

地球温暖化がアジア・太平洋地域における大気質および海洋沈着に及ぼす影響の長期観測

環境省 国立研究開発法人国立環境研究所

地球システム領域	地球大気化学研究室	谷本 浩志
地球システム領域	大気・海洋モニタリング推進室	中岡 慎一郎
地球システム領域	地球大気化学研究室	奈良 英樹
地球システム領域	動態化学研究室	遠嶋 康徳
地球システム領域	地球大気化学研究室	猪俣 敏

平成30-令和4年度合計予算額	82,627千円
(うち、令和4年度当初予算額	17,094千円)

【要旨】気候変動に関する政府間パネル（IPCC）等におけるこれまでのモデリング研究から、地球温暖化による気温の上昇や水蒸気量の増加が示唆されている。これらはさらに、海洋上でのOHラジカルの増加、雷や土壌からのNO_x生成の増加、森林からのVOC放出の増加といった様々なフィードバックを地球表層物質循環に引き起こし、大気質に大きな影響を及ぼす可能性が指摘されている。そこで本研究では、日本と北米、東南アジア、オセアニア間を運航する定期貨物船を用いて、アジア・太平洋地域の広範な領域において大気質のモニタリングを実施する。オゾンやエアロゾルは大気汚染として人間の健康に影響を及ぼす他、酸性沈着を介して陸上および海洋生態系にも影響する。これらの長期観測を通じて健康被害の防止や生態系の保全に向けた影響把握に資することを目的とする。具体的には、人間の健康および生態系に影響を及ぼす2種類の主要な大気汚染物質である対流圏オゾン（オキシダント）とエアロゾル（PM_{2.5}）の長期観測を行う。これらに加え、外洋の海洋表層において、大気からの粒子の沈着によって影響を受ける栄養塩（特に硝酸塩）と一次生産の指標となるクロロフィルを観測する。また、汚染物質の排出源の特徴を表す指標として、二酸化炭素、メタン、一酸化炭素、ブラックカーボン、窒素酸化物、二酸化硫黄も観測する。観測データの比較から、北太平洋、西部南太平洋、東シナ海、南シナ海といったアジア大陸周縁の海域において、大気質に関連する物質の地域的分布や季節変化といった基礎データが得られた。これらのデータは、気候や大気質の将来予測を行う元となる化学気候モデルの評価に活用でき、気候変動の緩和策および適応策の改善に資する。また、観測データは、国立環境研究所のデータベース事業の一環として一般に公開され、国際的に広く利用される予定である。

【キーワード】大気質、短寿命気候強制因子、オゾン、エアロゾル、東南アジア

1. はじめに

2016年にパリ協定が発効され、世界が2050年の脱炭素化に向けて動き出しているものの、地球温暖化・気候変動はすでに地球システムや私たち人間社会に影響を及ぼしており、洪水

など極端な気象災害や、水資源、海岸侵食、生態系、野生生物、食糧生産、人間の健康など、実に広く生態系の営みや人間社会の行動に影響を与えている。

その中の一つに、気候変動が大気質に対して及ぼす影響や、より広く、気候変動と大気質変動の相互作用が挙げられる。これらは、地球大気における基礎的な物理・化学として重要であり、また、科学的興味も持たれるものの、これまではモデル研究が多く、観測的研究は非常に限られてきた。モデル研究からの最新の知見としては、地球温暖化による気温の上昇や水蒸気量の増加が示唆されており、これらはさらに、海洋上でOHラジカルを増加させる、雷や土壌からのNO_x生成を増加させる、森林からのVOC放出を増加させるといった様々なフィードバックを地球表層物質循環に引き起こし、大気質に影響を及ぼす可能性が指摘されている。永島ら(2019)等、日本の大気質に及ぼす影響についても研究が始まっている。

そのような状況で、遡ること2012年、OECD(経済協力開発機構)は大気汚染が2050年には全世界で早期死亡をもたらす最も大きな環境要因であると初めて報告した。また、近年のWHO(世界保健機関)の報告書でも、現在、全世界で700万人もの人が大気汚染による早期死亡の影響を受けており、大気汚染はすでに最大かつ単一の健康影響リスクであることを警告した。国連環境総会(UN Environment Assembly)でも、大気質の改善が持続可能な開発において最重要な課題の1つであるとし、国際的な場で、clean air(きれいな空気)は人間の健康を守ると同時に、食糧保障を含む生態系や気候にも良い効果があることが認識されていた。

こうした世界的認識に関して本研究でのフォーカスを3つ挙げると、第一に「大気汚染による健康被害」が挙げられる。大気汚染は人間の健康に影響を及ぼす最大の環境要因であることが明らかとなっている一方、モデル研究からは温暖化により大気汚染が悪化する地域と改善する地域があることがわかってきた。大気汚染の中にも、光化学スモッグやヘイズのような一時的～季節的なものから、半球規模のバックグラウンドレベルの経年増加で各国の環境基準超過に影響を及ぼすものまで様々あり、モデルによる予測を実証または反証するためにも、特に日本とアジアの大気質に影響を及ぼす太平洋およびアジアでの長期観測が必要である。第二に、「酸性沈着による生態系影響」が挙げられる。大気中エアロゾルの海洋表層への沈着は、河川からの流入と比較しても少なくないことが知られているが、特にアジアの下流となる西太平洋では相応の沈着量があることが報告されている。こうした沈着は、海洋化学に影響を及ぼし、栄養塩として植物プランクトンなどの海洋生態系を通じて食物連鎖に影響し、ひいては食糧安全保障とも繋がることとなるため、沈着量および栄養塩や、一次生産の指標となるクロロフィルの基礎的モニタリングが必要である。第三に、「水循環の変動による災害影響」が挙げられる。エルニーニョ時の乾燥化に誘引される森林火災では、大気汚染ガスやエアロゾルの大きな放出が起こり、ヘイズ若しくはスモッグと称される煙霧が起こる。また、アジアの熱帯から亜熱帯地域では、森林による二酸化炭素の放出・吸収に加え、水田や湿地からのメタンや亜酸化窒素の放出が大きいことが知られており、温暖化やそれに伴う水循環変動により放出・吸収バランスが変化する可能性がある。健康や陸上生態系への影響の大きさ、温暖化へのフィードバックの重要性などからも、広範なモニタリングが必要である。

