせると減少量 (率) -0.5-1.4 Tg/year (-1.8-5.4 %/year)となり、2011年以前の増加量に及ばないもののその減少量は少ない。実際、2016年の排出量は2007-2008年のレベルまで減少している。このNO<sub>x</sub>排出量の減少は中国において脱窒装置が広く普及したことや新しい車の排出規制が設定されたためだと考えられる

(Kurokawa et al., 2018<sup>6)</sup>; Zheng et al., 2018<sup>10)</sup>。

図(3)-3および表(3)-1より最新の推計でもあっても、幾つかの排出インベントリでは2015年までしかデータが入手できないことがわかる。これは、「1. はじめに」で述べたとおり、排出インベントリの算出に時間がかかってしまうことに起因する。示したとおり、中国の排出量は年々大きく変動する。数値モデルによる大気化学天気予測の実施や環境政策の策定のためには、本課題で示したような最新の排出量推計を用いる必要がある。



図(3)-3 OMI 観測で観測された NO<sub>2</sub> VCD の推移（上段）、本研究および他の排出インベントリで推計された中国人為起源 NO<sub>x</sub> 排出量の年々変動。

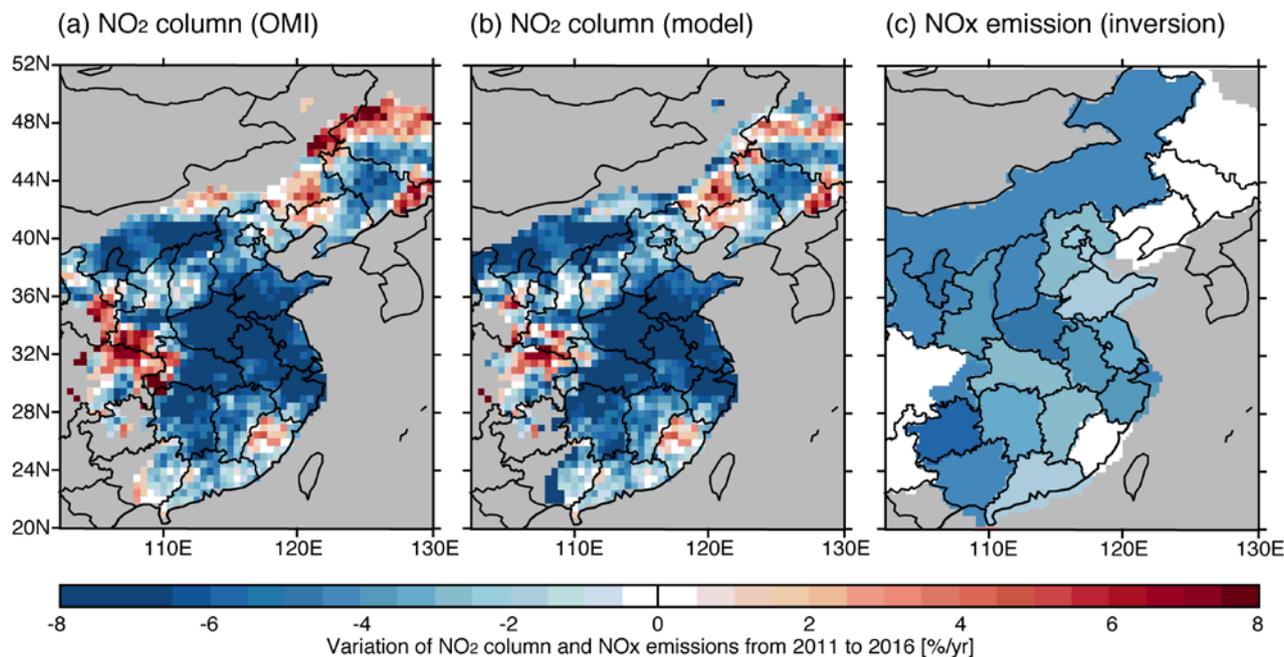
表(3)-1 2011年前後の中国におけるNO<sub>x</sub>排出量の推移。

Period	2005-2011	2011-2015	2011-2016
This study	+1.4 (+5.6)	-0.8 (-2.9)	-0.8 (-3.0)
REAS version 3β	+1.7 (+7.1)	-1.3 (-4.5)	-
Li et al. (2017)	+1.3 (+5.4)	-0.5 (-1.8)	-
Zheng et al. (2018)	-	-1.4 (-5.2)	-1.4 (-5.4)
Miyazaki et al. (2017)	+1.0 (+3.9)	-1.1 (-4.0)	-1.2 (-4.1)

単位はTg/year (%/year)

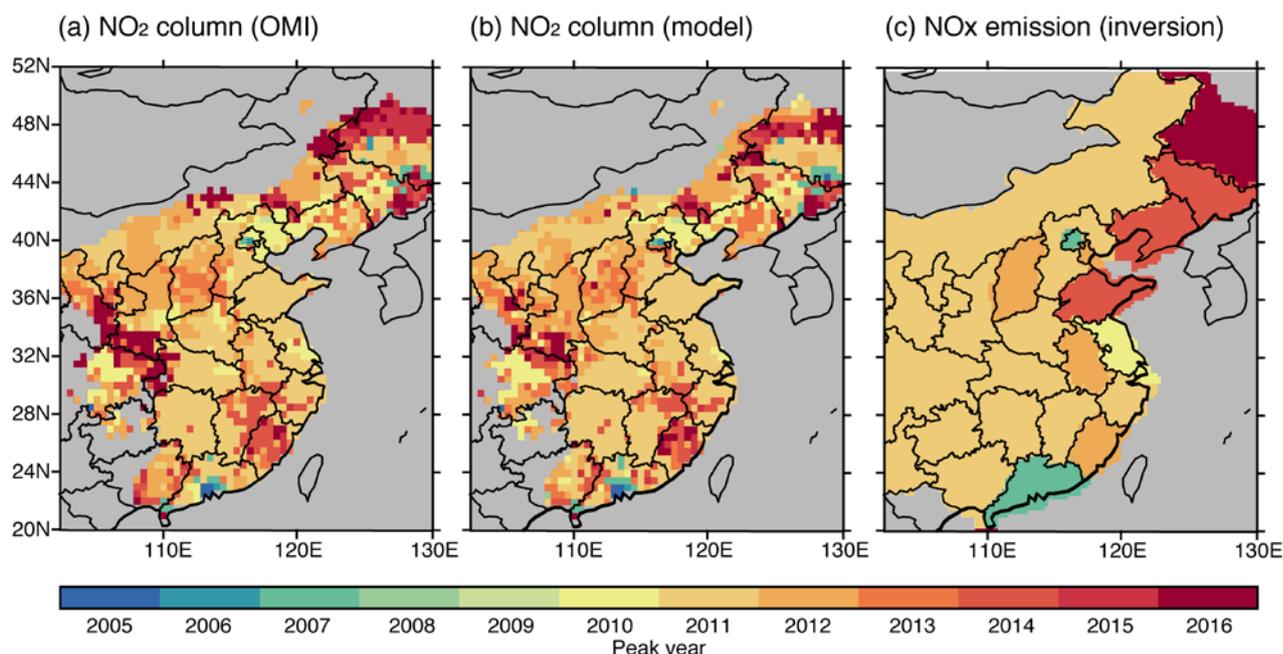
図(3)-4に中国における2011年から2016年にかけての増減率の空間分布を示す。それぞれ、衛星で観測されたNO<sub>2</sub> VCD (a)、逆推計によって得られた排出量を境界条件とした化学輸送モデルによって再現されたNO<sub>2</sub> VCD (b)、および逆推計によって得られた排出量 (c) である。すなわち、図(3)-4(a) (衛星観測値) と図(3)-4(b) (モデル値) は対になっている。まず、図(3)-4(a)の衛星観測結果を見てみると、中国全土でNO<sub>2</sub> VCDが減少している。河南省、湖北省、安徽省では減少率が10%/yearを超えている。一方で、中国東北部、四川省等の一部でNO<sub>2</sub> VCDの増加が見られる。これは、従来の大都市地域で減少が進む一方、その周辺地域で増加していることを意味しており、環境政策等および経済発展で中国におけるNO<sub>2</sub> VCDの分布が大きく変化していることが示唆している。モデル結果(図(3)-4(b))は、衛星観測によって得られた傾向をよく再現しており、逆推計によって得られた排出量分布とその年推移が現実をよく再現しているということが出来る。

排出量の増減率（図(3)-4(c)）でもその減少率は明らかである。ただし、各省ごとに推計しているため、NO<sub>2</sub> VCDで見られた空間分布の変化はみられない。NO<sub>2</sub> VCDの増加が見られた中国東北部や四川省等では、増加と減少が相殺されており、省として見ると増減率は小さい（1%以下）。一方、減少率の大きい省ではその値は5%/yearを超えている（たとえば、河南省）。これは、2011年から2016年にかけて20%を超えて排出量が減少したことを意味している。



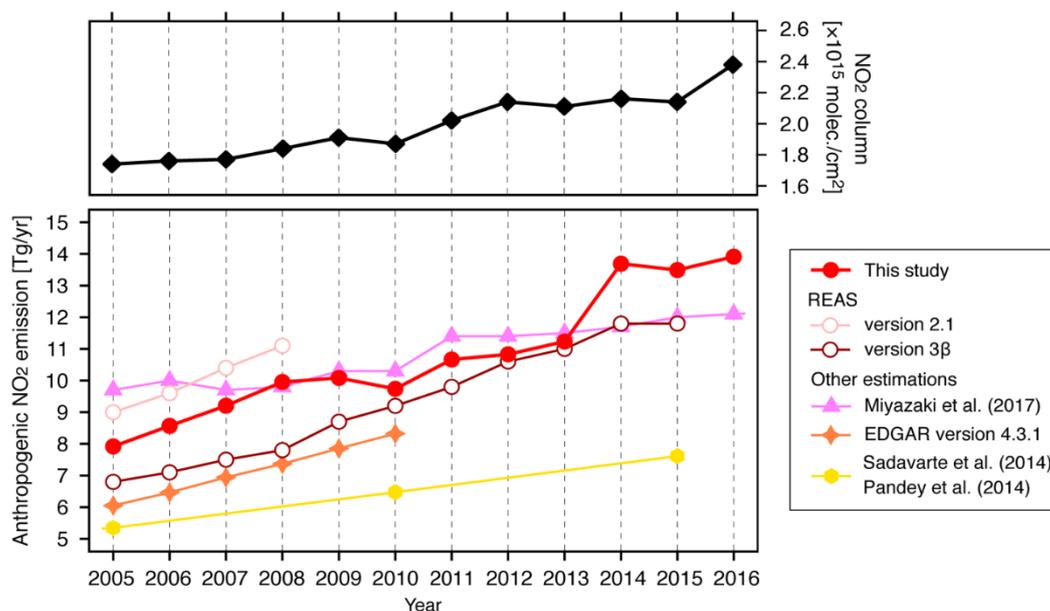
図(3)-4 中国における2011年から2016年にかけての増減率の空間分布。(a) OMI衛星によって観測されたNO<sub>2</sub> VCD、(b) 逆推計で得られた排出量を入力値に化学輸送モデルで再現されたNO<sub>2</sub> VCD、(c) 逆推計で得られたNO<sub>x</sub> 排出量（ただし、省別に推計）。

図(3)-5に2005年から2016年にかけてNO<sub>2</sub> VCDまたは排出量が最大となった年の空間分布を示す。それぞれ、衛星で観測されたNO<sub>2</sub> VCD(a)、逆推計によって得られた排出量を境界条件とした化学輸送モデルによって再現されたNO<sub>2</sub> VCD(b)、および逆推計によって得られた排出量(c)である。まず、図(3)-5で見た増減率の空間分布と同様に、モデル結果（図(3)-5(b)）は、衛星観測によって得られた結果をよく再現している。これは、逆推計で得られた排出量が現実を良く表せていることを示している。これを前提に、省別排出量のピーク年（図(3)-5(c)）を見ていく。ほとんどの省で排出量のピークを2011年に迎えていることがわかる。北京や広東省では2007年に、江蘇省では2010年にピークを迎えており、この地域では他の地域に先駆けて排出量の減少が進んできたことを示唆している。北京や上海の西に位置する山西省や安徽省、天津では2012年とピークは若干遅い。一方、中国東北部ではピーク年は2014-2016年となり更に遅い。このことは、中国における排出量の減少傾向、すなわち排出対策の進捗の度合いが地域によって大きく異なることを表している。



図(3)-5 2015年から2016年の間で最大となった年の分布。(a)OMI衛星によって観測されたNO<sub>2</sub> VCD、(b)逆推計で得られた排出量を入力値に化学輸送モデルで再現されたNO<sub>2</sub> VCD、(c)逆推計で得られたNO<sub>x</sub> 排出量(ただし、省別に推計)。

次に、インドのNO<sub>x</sub>排出量の推移について見ていく。図(3)-6にインドにおける、OMI衛星で観測されたNO<sub>2</sub> VCDと逆推計で得られたNO<sub>x</sub>排出量の推移を示す。逆推計結果を検証するため、サブテーマ2で更新されたREAS排出インベントリ、Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) version 4.3.1 (<http://edgar.jrc.ec.europa.eu/index.php>)、Sadavarte et al. (2014)<sup>14)</sup>、Pandey et al. (2014)<sup>15)</sup>、Miyazaki et al. (2017)<sup>11)</sup>による推計結果を示す。中国とは異なり、NO<sub>2</sub> VCDおよびNO<sub>x</sub>排出量は増加し続けているが、排出量の推定の間大きなばらつきがあることがわかる。本研究で得られたNO<sub>x</sub>排出量の推移は、Miyazaki et al. (2017)<sup>11)</sup>による逆推計結果と良く一致しているが、2014-2016年の排出量は他の推計値よりも多い。なお、どの推計結果もインドの排出量は増加傾向であることで一致している。



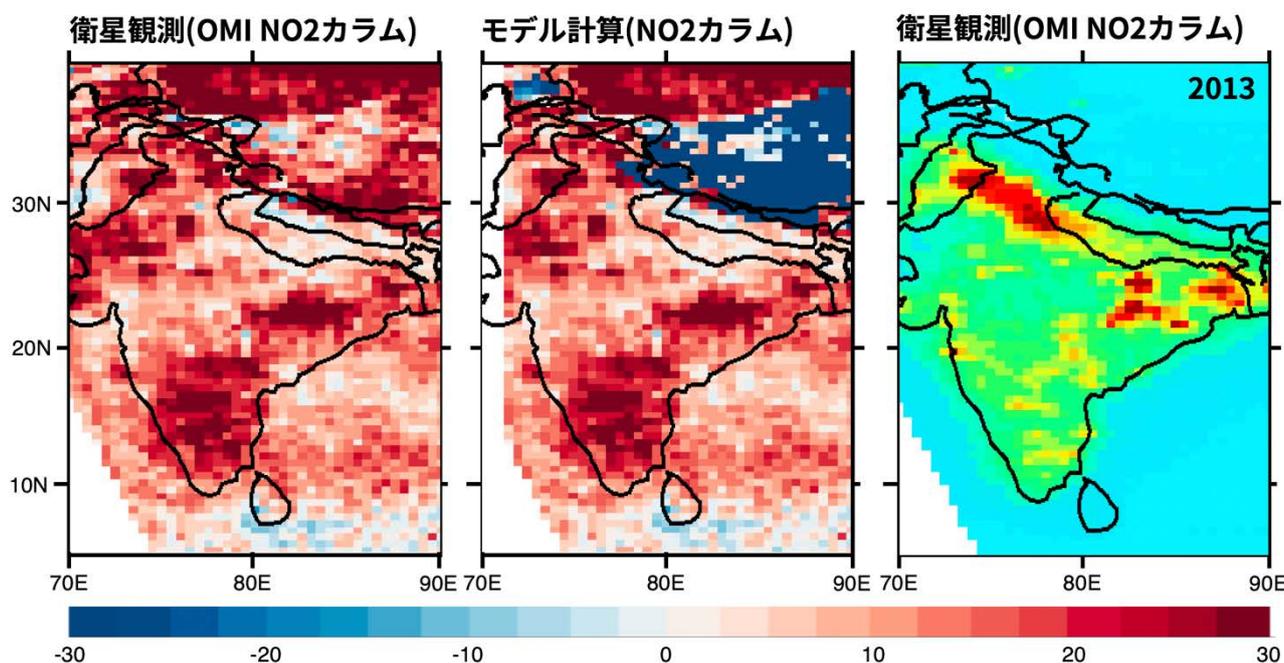
図(3)-6 OMI観測で観測されたNO<sub>2</sub> VCDの経年変化(上段)、本研究および他の排出インベントリで推計されたインド人為起源NO<sub>x</sub> 排出量の経年変化(下段)。