こうした重要性・必要性にも関わらず、南北にわたって広範な太平洋上、もしくはアジアの海洋上における観測は極めて乏しい。NOAA/ESRL(米国海洋大気庁地球システム調査研究所)

が香港－シンガポール間の船舶を用いて大気のリモートサンプリングを実施していたが、1998年に終了している。現在は、NOAA/ESRLによるBukit Koto Tabang (Indonesia)とWMO/GAW (世界気象機関・Global Atmospheric Watch) プログラムによるDanum Valley (Malaysia)、Tanah Rata (Malaysia)の3カ所の地上ステーションしか報告されていない(気象庁のWDCGGデータセンターへの報告による)。当該地域の重要性に鑑み、この数年間で観測サイトが増えてきてはいるが、海洋上の大気汚染物質をモニタリングするプラットフォームはまだ存在しない。したがって、現在まで国立環境研究所が温室効果ガスのモニタリングを行ってきたプラットフォームが、大気汚染物質への影響を長期観測可能な唯一の信頼できるプラットフォームであると言っても過言ではなく、その継続には国連機関からも大きな期待が寄せられている。

大気汚染ガスやエアロゾルの長期観測データからは、これら物質の大気中濃度レベルが明らかになるだけでなく、モデルによる全球的な陸域および海洋生態系への沈着による影響の推定や、その高精度化に貢献できる。特に、海洋への沈着量の観測は研究船による観測例に限られているため、時間的および空間的にデータ数が少なく、モデルの検証が十分とは言い難い。例えば、従来、オゾンの沈着速度は海洋では非常に小さい(陸域と比較して1/10)とされているが、実は過小評価であり、大きくするとモデルによる観測の再現性が向上する、といった報告もある。このような沈着速度の改良は、単なるモデルの改良にとどまらず、モデルを通じて推計されるグローバルな大気汚染物質の生態系や人間への影響の知見を改善するための重要な情報となる。こうした不確実性を小さくし精度を高めるためには、これまでのように地上の観測だけではなく、大気が清浄な海洋上で広範な緯度帯・経度帯での観測が重要となり、短寿命成分について信頼性の高いデータを得るためには連続測定を高頻度に行うモニタリングが必要である。

2. 研究目的

本研究では、アジア・太平洋地域の広範な領域において大気質をモニタリングする。オゾンやPM_{2.5}に代表される大気質は大気汚染として人間の健康に影響を及ぼす他、酸性沈着を介して陸上や海洋生態系の生物生産に影響し、ヘイズや洪水など地域的に極端な気象災害をもたらすなど、生態系、食糧生産、水資源に直接的・間接的な影響を持つ。日本をベースに運航する定期貨物船を用いて南北太平洋における大気中の大気汚染物質を長期観測することで、大気質に関連する物質の地域的分布や季節変化といった基礎データを得て、グローバルな代表性を持つ清浄なバックグラウンド大気の特徴に加えて、リージョナルな代表性を持つ東アジアの大気および日本周辺の大気の特徴を把握することを目的とする。また、気候変動の緩和策および適応策の改善の基礎となる、気候や大気質の将来予測を行う元となる化学気候モデルの結果と比較し、モデルの評価に活用できるかどうかを確かめる。南北太平洋の幅広い空間領域において、長期にわたって質の高い大気質関連物質のデータを得て、データセットとして整備することも目的の一つである。

3. 研究方法

これまで地球環境保全試験研究費課題を中心に行ってきた温室効果ガス観測に用いてきた定期貨物船によるプラットフォームを利用した。具体的には、環境省地球環境保全試験研究