表(3)-2に2005-2010年、2005-2015年、及び2005-2016年の排出量の増減率を示す。本研究では、2005-2015年にかけてのインドの排出量の増減率を+0.5 Tg/year (+4.9 %/year)と推計した。他の排出量推計は+0.2-0.6 Tg/year (+2.4-6.0 %/year)と評価しており、本推計結果はこの範囲に含まれている。4種類の排出量推計による平均は4.2%/yearの増加であり、2005-2015年の11年間で排出量は約50%増加したことになるが、中国の2005-2011年にかけての排出量増加率（4種類の推計の平均値＝5.5 %/year）に比べると若干小さい。また、2005-2010年および2005-2015年の増加率に大きな違いはなく、一貫して排出量の増加が進んでいることが伺える。排出量変化の空間分布（図(3)-7）を見てみると、NO<sub>2</sub> VCDの値が大きい都市・工業地域に限らず、インド全土においてNO<sub>2</sub> VCDすなわちNO<sub>x</sub>排出量が増加していることがわかる。

表(3)-2 2010年前後のインドにおけるNO<sub>x</sub>排出量の推移。

Period	2005-2010	2005-2015	2005-2016
This study	+0.4 (+4.4)	+0.5 (+4.9)	+0.5 (+4.9)
REAS version 3β	+0.5 (+6.2)	+0.6 (+6.0)	-
Miyazaki et al. (2017)	+0.1 (+1.1)	+0.3 (+2.4)	+0.2 (+2.3)
EDGAR version 4.3.1	+0.5 (+6.4)	-	-
Sadvarte et al. (2014) and Pandey et al. (2014)	+0.2 (+3.8)	+0.2 (+3.5)	-

単位はTg/year (%/year)



図(3)-7 インドにおける2008年から2013年にかけての増減率の空間分布。(左)OMI衛星によって観測されたNO<sub>2</sub> VCD、(中)逆推計で得られた排出量を入力値に化学輸送モデルで再現されたNO<sub>2</sub> VCD、(右)2013年におけるOMI衛星によって観測されたNO<sub>2</sub> VCD。

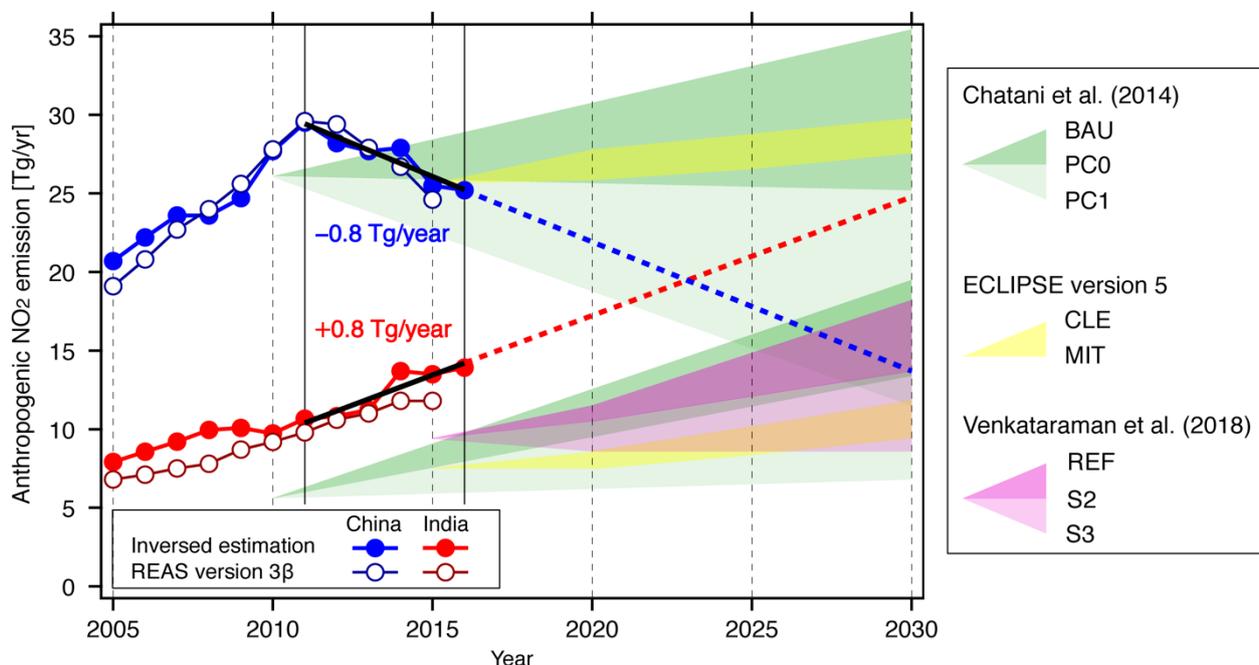
逆推計で得られた中国およびインドの排出量推計結果をもとに、今後のNO<sub>x</sub>排出量がどのように推移していくか考察を行った。図(3)-8に本研究で得られたNO<sub>x</sub>排出量（●と実線）、updateされたREASv 2.1による推計（○と実線）および、他研究から得られた排出量の将来推定値を示す。Chatani et al. (2014)<sup>16</sup>は、3つの将来シナリオ（BAU, PC0およびPC1）から2010年の排出量を基準に2030年の排出量

を推計している。EUのプロジェクトであるEvaluating the Climate and Air Quality Impacts of Short-Lived Pollutants (ECLIPSE)では、現状 (CLE) および短寿命大気汚染物質が規制された場合 (MIT) の2つのシナリオから2015年から2050年の排出量を予測している。Venkataraman et al. (2018)<sup>17)</sup>は現状(REF)、望ましい (S2)、非常に望ましい(S3)の3つのシナリオからインドの2015年から2050年までの排出量を予測している。また、われわれは2011-2016年の逆推計結果から中国の排出量は今後  $-0.8 \text{ Tg/year}$  の割合で減少、インドの排出量は  $+0.8 \text{ Tg/year}$  の割合で増加が続くと予測した (図中破線)。

中国については、Chatani et al. (2014)<sup>16)</sup>のPC1シナリオのみ減少と予測し、他のシナリオでは増加と予測した。Chatani et al. (2014)<sup>16)</sup>のPC1では、減少率は  $-0.7 \text{ Tg/year}$  ( $-3.9 \text{ \%/year}$ )と見積もられており、われわれの予測とよく一致する。この減少傾向が持続すると中国のNO<sub>x</sub>排出量は2020年代初頭に2005年レベルにまで減少する。

一方、インドでは、どの将来シナリオでも排出量は増加と予測している。予測率はChatani et al. (2014)<sup>16)</sup>のBAU (現状) シナリオで  $+0.70 \text{ Tg/year}$  ( $+5.5 \text{ \%/year}$ )、ECLIPSEのCLE (現状) シナリオで  $+0.3 \text{ Tg/year}$  ( $+2.9 \text{ \%/year}$ )、Venkataraman et al. (2018)<sup>17)</sup>のREF (現状) シナリオで  $+0.6 \text{ Tg/year}$  ( $+4.2 \text{ \%/year}$ )となり、我々の推計とよく一致する。ただし、現状の排出量推計に開きがあるので、将来のNO<sub>x</sub>排出量は我々の推計量のほうが5 Tg程度多い。

今後、中国の抑制策によって排出量削減が継続し続け、インドの排出量が現状のまま増加を続けると2025-2030年の間に両者の排出量は逆転する。硫酸酸化物 (SO<sub>2</sub>) については、中国とインドの排出量が逆転し、インドが世界最大の排出国になったとの報告があり (Li et al., 2017)<sup>9)</sup>、NO<sub>x</sub>排出量においてもそれが起こらないとは断言できない。そのとき、中国はピークの3分の2、インドは現状の2倍程度の排出量となっており、大気汚染排出量の地政学的な分布は激変している。今後とも衛星観測データのみならず、逆推計を通じてNO<sub>x</sub>排出量の推移について注意を払うことが、東アジアの大気環境を考える上で求められている。