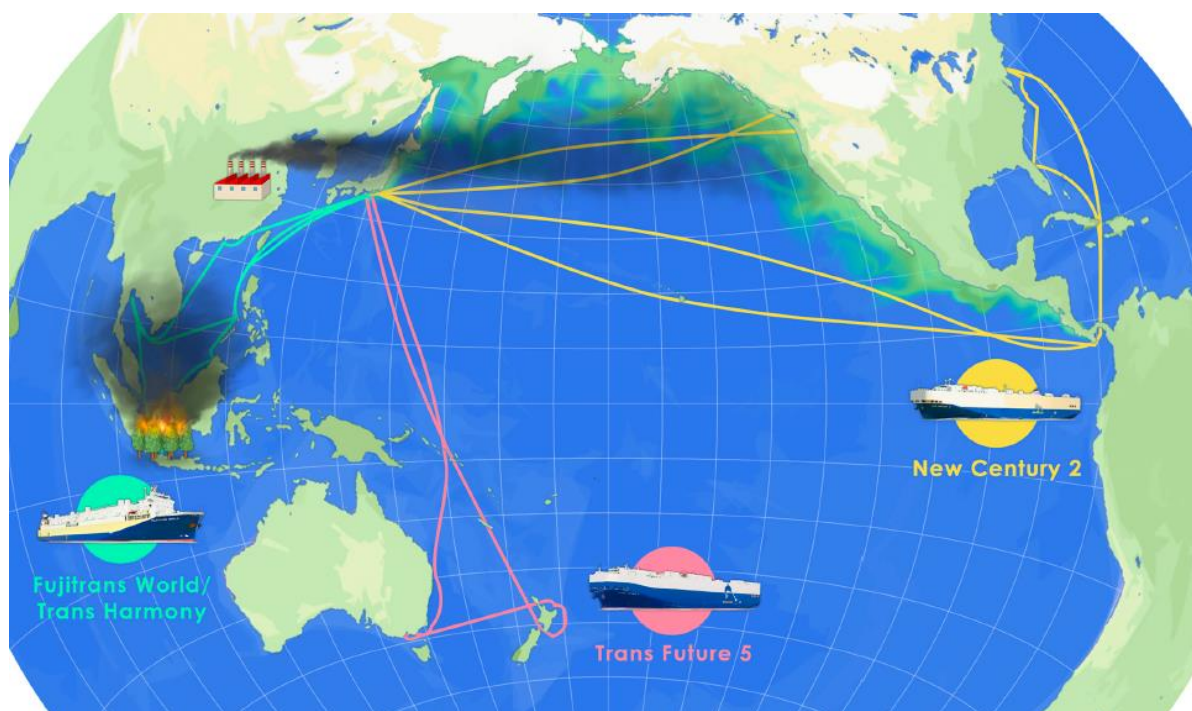


図 1. アジア、オセアニア、北米航路における標準観測ルート

費課題「西部太平洋域の微量温室効果ガス分布と発生源に関する研究 (FY H. 16-18)」で実施されてきた日本-オセアニア (オーストラリア・ニュージーランド) 航路、「アジア・オセアニア域における微量温室効果ガスの多成分長期観測 (FY H. 19-23)」、「アジア・オセアニア域における長寿命・短寿命気候影響物質の包括的長期観測 (FY H. 24-28)」で追加された日本-東南アジア航路 (中国、タイ、マレーシア、シンガポール、インドネシア、フィリピン) をベースに蓄積してきた船舶観測のノウハウと設備を効率的に活用することで、アジア・太平洋地域における大気質および海洋への沈着へ及ぼす影響のモニタリング観測へと発展させた。特に、日本-北米 (アメリカ、カナダ) 航路を追加するとともに、複数の連続測定装置を導入してガス・エアロゾルともに観測成分・能力を拡充した。

北米航路は約 8 週周期、東南アジア航路船は約 4 週周期、オセアニア航路船は約 6 週周期

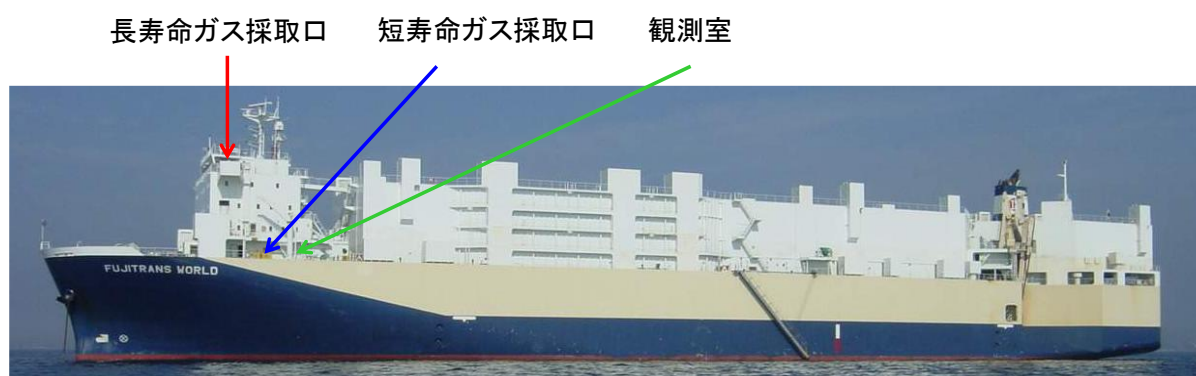


図 2. FUJITRANS WORLD 号の外観と、ガス採取口および観測室の場所



図3. 連続測定器の大気採取口と屋外配管

で日本に寄港するため、寄港地で装置の保守作業、消耗品交換、観測データ回収を行った。船舶会社による協力を得て、機器の正常動作確認、トラブル対応を行い、日々の安全を確認しながら観測を実施した。加えて、港での業務と日常業務は、国立環境研究所の研究者・研究補助員のほか、貨物船による観測支援業務に経験・実績のある会社にも依頼した。測定データは、研究者による品質チェック（QA/QC）を経て、最終データとした。

（1）船舶プラットフォーム

図1にアジア、オセアニア、北米航路の典型的な航路を示す。東南アジア航路を定期的に航行する貨物船であるFUJITRANS WORLD号（図2）並びにTRANS HARMONY 1号は、東シナ海と南シナ海にわたるアジア沿海域を航行する自動車運搬船であり、日本、中国、タイ、マレーシア、シンガポール、インドネシア、およびフィリピンの各港に寄港し、4週間で1周する定期運行を行っている。南シナ海（タイーフィリピン間）は、ボルネオ島に近い航路と遠い航路が見られるが、航行時の天候に応じて変更されるもので、通常はより距離の短い陸から遠い航路をとる。東南アジア航路に加えて、オセアニア航路を航行するTRANS FUTURE 5号を利用した大気観測も行なっている。TRANS FUTURE 5号は、南北両半球にわたる西部太平洋とタスマン海を航行する自動車運搬船であり、日本、オーストラリア、ニュージーランドの各港に寄港し、6週間で1周する定期運行を行っている。さらに、北米（アメリカ、カナダ）航路を航行するNEW CENTURY 2号を利用した大気観測も行なっている。NEW CENTURY 2号は、日本、カナダ、アメリカ合衆国の各港に寄港し、8週間で1周する定期運行を行っている。この3船が本課題の主要な観測プラットフォームである。なお、観測装置の設置・運用は、トヨフジ海運株式会社並びに鹿児島船舶株式会社のご協力を得て行った。

以下では、例としてアジア航路における設備について述べる。

（2）大気連続測定システム

長寿命ガス成分の大気採取口はコンパスデッキに設置され、ステンレス管で配管されてい



図4. 連続測定装置の写真（左：オゾン、一酸化炭素；右：ブラックカーボン）

る。一方、短寿命ガス成分の大気採取口は、サンプリング中における消失を避けるため、観測室に近いデッキに設置されており、採取口から観測室までテフロン管（オゾン）またはブレードホース（エアロゾル）で配管されている（図3）。関連データの取得には、GPS 測位装置、各装置で取得したデータを保存するサーバーPC、測定データとグラフを表示するPCを利用している。また、船の操舵室上のコンパスデッキに設置されている大気採取口、日射計、温湿度計なども整備されている（図4）。試料大気は通常、配管内で結露した水蒸気を除去するためにミストトラップを経由して除湿ユニットに導入される。貨物船を用いた連続観測には地上観測ステーションとは異なる悪条件があり、技術的にも容易ではない。例えば、船舶が広域を航行するので気温の変化が大きい上、波浪に起因する船体の動揺と船舶自身が発生する（長・短期）振動が存在した。民間船を利用するため、安全面で使用可能な装置、それに付随する機材の制約もある。以下に個々の装置の詳細を述べる。

① 紫外吸収法によるオゾン測定

オゾンの測定には、紫外吸収法に基づく自動連続測定装置を用いた。紫外吸収法はオゾンが紫外領域に強い吸収を持つことを利用した測定法であり、測定精度や時間分解能が良く感度が長期間安定している上、他の気体成分による干渉も少ないという長所を有する。紫外光源には波長253.7 nmの輝線を発する低圧水銀ランプが用いられ、253.7 nmの波長における吸光度が測定されてLambert-Beerの法則から試料ガス中のオゾン濃度が決定される。大気中の埃や微粒子が混入することを避けるために最前段にテフロン製フィルターを設置した。測定精度は100 ppb以下で約2%以内である。配管やフィルターなど接ガス部の材質には不活性なテフロンを使用し、試料採取口から測定器までの配管はできるだけ短くした。

② キャビティリングダウン式分光法による一酸化炭素等の連続測定

一酸化炭素・二酸化炭素・メタンの連続測定には、キャビティリングダウン分光法（Cavity Ring-down Spectroscopy, CRDS）を用いた。CRDSは2枚の高反射率ミラーで光学キャビティを構成し、キャビティ内にパルスレーザーを閉じ込め、キャビティから出てくるレーザー光の一部の強度減衰を観測することでキャビティ内の分子の数密度を計測することができる方

法である。キャビティリングダウン式分光計は船自体から生じる短波長の微振動の影響を避けるため α ゲルを使用した除振台の上に設置されており、船舶の供給電源の電圧低下やサージ等の電圧変動や電気ノイズから装置を保護するため、無停電電源（UPS）を通じて給電を行っている。大気試料は船舶トップデッキに設置した大気採取口から観測室に設置されたダイヤフラムポンプを用いて吸引され、観測室にあるガラス製のマニホールドから排気される。このマニホールドから試料大気はCRDSに内蔵されたポンプを用いて約180 mL/minの流量で除塵フィルター、ガスインジェクションユニットを経由してキャビティリングダウン式分光計へと導入される。インジェクションユニットは、試料大気と標準ガスの導入を分けることが可能で、ソレノイドバルブを制御して3種の標準ガスを選択的に導入している。各種標準ガスはマスフローコントローラーを用いて350 mL/minの流量に制御されてマニホールドへと導入される。各種ソレノイドバルブの開閉はキャビティリングダウン式分光計のバルブシーケンサーで制御されており、1日に1回、各種標準ガスをそれぞれ10分間キャビティリングダウン式分光計に導入するようにプログラムされている。



図5. 船舶屋外に設置されたエアロゾル採取インレット

③ エアロゾルの採取インレットおよび測定

エアロゾルの採取には、専用のインレットを設置した。例として、東南アジア航路のTRANS HARMONY 1号に設置したエアロゾルインレットを示す（図5）。観測室は船舶居住区の左舷最船尾に設置されており、エアロゾルインレットは配管内における損失を最小限にするため、観測室の天井貫通型とした。インレットの分級部にはインパクター型のTISCH Environmental社のPM10インレット（TE-PM10-D）を用い、台風等による海上における強風への耐久性を考慮して金属ワイヤーを用いて船体部に固定し、上端が船舶の観測室直上部床面から1 mの高さとなるようにした。このインレットを通じて、粒子計測器に組み込まれたポンプにより環境大気を16.7 L/minで吸引することで50%カットオフ径が10 μ mの粒径を持つ大気エアロゾル試料を装置に導入する。