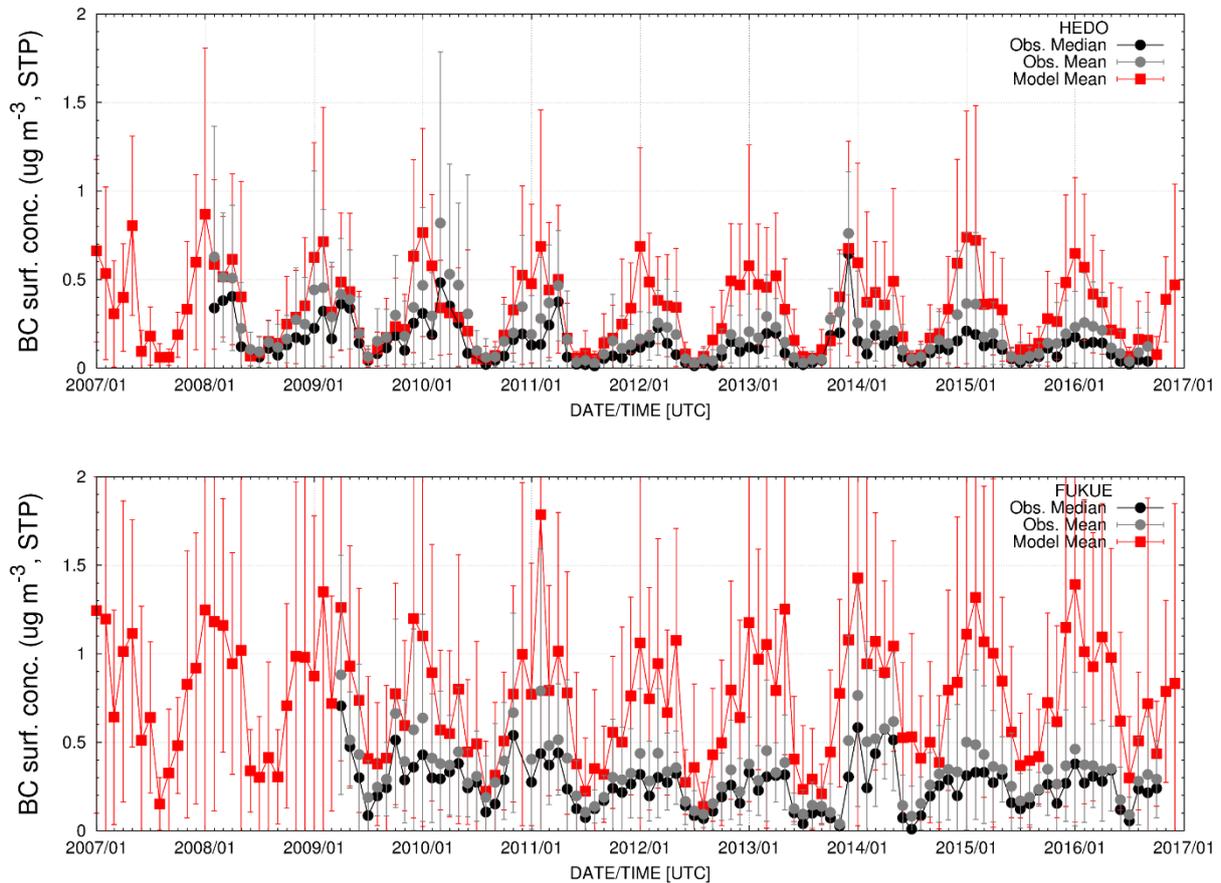


図(3)-8 中国とインドの2005～2016年におけるNO<sub>x</sub>排出量の経年変化。サブテーマ2による排出インベントリ(REAS Version 3β)の結果と本サブテーマによる逆推計結果(Inversed estimation)。2010年以降のカラーレンジは将来予測結果。

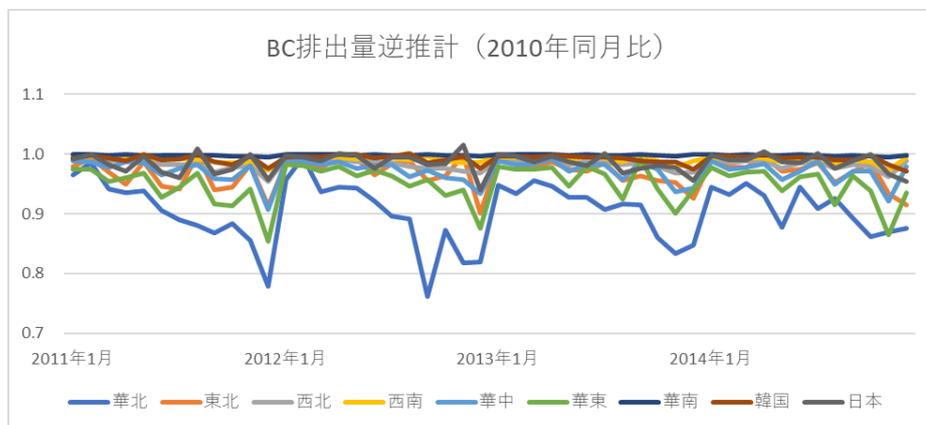
## (2) ブラックカーボン (BC) 排出量逆推計システム

2007年から2016年における全球エアロゾル輸送モデルMASINGAR mk-2と観測データとの差は図(3)-9のとおりである。観測データを見ると2011年以降BCの大気中濃度が緩やかながら減少傾向にあることが伺える。一方、モデルは2010年の排出量を繰り返し用いているためにそのような傾向は見られない。このため、この差を逆推計によって排出量推計に反映できることが期待できる。

次に、日本、中国（地域毎）、韓国について月ごとのBC排出量逆推計の結果を図(3)-10に示す。2011年の各月の値は、2010年の各月の値に対する比率を示しており、1.0は2010年と同一であることを示す。2010年から2014年のBC排出量の変化は、日本（-1.3%）と韓国（-0.8%）では微減なのに対して、



図(3)-9 2007年から2016年のBC月平均濃度の推移。黒が観測値のメディアン、灰色が観測値の平均値、赤が全球エアロゾル輸送モデルの結果。上段が辺戸岬（沖縄県）、下段が福江島（長崎県）。



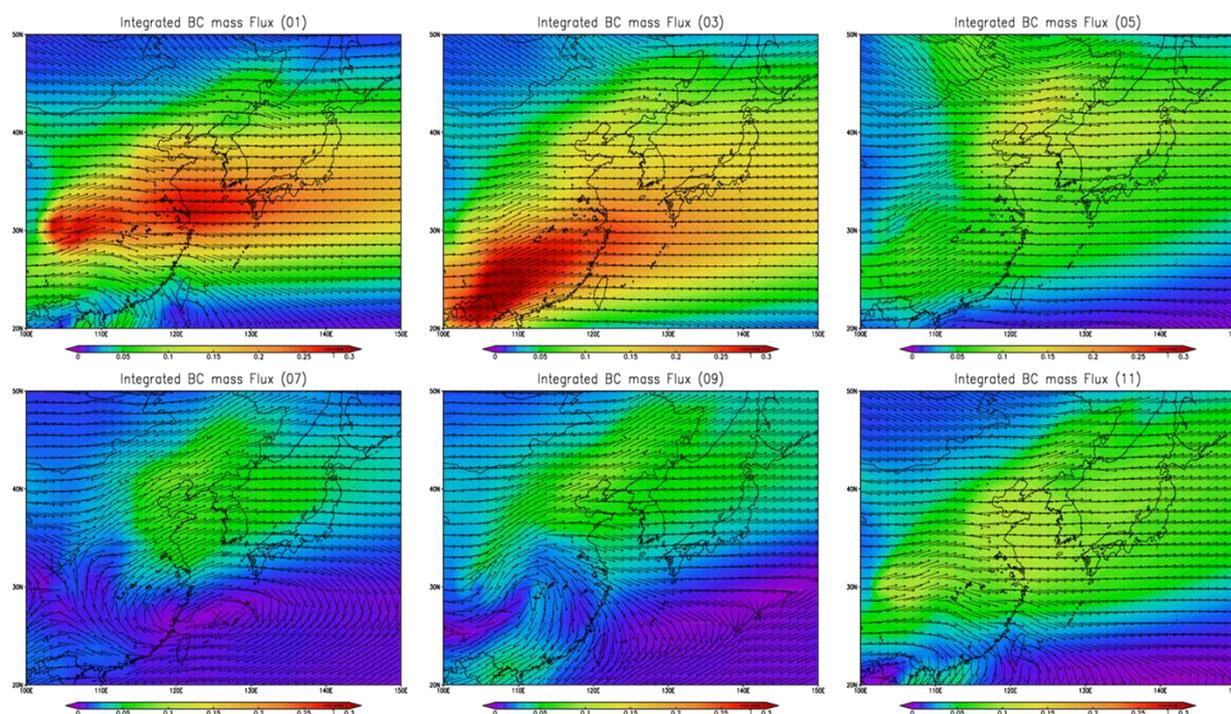
図(3)-10 日本、中国（33省合計）、韓国におけるBC排出量逆推計結果。2010年同月の排出量を1.0としたときの相対値で示す。