PM_{2.5}の測定には、微小粒子状物質自動測定器（SHARP: Synchronized hybrid Ambient Real-time Particulate Monitor、model 5030i、東京ダイレック株式会社）を用いた。SHARPは加熱管を用いて試料大気の調湿が可能であり、ベータ線吸収方式だけでなく、時間分解能に優れた光散乱方式でのPM_{2.5}の計測が可能である。SHARPでは、ベータ線吸収方式による計測値（1時間値）を基準として光散乱方式の計測値（1分値）をリアルタイムで校正・出力する一方で、これら2つの方法から得られるそれぞれの計測結果のデジタルフィルタリング値の比と光散乱方式での計測からPM_{2.5}の質量濃度を算出するハイブリッド法による算出値であるSHARP値も出力される。SHARPの特徴は、海洋大気中に多く存在する硫酸塩エアロゾル等による吸湿特性の影響を低減できること、そして泥炭火災等に代表される、大規模な汚染物質放出イベン

トを現場観測で詳細に捉えることができるという点で、他のPM2.5の計測機器に対してアドバンテージとなる。

大気中のブラックカーボン濃度を連続して測定するため、ブラックカーボンモニター(BCM, 日本カノマックス株式会社、model 3130)を使用した。BCMは、大気中のブラックカーボンを熱抽出して連続的にフィルター上に捕集し、光吸収量の変化をフォトダイオードで検出し、濃度を測定する。本装置は加熱抽出部と捕集・検出部から構成されており、加熱抽出部でサンプル大気を加熱した後、誤差要因となる干渉成分(散乱性エアロゾル)を除去してブラックカーボンを抽出し、捕集・検出部で捕集されたブラックカーボンの光吸収率をリアルタイムに測定し、質量吸収係数を用いてブラックカーボン濃度を求める方式であり、散乱性エアロゾルの影響を受けない。

④ 窒素酸化物および二酸化硫黄の測定

窒素酸化物(NO_x)の計測は、キャビティ減衰位相シフト法により行った。分析計(CAPS: Cavity Attenuated Phase shift Spectroscopy、モデル CAPS- NO_2 、汀線科学株式会社)にはサンプリングのポンプが内蔵されており、サンプリング流量は1.2 L/minである。また、大気採取インレットには、シリコナート処理が施されたPM2.5サイクロンを使用している。本手法は、ベースラインがドリフトしうるため、その補正のためにゼロエアーを定期的に計測している。二酸化窒素の応答時間は10秒程度以内、最小検出濃度は10-30 ppt程度である。

二酸化硫黄(SO_2)の計測は、紫外線パルス蛍光法により行った。分析計にはサンプリングのポンプが内蔵されており、サンプリング流量は0.5 L/minである。 SO_2 の応答時間は10秒程度以内、最小検出濃度は0.05 ppb程度である。

⑤ 栄養塩・クロロフィルの試料採取法および分析法

海水試料の採取は、Trans Future 5号とNew Century 2号の船底に設置した海洋観測室において1日2-3回の頻度で航海中にサンプリングを行い、年間あたり約700点のデータを取得した。栄養塩用試料は、10 mL程度の海水をプラスチック容器に採取し、 -80°C で保存した後、国立環境研究所に輸送し、解凍してオートアナライザー(BL テック社製 QuAAtro 39)にて分析した。また、クロロフィルa用試料は試料海水250 mLをガラス繊維濾紙(Whatmann GF/Fグレード)でろ過後、ろ紙を -80°C で保存して国立環境研究所に輸送し、クロロフィルa濃度測定装置(ターナーデザイン社製 10-AU)で分析した。

⑥ データ処理

観測データの処理にあたり、自船による排煙の影響を除くために、一酸化窒素(NO)およびオゾン濃度をもとに影響判定を行なった。自船の影響を受けた場合、 NO の濃度が顕著に増加すると同時に、オゾン濃度が NO によるタイトレーション効果でほぼゼロになることが想定される。この特徴に基づいてデータをスクリーニングし、風向が船尾方向からのもの、かつ船舶航行速度を風速が上回る場合や、船舶が各港に入港するために減速する際に自船の排煙影響が確認された。これは、船舶の煙突が試料大気を採取するためのインレットに対して船尾側に位置することから、自船排煙の影響を受けた、と説明できる。また、船舶は約20 knot

で巡航しており、細かく微加速と惰性航行を行う事でこの巡航速度を一定に保つように航行するが、この惰性航行時の船速減少時にも上記特徴が認められた。これらの結果から、本研究では船速が 10 knot 未満のデータ、船舶減速時および船速よりも船尾から船首方向への風速が大きくなるようなデータについては自船の影響を受けやすいデータとして解析データから除外すると共に、船舶減速時のデータについてはスクリーニングを行い、残ったデータに