中国では-4.1%と減少傾向が大きい。BC排出量の減少率が比較的大きかった領域は、中国の華北(-8.9%)と華南(-5.1%)であった(表(3)-3)。

表(3)-3 日本、中国(地域別)、韓国におけるBC排出量逆推計結果(2010年から2014年の変化率)。

領域	華北	東北	西北	西南	華中	華南	華東	韓国	日本
2014/2010	91.1%	96.8%	98.3%	99.0%	97.1%	94.9%	99.8%	99.2%	98.7%

事前に実施していた10年分の平均的なBC輸送経路解析(図(3)-11)において、今回の解析の中心となった地上観測点(辺戸、五島、富山、八方、Lulin(台湾))に輸送されてきたBCの起源が主に中国沿岸部及び東北部であることから、これらの地域のBC排出量を主に拘束することができたと考えられる。今回、衛星観測データを補助的に用いることとしたが、観測精度が地上観測と比較して十分でなかったことから解析に大きなインパクトを与えることはできなかった。可能な限り多くの衛星観測データを逆推計システムに導入することが今後の課題である。このためには、衛星観測データの品質向上が鍵となるが輸送モデルの精度向上も先験情報の高精度化等のために有効と考えられる。



図(3)-11 全球エアロゾル輸送モデルにおける10年平均(2007~2016年)の鉛直積算質量フラックスを用いた輸送経路解析。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

衛星観測データと化学輸送モデルを用いた逆推計システムを構築し、2015年の間近までのNO<sub>x</sub>排出量を逆推計によって整備した。これは、排出インベントリのまだ整備されていない近年の大気質変化の理解やシミュレーションを行うためには重要なインプットである。また、得られた逆推計結果を解析することで、近年の排出量の傾向を推定することもできる。複数の化学輸送モデルを用いた逆推計の実行と結果の比較は、化学輸送モデルの不確実性が逆推計に与える影響と、求めることの難しかった誤差の客観的な評価に繋がる。逆推計で得られた情報を、ボトムアップ排出量推計システムにフィードバックすることで、統計データからは得られない俯瞰的な情報(空間分布や時間変化など)を提供し、排出インベントリの改良を行うことができる。また、近年の排出量推計結果から、“排出量大国”である中国

およびインドの近年の傾向を推定し、将来の推移の予測を行った。また、BCの逆推計に関しても地上観測・衛星観測を組み合わせた逆推計システムを構築して中国・韓国・日本における排出量の逆推計が可能となることを示すことができた。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

本研究で解析したNO<sub>x</sub>エミッションインベントリの改良は、国内においては環境省が実施している微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) 対策事業におけるシミュレーションモデルの精度向上や気象庁が実施している大気汚染気象業務の改善に貢献できる。また、逆推計結果から得られた中国およびインドの近年の排出量の推移や将来の排出量予測は、今後の環境政策策定の基礎資料と成り得る。国外においても日中韓三ヶ国大臣会合 (TEMM) プロジェクトにおける大気汚染に関する三ヶ国政策対話等への基礎資料として貢献できる。

## 6. 国際共同研究等の状況

【エアロゾル予測のための国際協調 (International Cooperative for Aerosol Prediction, ICAP)】  
 カウンターパート: Peter R. Colarco・GSFC/NASA・米国、Angela Benedetti・欧州中期気象予報センター・英国、Jeffrey R. Reid・米国海軍研究所・米国

連携状況: 気象研究所はICAPの主要参加機関であり、NASA・米国海軍研究所・欧州中期気象予報センターと協力してエアロゾルモデル予測結果の相互比較・年次会合開催・論文共同執筆等を進めている。  
 国際的な位置づけ: ICAPは参加者のボランタリーな互助組織であるが、主要メンバーが所属する組織は全球エアロゾルモデルの自主開発能力を持つ現業予報機関のみで構成されており、世界最高水準のエアロゾル (PM<sub>2.5</sub>等) 予報技術の相互比較の場となっている。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文 (査読あり) >

- 1) K. YUMIMOTO and T. TAKEMURA: J. Geophys. Res. Atmos., 120, 1582-1607 (2015) Long-term Inverse Modeling of Asian Dust: Inter-annual Variations of Its Emission, Transport, Deposition and Radiative Forcing
- 2) K. YUMIMOTO, H. MURAKAMI, T.Y. TANAKA, T.T. SEKIYAMA, A. OGI, T. MAKI: Particuology, (2015) Forecasting of Asian dust storm that occurred on May 10-13, 2011, using an ensemble-based data assimilation system
- 3) T.T. SEKIYAMA, K. YUMIMOTO, T.Y. TANAKA, T. NAGAO, M. KIKUCHI, and H. MURAKAMI: SOLA, 12, 86-90 (2016) Data Assimilation of Himawari-8 Aerosol Observations: Asian Dust Forecast in June 2015
- 4) K. YUMIMOTO, T.M. NAGAO, M. KIKUCHI, T.T. SEKIYAMA, H. MURAKAMI, T.Y. TANAKA, A. OGI, H. IRIE, P. KHATRI, H. OKAMURA, K. ARAI, I. MORINO, O. UCHINO, T. MAKI: Geophysical Research Letter, 43, 5886-5894 (2016) Aerosol data assimilation using data from Himawari-8, a next-generation geostationary meteorological satellite
- 5) K. YUMIMOTO, I. UNO, X. PAN, T. NISHIZAWA, S.-W. KIM, N. SUGIMOTO: SOLA, 13, 31-35, (2017) Inverse Modeling of Asian Dust Emissions with POPC Observations: A TEMM Dust