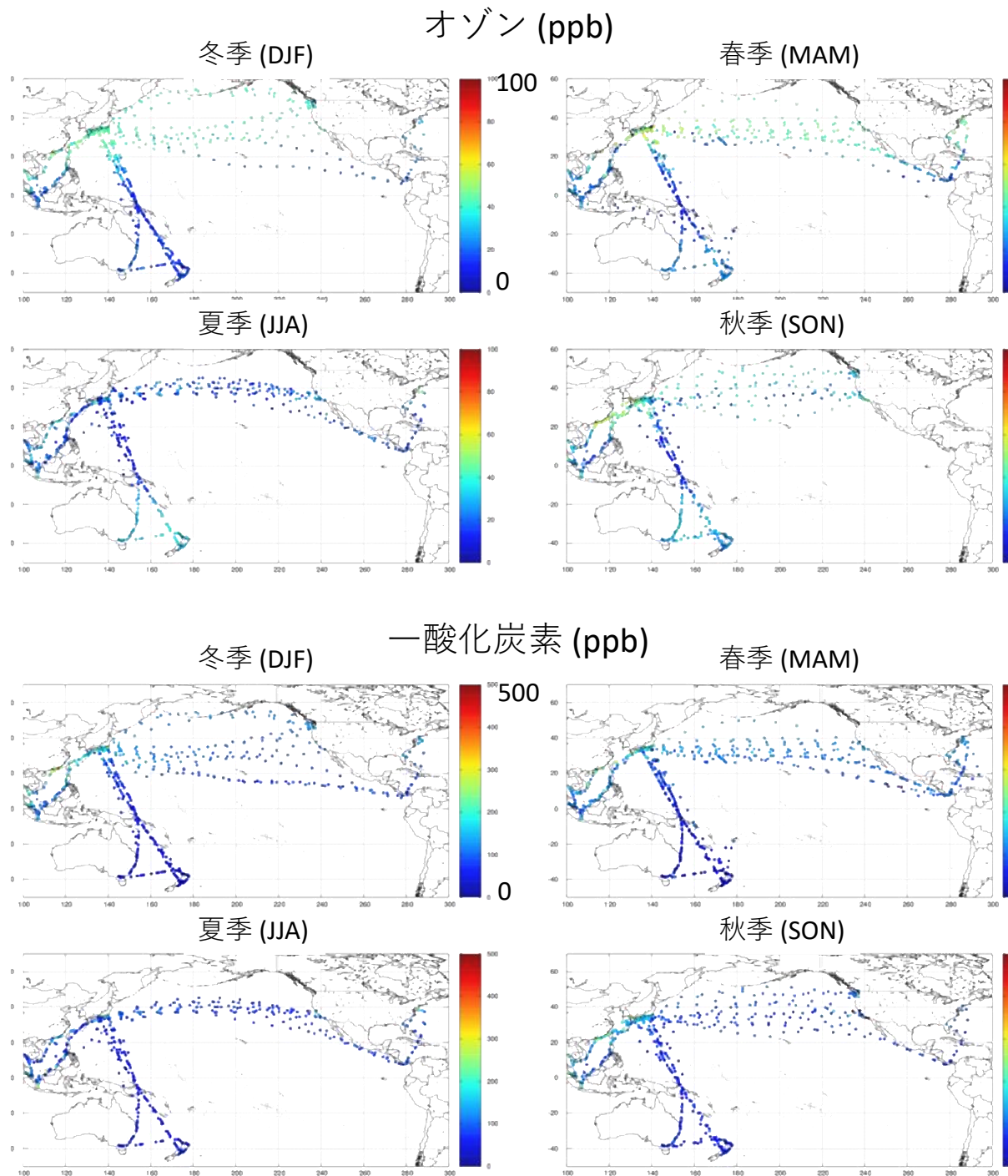


図6. 南北太平洋におけるオゾン（上）、一酸化炭素（下）の濃度分布の季節性

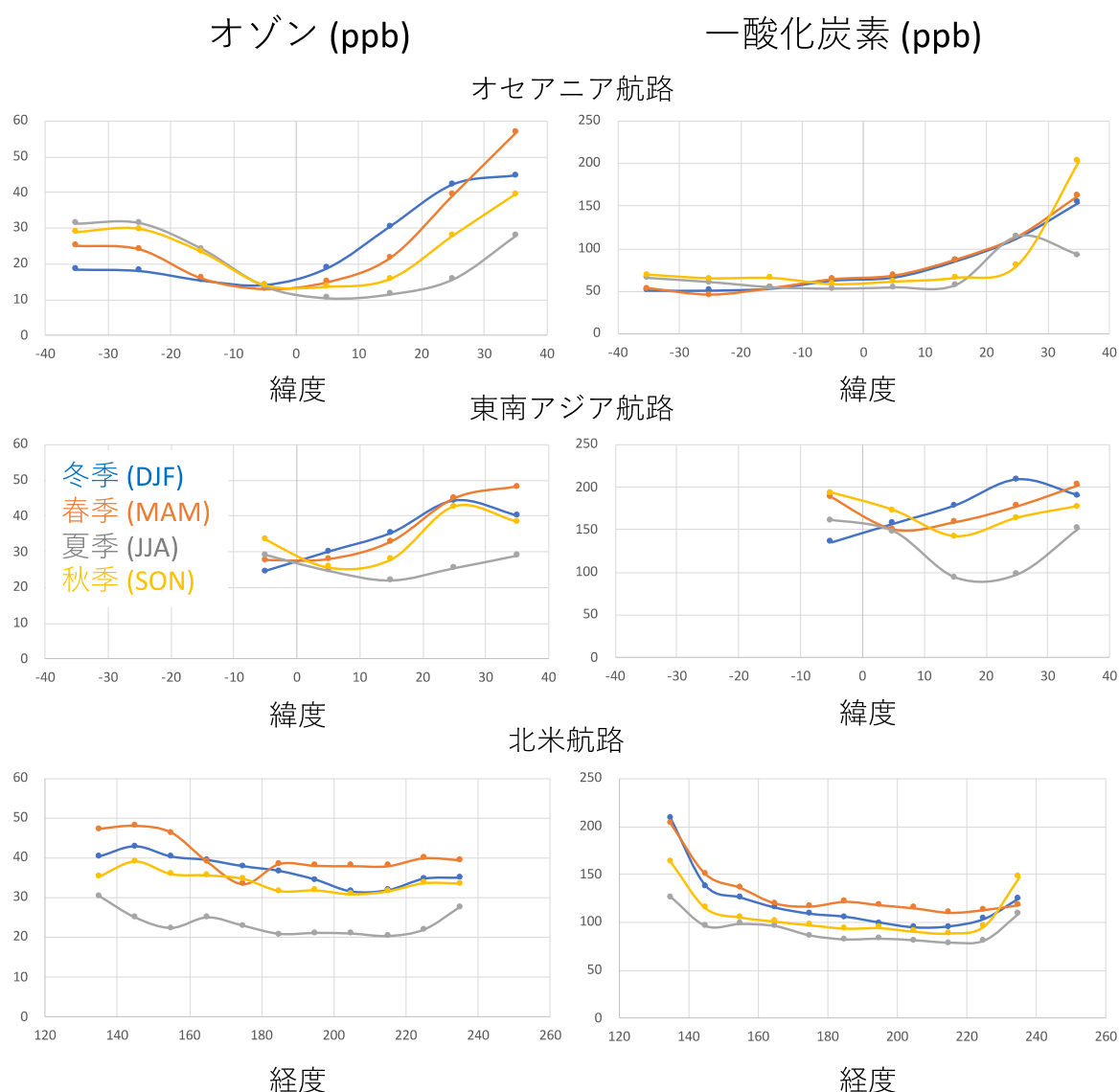


図7. オセアニア航路、東南アジア航路、北米航路におけるオゾンおよび一酸化炭素濃度の緯度・経度依存性

対して減速時データの前後関係を含めて総合的に判断し、自船の影響を受けていると思われるデータにはフラグを付すことで自船の排煙を計測した可能性があるデータを除外した。

ただし例外的に、マラッカ海峡内とシンガポール近郊での観測データについては入港のための減速時データのみを除くこととした。これは、マラッカ海峡内とシンガポール近郊では高密度で船舶が存在していることに加え、マラッカ海峡内の両岸陸域の発生源の影響を受けやすいため、上記手法によって自船排煙の影響のみを除くことが困難なためである。