## Sand Storm 2014 Case Study

- 6) K. YUMIMOTO, Y. MORINO, T. OHARA, Y. OURA, M. EBIHARA, H. TSURUTA, T. NAKAJIMA: Journal of Environmental Radioactivity, 164, 1-12, (2016) Inverse modeling of the <sup>137</sup>Cs source term of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident constrained by a deposition map monitored by aircraft
- 7) K. KAIHO, N. OSHIMA, K. ADACHI, Y. ADACHI, T. MIZUKAMI, M. FUJIBAYASHI, R. SAITO Scientific Reports, 6, 28427, (2016) Global climate change driven by soot at the K-Pg boundary as the cause of the mass extinction
- 8) M. KAJINO, H. UEDA, Z. HAN, R. KUDO, Y. INOMATA, H. KAKU, *Atmos. Environ.* 171, 98-110, 10.1016/j.atmosenv.2017.10.018, (2017) Synergy between air pollution and urban meteorological changes through aerosol-radiation-diffusion feedback - A case study of Beijing in January
- 9) NAOE, H., M. DEUSHI, K. YOSHIDA, and K. SHIBATA: *J. Climate*, 30, 6977-6997(2017) Future changes in the ozone quasi-biennial oscillation with increasing GHGs and ozone recovery in CCM1 simulations
- 10) YUMIMOTO, K., TANAKA, T. Y., OSHIMA, N., and MAKI, T.: *Geosci. Model Dev.*, 10, 3225-3253, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-3225-2017> (2017) JRAero: the Japanese Reanalysis for Aerosol v1.0
- 11) K. KAIHO, N. OSHIMA: *Scientific Reports* 7, 14855, doi:10.1038/s41598-017-14199-x (2017) Site of asteroid impact changed the history of life on Earth: the low probability of mass extinction
- 12) K. YUMIMOTO: *Erozoru Kenkyu*, 32(2), 101-107, doi:10.11203/jar.32.101(2017) Development of an Aerosol Assimilation/Forecasting System with Himawari-8 Aerosol Product
- 13) K. YUMIMOTO, T.Y. TANAKA, M. YOSHIDA, M. KIKUCHI, T.M. NAGAO, H. MURAKAMI, T. MAKI: *Journal of the Meteorological Society of Japan*. 96B, 133-149 (2018) Assimilation and forecasting experiment for heavy Siberian wildfire smoke in May 2016 with himawari-8 aerosol optical thickness
- 14) K. YUMIMOTO, M. KAJINO, T.Y. TANAKA, I. UNO: *Scientific Reports*, 9(1), 1209 (2019) Dust Vortex in the Taklimakan Desert by Himawari-8 High Frequency and Resolution Observation
- 15) M. KAJINO, M. DEUSHI, T. T. SEKIYAMA, N. OSHIMA, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, J. CHING, A. HASHIMOTO, T. YAMAMOTO, M. IKEGAMI, A. KAMADA, M. MIYASHITA, Y. INOMATA, S. SHIMA, A. TAKAMI, A. SHIMIZU, S. HATAKEYAMA, Y. SADANAGA, H. IRIE, K. ADACHI, Y. ZAIZEN, Y. IGARASHI, H. UEDA, T. MAKI, M. MIKAMI: *Journal of Meteorological Society of Japan*, 97(2), doi:10.2151/jmsj.2019-020, (2019) NHM-Chem, the Japan Meteorological Agency's regional meteorology - chemistry model: model evaluations toward the consistent predictions of the chemical, physical, and optical properties of aerosols

## &lt;その他誌上発表(査読なし)&gt;

- 1) 弓本桂也: *大気環境学会誌*, 51, 97-101 (2016)  
「物質輸送とデータ同化～化学輸送モデルと観測の融合～」

## (2) 口頭発表 (学会等)

- 1) 眞木貴史、関山剛、弓本桂也他：統合的陸域研究連絡会「陸域起源の微量物質と気候変動」(2014)  
「全球エアロゾルモデル (MASINGAR) を用いた気候研究等への活用について」
- 2) K. YUMIMOTO: International Conference on Atmospheric Dust (DUST2014), Castellaneta Marina, Italy (2014)  
“Long-term inverse modeling of Asian dust with satellite observation and aerosol 4D-VAR data assimilation system”
- 3) 弓本桂也：第55回大気環境学会年会 (2014)  
「黄砂発生量の長期間逆推計」
- 4) K. YUMIMOTO: Joint Japan-Australia Workshop on Applications of Himawari 8/9 Satellite Data, Japan Meteorological Agency, Tokyo, Japan (2014)  
“Assimilation of aerosol information from Himawari-8 and other missions”
- 5) T. MAKI: Module of Technical Seminar on Sand Dust Monitoring, Teheran, Iran (2015)  
“Simulation and prediction of the sand storm and dust”
- 6) T.T. SEKIYAMA: 7th Meeting of the International Cooperative for Aerosol Prediction (ICAP), Barcelona Supercomputing Center, Barcelona, Spain (2015)  
“Aerosol Data Assimilation Current Situation and Projects of JMA”
- 7) 関山剛：鳥取大学乾燥地研究センター平成27年度共同研究発表会 (2015)  
「エアロゾル数値モデルと観測データの比較による黄砂発生プロセス理解の深化」
- 8) K. YUMIMOTO: 2015 Asian Aerosol Conference (AAC2015), Kanazawa, Japan (2015)  
“Long-term Inverse Modeling of Asian Dust”
- 9) K. YUMIMOTO: The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), Kobe, Japan (2015)  
“Application of Inversion Technique to Quick Update of Anthropogenic NOx Emission over East Asia with Satellite Observation”
- 10) K. YUMIMOTO: AGU Fall Meeting, San Francisco, CA, USA (2015)  
“Development of a Forecasting and Data Assimilation System for Asian Dust in the Japan Meteorological Agency (JMA)”
- 11) K. YUMIMOTO: AGU Fall Meeting, San Francisco, CA, USA (2015)  
“Aerosol Data Assimilation with the Next Generation Meteorological Satellite (Himawari-8)”
- 12) 弓本桂也：第56回大気環境学会年会 (2015)  
「2015年1月の九州北部域の越境PM汚染の集中観測期間の排出量逆推計」
- 13) 弓本桂也：第56回大気環境学会年会 (2015)  
「物質輸送とデータ同化～化学輸送モデルと観測の融合～、大気環境学会進歩賞記念講演」
- 14) 弓本桂也：日本気象学会2015年度秋季大会 (2015)  
「ひまわり8号データを用いたエアロゾルデータ同化」
- 15) 弓本桂也：日本気象学会2015年度春季大会 (2015)  
「ひまわり8号データを用いたエアロゾル統合プロダクトの作製にむけて」
- 16) T. MAKI, K. YUMIMOTO, T. T. SEKIYAMA, A. OGI, T. KITAJIMA, N. OHKAWARA, T. Y. TANAKA: The Joint Workshop between WG1 and WG2 for Joint Research on Dust and Sandstorms (2016)  
“Overview of dust emission studies by MRI/JMA”
- 17) H. NAOE, M. DEUSHI, T.Y. TANAKA, K. YOSHIDA, T. MAKI, N. OSHIMA: AMS Annual Meeting, USA (2015)

- “Effect of Stratospheric Ozone Depletion on the DMS and its Sulfur-Related Aerosols in the Southern Hemisphere”
- 18) T. Y. TANAKA, A. OGI, N. OHKAWARA, T. MAKI, T. T. SEKIYAMA, K. YUMIMOTO: 7th ICAP meeting, BSC. (2015)  
“Updates of the aerosol prediction in Japan Meteorological Agency”
- 19) T. T. SEKIYAMA, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA: 7th ICAP meeting, BSC. (2015)  
“Aerosol Data Assimilation Current Situation and Projects of JMA”
- 20) T. MAKI: International Symposium on Preparedness for Dust Hazard, Tottori (2015)  
“Overview and EWS of Dust in Japan”
- 21) T. MAKI, K. YUMIMOTO, T. T. SEKIYAMA, A. OGI, Y. KITAJIMA, N. OHKAWARA, T. Y. TANAKA: The 8th meeting of Working Group I for Joint Research on DSS, Fukuoka, Japan (2015)  
“Modeling study in JMA/MRI”
- 22) T. T. SEKIYAMA: 96th American Meteorological Society (AMS) annual meeting, 2016, New Orleans Convention Center, New Orleans, USA.  
“Aerosol-Forecast-Oriented Data Assimilation of Himawari-8 Aerosol Products”
- 23) T. Y. TANAKA, A. OGI, N. OHKAWARA, K. YUMIMOTO, T. T. SEKIYAMA, T. MAKI: DUST 2016, Italy (2016)  
“Development and future plans of the Aeolian dust prediction of the Japan Meteorological Agency”
- 24) T. Y. TANAKA, A. OGI, N. OHKAWARA, K. YUMIMOTO, M. DEUSHI, T. T. SEKIYAMA, T. MAKI: 8th ICAP meeting, College Park, USA (2016)  
“Update of the aerosol prediction of the Japan Meteorological Agency”
- 25) K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, T. MAKI, A. OGI 2016: 8th ICAP meeting, College Park, USA (2016)  
“JMA Assimilation Update”
- 26) T. MAKI, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, A. OGI, T. KITAJIMA, T. AOYAGI, M. DEUSHI: 2016 International Asian dust and Aerosol Workshop, Jeju, Korea (2016)  
“Current Asian dust forecasting/monitoring activities of JMA/MRI”
- 27) T. MAKI, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, A. OGI, T. KITAJIMA, T. AOYAGI, M. DEUSHI: The 9th meeting of Working Group I for Joint Research on DSS, Jeju, Korea (2016)  
“Modeling study in JMA/MRI”
- 28) 弓本桂也ほか：日本気象学会秋季大会、京都（2015）  
「ひまわり8号データを用いたエアロゾルデータ同化」
- 29) 小木昭典ほか：日本気象学会秋季大会、京都（2015）  
「気象庁黄砂予測モデルの高精度化」
- 30) 田中泰宙ほか：日本気象学会秋季大会、京都（2015）  
「気象庁黄砂予測のための次期全球エアロゾル予測モデルの開発」
- 31) H. NAOE, K. YOSHIDA: SPARC QBOワークショップ, 英国・オックスフォード（2016）  
“The influence of quasi-biennial oscillation on the extratropical circulation in the NH-winter stratosphere in QBOi simulation”
- 32) T. T. SEKIYAMA: Ibaraki University, Mito, Japan (2017)  
“Model analysis of atmospheric Cs-137 dispersion mass flux, Ibaraki University-IRSN international workshop on atmospheric radiocesium and bio-aerosol emission”
- 33) 関山剛ほか：第23回大気化学討論会（2017）  
「質量フラックスで考察した大気微量成分の移流拡散について」

- 34) 関山剛ほか：日本気象学会2017年度春季大会（2017）  
「AMeDASおよびNTTドコモ地上風観測値のデータ同化が移流拡散シミュレーションの再現性に与える影響」
- 35) H. NAOE, K. YOSHIDA: Joint SPARC Dynamics & Observations Workshop - QBOi, FISAPS & SATIO-TCS, Kyoto (2017)  
“The Influence of Quasi-Biennial Oscillation on the DJF Extratropical Stratosphere Circulation in AMIP and 1xCO<sub>2</sub> experiments”
- 36) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本地球惑星科学連合2017年大会(2017)  
「気象研究所地球システムモデルによるブラックカーボンの空間分布と放射効果」
- 37) 大島長、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、川合秀明、工藤玲、行本誠史、出牛真、小池真：日本気象学会2017年度春季大会(2017).  
「気象研究所地球システムモデルの開発とブラックカーボンの空間分布と放射効果の評価」
- 38) 大島長：グリーンランド南東ドームアイスコアに関する研究集会(2017).  
「気象研究所地球システムモデルによる北極ブラックカーボンのモデル研究」
- 39) N. OSHIMA, M. KOIKE: AMAP short-lived climate forcers (SLCF) expert group meeting, Helsinki, Finland (2018)  
“Modeling studies of black carbon using a MRI Earth System Model”
- 40) K. YUMIMOTO: 28th International Laser Radar Conference, Bucharest, Romania (2017)  
“Aerosol Data Assimilation with Lidar Observations”
- 41) 弓本桂也、田中泰宙、大島長、眞木貴史：気象学会2016年度秋季大会（2017）  
「大気化学再解析とその気候研究への利用：(2)エアロゾル」
- 42) K. YUMIMOTO: Introduction to Aerosol Modeling and Data Assimilation in Japan, International Workshop on Aerosol Modeling, Dirección Meteorológica de Chile, Santiago, Chile (2017)  
“Lidar observation Technique and Data Assimilation”
- 43) K. YUMIMOTO: Itinerary of Workshop on Aerosol Model and Data Assimilation, Servicio Meteorológico Nacional, Buenos Aires, Argentina (2017)  
“Aerosol modeling and Data Assimilation in Japan”
- 44) 弓本桂也：第21回日本気象学会中部支部公開気象講座（2018）  
「ひまわり8号で見るエアロゾルの分布と飛来予測」
- 45) T. MAKI, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, A. OGI, T. KITAJIMA, T. AOYAGI, M. DEUSHI: The 10th meeting of Working Group I for Joint Research on DSS, Lanzhou, China (2017)  
“Modeling study in JMA/MRI”
- 46) T. MAKI: Technical Seminar on Sand Dust Monitoring, Ahwaz, Iran (2017)  
“Simulation and prediction of the sand storm and dust”
- 47) 大島長、海保邦夫、足立光司、足立恭将、水上拓也、藤林恵、齊藤諒介：日本気象学会2018年度春季大会（2018）.  
「小惑星衝突により発生したすすによる気候変動 -恐竜などの大量絶滅の可能性-」
- 48) 大島長、庭野匡思、青木輝夫、保坂征宏、田中泰宙、神代剛、吉村裕正、行本誠史、東久美子、近藤豊、小池真：日本気象学会2018年度春季大会(2018)  
「気象研究所地球システムモデルによる北極域におけるブラックカーボンの放射影響評価」
- 49) N. OSHIMA, K. KAIHO: AOGS 15th Annual Meeting (AOGS2018), Honolulu, USA (2018)  
“Global climate change driven by soot ejection following the asteroid impact as the cause of the extinction of the dinosaurs”

- 50) K. YUMIMOTO: Asia Oceania Geosciences Society, 15 th Annual Meeting, Honolulu, USA (2018)  
 “Development of the aerosol reanalysis product (JRAero) and its use in aerosol researches in East Asia”
- 51) K. YUMIMOTO: 14th iCACGP Symposium/15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan (2018)  
 “Development of an aerosol reanalysis product - JRAero”
- 52) K. YUMIMOTO: The First Workshop for the Development of Korean Air Quality Forecasting System, Busan, Korea (2018)  
 “Development of an aerosol reanalysis product - JRAero”
- 53) T. MAKI, T. Y. Tanaka, N. OSHIMA, J. KUROKAWA, K. YUMIMOTO, K. KONDO, T. OHARA: 2018 American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, Washington D.C., USA (2018)  
 “Construction of Black Carbon emission inverse system for east Asia”
- 54) K. KONDO, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, K. YUMIMOTO, T. MAKI: ICAP 10th working group meeting, Exeter, UK (2018)  
 “Large ensemble based data assimilation with MASINGAR-mk2”
- 55) 近藤圭一, 三好建正: 日本気象学会2018年度秋季大会 (2018)  
 「誤差分布の非ガウス性を考慮したデータ同化手法」
- 56) T. MAKI, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, K. KONDO, A. OGI, A. SAITO, S. YABU K. YUMIMOTO: DSS sub-forum for TEMM20, Suzhou, P.R.C. (2018)  
 “Verification and evaluation of DSS by numerical model and observations”
- 57) T. MAKI, K. YUMIMOTO, T. Y. TANAKA, T. T. SEKIYAMA, A. OGI, T. KITAJIMA, T. AOYAGI, S. YABU: The 11th meeting of Working Group I for Joint Research on DSS, Tokyo, Japan (2018)  
 “Modeling study in JMA/MRI”
- 58) T. MAKI, T. T. SEKIYAMA, T. Y. TANAKA, A. OGI, D. UESAWA S. YABU, A. SAITO, K. YUMIMOTO: Meeting of the WMO SDS-WAS Regional Steering Group (RSG) For Asia, Tsukuba, Japan (2018)  
 “Current national activities and collaborative projects of JMA/MRI”

### (3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

### (4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

### (5) マスコミ等への公表・報道等

- 2017年9月4日 報道発表「黄砂やPM2.5などの大気浮遊粒子状物質（エアロゾル）に関する再解析データセットを開発」、朝日新聞、読売新聞、日刊工業新聞等
- 2017年11月9日 報道発表「小惑星衝突の「場所」が恐竜などの大量絶滅を招く」、掲載紙多数
- 2018年10月31日 報道発表「ひまわり8号データを用いた黄砂やPM2.5飛来予測の精度向上について」、2018年11月1日 西日本新聞28面「PM2.5予測精度向上」、2018年11月3日 NHKニュース「大気汚染物質の予測精度 大幅向上「ひまわり8号」活用で」、2018年11月1日 時事通信「大気浮遊物質の予測精度向上=ひまわり8号データ活用で-気象研など」