4. 結果・考察

(1) アジア・オセアニアにおけるオゾン・一酸化炭素の濃度分布と特徴

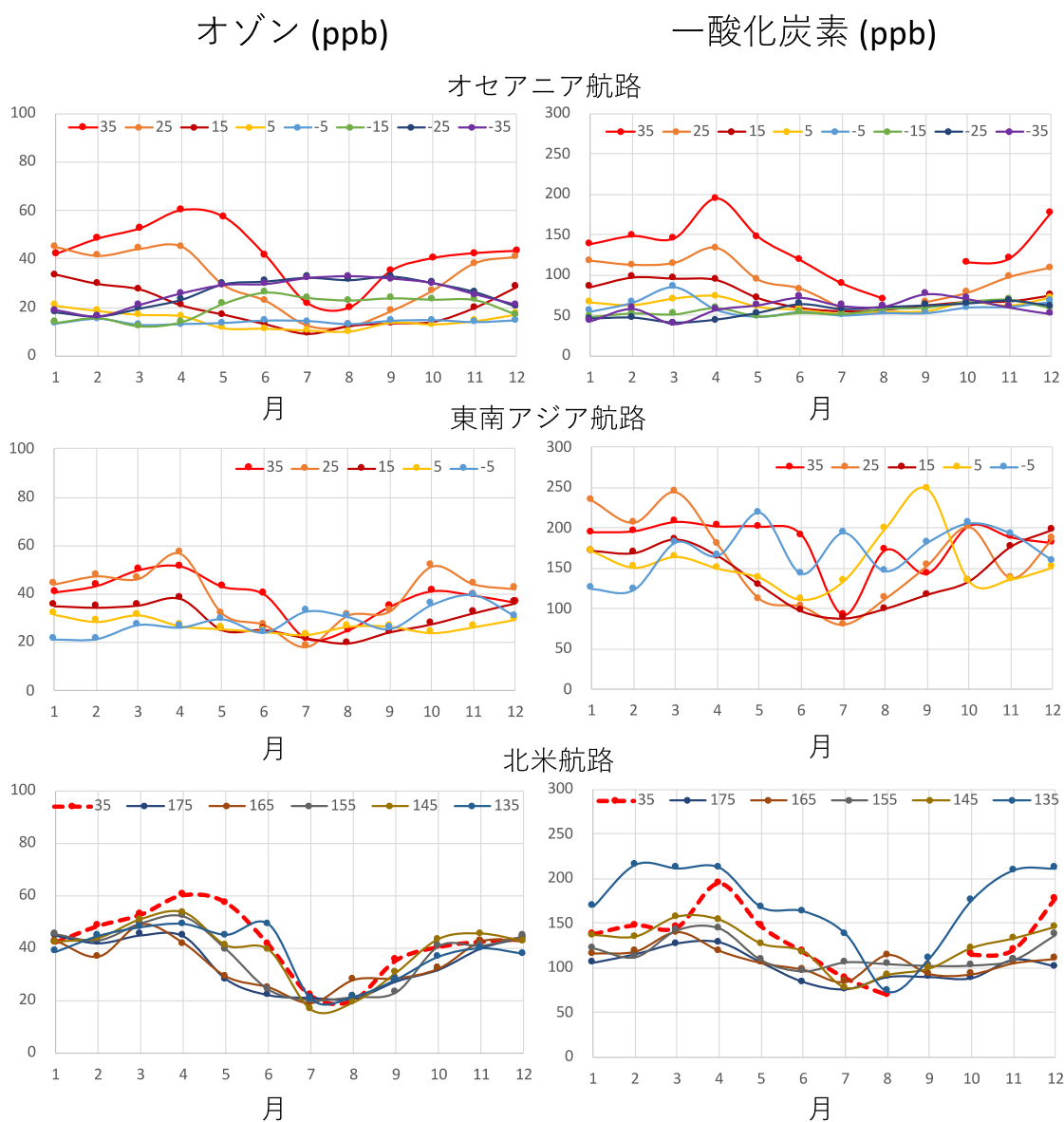


図8. オセアニア航路、東南アジア航路、北米航路におけるオゾンおよび一酸化炭素濃度の緯度・経度別季節変化

図6に、南北太平洋の幅広い緯度帯および経度帯におけるオゾンおよび一酸化炭素(CO)の分布を季節別にプロットしたものを示す。オゾン、COともに、北半球中緯度帯(北緯20度以上)において濃度レベルが高くなっている傾向が見られた。この傾向は、夏季以外の季節に明瞭に見られ、オゾンについては太平洋の西から東にかけて広範に及び、一方、COについてはオゾンほど明瞭には見られなかった。これは、オゾンが輸送途中で二次的に生成しうのに対して、COは排出された後、消失していくのみであることによると考えられる。また、オゾンについて、春および秋にはアジアから北米にかけて高濃度域が広がっていることが明瞭に見て取れた。オゾンは、南半球における濃度変動も増減があり、南半球の冬～春にあたる季節では中緯度帯で濃度増加が明瞭に見られた。

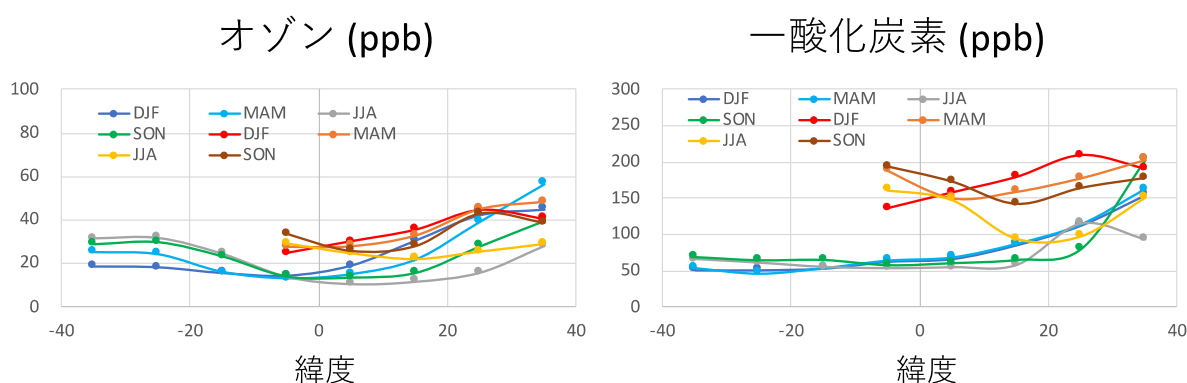


図9. オゾンおよび一酸化炭素濃度の緯度依存性のオセアニア航路（寒色系）と東南アジア航路（暖色系）の比較

（2）各航路におけるオゾン・一酸化炭素の緯度分布・経度分布と特徴

図7に、オゾンおよび一酸化炭素濃度の緯度・経度依存性を、オセアニア航路、東南アジア航路、北米航路に分けて示す。まず、オゾンについて、オセアニア航路では、概して北半球でオゾン濃度が高く、特に中緯度帯の冬～春にかけて最大値（40-50 ppb）を示している。北緯30度の南では冬極大、北では春極大となっているのも、低緯度帯ではオゾン生成に十分な日射量があると考え、説明が可能である。