## (6) その他

## 受賞

弓本桂也, 大気環境学会進歩賞, 2015年9月

弓本桂也, 日本エアロゾル学会奨励賞, 2018年8月

弓本桂也, 科学技術分野の文部科学大臣表彰『若手技術者賞』, 2019年4月

## 8. 引用文献

- 1) BOERSMA, K.F., et al., 2011. An improved tropospheric NO<sub>2</sub> column retrieval algorithm for the Ozone Monitoring Instrument. *Atmos. Meas. Tech.* 4, 1905-1928.
- 2) BEY, I., et al., 2001. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. *J. Geophys. Res.* 106, 73-95.
- 3) MARTIN, R. V., et al., 2006. Evaluation of space-based constraints on global nitrogen oxide emissions with regional aircraft measurements over and downwind of eastern North America. *J. Geophys. Res.* 111, 1-15.
- 4) LAMSAL, L.N., et al., 2011. Application of satellite observations for timely updates to global anthropogenic NO<sub>x</sub> emission inventories. *Geophys. Res. Lett.* 38.
- 5) 弓本他、2015. 逆推計手法を利用したNO<sub>x</sub>排出量インベントリの速報アップデート、大気環境学会誌、50, 199-206.
- 6) GURNEY, K. R., R.M. LAW, A.S DENNING, P.J. RAYNER, D. BAKER, P. BOUSQUET, L. BRUHWILER, Y.H. CHEN, P. CIAIS, S. FAN, I.Y. FUNG, M. GLOOR, M. HEIMANN, K. HIGUCHI, J. JOHN, T. MAKI, S. MAKSYUTOV, K. MASARIE, P. PEYLIN, M. PRATHER, B.C. PAK, J. RANDERSON, J. SARMIENTO, S. TAGUCHI, T. TAKAHASHI, C.W. YUEN, 2002. Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415, 626-630.
- 7) TANAKA, T. Y. and CHIBA, M., 2005. Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, *MASINGAR. J. Meteor. Soc. Japan*, 83A, 255-278.
- 8) KUROKAWA, J., YUMIMOTO, K., ITAHASHI, S., NAGASHIMA, T., MAKI T., OHARA T.: Historical trends of air pollutant emissions in Asia: Development of Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3, 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference, Takamatsu, Japan, 2018
- 9) LI, M., LIU, H., GENG, G., HONG, C., LIU, F., SONG, Y., TONG, D., ZHENG, B., CUI, H., MAN, H., ZHANG, Q., HE, K. (2017) Anthropogenic emission inventories in China: a review, *National Science Review*, 4, 834-866
- 10) ZHENG, B., TONG, D., LI, M., LIU, F., HONG, C., GENG, G., LI, H., LI, X., PENG, L., QI, J., YAN, L., ZHANG, Y., ZHAO, H., ZHENG, Y., HE, K., ZHANG, Q.: Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 14095-14111, 2018
- 11) MIYAZAKI, K., ESKES, H. J., SUDO, K., BOERSMA, K. F., BOWMAN, K., and KANAYA, Y.: Decadal changes in global surface NO<sub>x</sub> emissions from multi-constituent satellite data assimilation, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807-837, doi:10.5194/acp-17-807-2017, 2017.
- 12) LIN, J-T., MCELROY, M. B.: Detection from space of a reduction in anthropogenic emissions of nitrogen oxides during the Chinese economic downturn, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 8171-8188, 2011.
- 13) ITAHASHI, S., UNO, I., IRIE, H., KUROKAWA, J., OHARA, T.: Regional modeling of tropospheric NO<sub>2</sub> vertical column density over East Asia during the period 2000-2010: comparison with multisatellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 3623-3635, 2014.
- 14) SADAVARTE, P., and VENKATARAMAN, C.: Trends in multi-pollutant emissions from a

- technology-linked inventory for India: I. Industry and transport sectors, *Atmos. Environ.*, 99, 353-364, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.09.081, 2014.
- 15) PANDEY, A., SADAVARTE, P., RAO, A. B. AND VENKATARAMAN, C.: Trends in multi-pollutant emissions from a technology-linked inventory for India: II. Residential, agricultural and informal industry sectors, *Atmos. Environ.*, 99, 341-352, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.09.080, 2014.
- 16) CHATANI, S., AMANN, M., GOEL, A., HAO, J., KLIMONT, Z., KUMAR, A., MISHRA, A., SHARMA, S., WANG, S. X., WANG, Y. X., ZHAN, B.: Photochemical roles of rapid economic growth and potential abatement strategies on tropospheric ozone over South and East Asia in 2030, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9259-9277, 2014.
- 17) VENKATARAMAN, C. et al.: Source influence on emission pathways and ambient PM<sub>2.5</sub> pollution over India, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 8017-8039, 2018.

### III. 英文Abstract

#### **Cause and Effect Analysis of Atmospheric Quality Change Events and Construction of an Evaluation System**

Principal Investigator: Toshimasa OHARA

Institution: National Institute for Environmental Studies (NIES)  
 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, JAPAN  
 Tel: +81-29-850-2491 / Fax: +81-29-850-2834  
 E-mail: tohara@nies.go.jp

Cooperated by: Japan Environmental Sanitation Center, Meteorological Research Institute

[Abstract]

**Key Words:** Regional air pollution, Air quality change, Asia, Chemical transport model, Emission inventory, Inverse system

In Asia, emissions from fossil fuel combustion, industrial processes, biomass burning, and other sources contribute to severe air pollution, such as ozone and PM<sub>2.5</sub>, on urban, regional, and global scales. From the viewpoint of climate change mitigation, controlling emissions of short-lived climate pollutants (SLCP) is an urgent task because it offers greater and more rapid short-term benefits than reducing CO<sub>2</sub> emissions. In Asian countries, emissions of ozone and aerosol precursors are still increasing in marked contrast with the situation in Europe and the USA; thus, Asia is a crucial region for SLCP reduction.

This research project (S-12-1) was established to develop a system that can analyze and verify changes in air quality caused by air pollution controls in Asia and to identify effective options for SLCP emission controls that can mitigate air pollution as well as climate change in Asia. The project has proceeded in three stages described here. First, typical changes in air quality caused by air pollution controls and socioeconomic events, considered as social experiments in SLCP mitigation, were analyzed by using regional and global chemical transport modeling, inverse modeling based on satellite and ground-based observational data, and regional emission inventories. Second, these analytical methods were integrated into an analysis/verification system for estimating emission reductions and air quality improvements due to SLCP mitigation. Finally, the system was used to assess previous air pollution measures that have been implemented in China and Japan.

The Regional Emission inventory in ASia (REAS) was used to estimate long-term variations in anthropogenic emissions of air pollutants related to SLCP species in Asia for the period 1950–2015. Although anthropogenic emissions dramatically increased in Asia due to economic growth and urbanization, in recent years the total emissions of SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> in Asia began to decline after China, the world's biggest emitter, strengthened its air pollution measures. This change may in turn may have affected air quality in Japan and Korea, which are downwind of China. On the other hand, emissions from South and Southeast Asia were found to be continuing to increase due to rapid economic growth. Additionally, the REAS contributed to the development of SLCP mitigation scenarios in the S-12-2 project by providing updated and

improved emissions data in Asia and by sharing information related to estimating emissions with the Asia-Pacific Integrated Model.

In addition, the inversed system was developed to estimate NO<sub>x</sub> emissions using observed data and chemical transport model. An analysis of NO<sub>x</sub> emissions from 2008 to 2016 for China and India showed that NO<sub>x</sub> emissions peaked around 2011 in China and then tended to decrease, whereas NO<sub>x</sub> emissions increased almost monotonically in India. If these trends continue in both countries, India will become the world's largest NO<sub>x</sub> emitter in the mid-2020s.

A new method for developing SLCP emission inventories was devised that combines the conventional method based on the REAS inventory with the inversion method based on satellite observations. This method may enable emission inventories to be updated in near-real time at regional scales, including developing countries that lack detailed social and economic statistical data. In addition, by applying this method to recent SLCP emissions in China, analyses of the differences between the conventional and inverse methods led to improvements in the accuracy of the REAS.

Finally, the effects of previous emission control measures in China and Japan were quantified with the analysis/verification system developed in this project. It was found that these measures have led to huge reductions in emissions and improvements in air quality (ozone and PM<sub>2.5</sub>). Because it clearly demonstrates the effects of policy choices to society, this approach is important for the promotion of SLCP mitigation policies through evidence-based policy making.