南北両半球ともに、低緯度帯に比べて中緯度帯でオゾン濃度が高く、明瞭な季節変化を示した。南半球でも、（南半球の）冬～春にかけて極大（20-30 ppb）となり、その間は北半球では夏季であり、低濃度を示した。このように、南北両半球にわたる緯度方向のベースラインが季節の移り変わりとともに一時的に変化している特徴が見られた。一方、COは北半球における濃度が概して高いものの、中緯度帯における季節変化が非常に小さく、南北の中緯度帯で極大濃度が比較しうるレベルになるようなことはない。これは、COは二次生成せず、排出後は消失するのみであること、南半球にはCOの排出源となる陸域の人為起源排出源が少ないことによるとと思われる。

東南アジア航路のデータはオセアニア航路よりも緯度カバレッジが狭く、南緯10度から北緯40度までしかないが、特に北緯20度以北ではオセアニア航路と非常に類似した濃度レベルを示した。これは、東南アジア航路の経度帯が120度付近、オセアニア航路の経度帯が140度付近であり、経度帯が近いことが挙げられる一方、熱帯～亜熱帯域においては、オセアニア航路と比較して、どの季節でも濃度が高くなっており、アジア大陸の人間活動に近い東南アジア航路では、通年で豊富な日射量のもと、前駆物質の排出に駆動されるオゾン生成が起きていることを示唆していると考えられる。COについても同様な傾向が見られ、熱帯～亜熱帯域においては、オセアニア航路と比較してCO濃度が高くなっており、アジア大陸の人間活動からのCO排出を捉えていると考えられる。

北米航路は、経度方向の依存性を示しているが、オゾンは経度方向に顕著な差は見られない。これは、太平洋の西から東までが比較的均一なオゾン濃度を有していることを示している。COも概して同様ではあり、太平洋上では、大気境界層内の輸送のタイムスケールではオ

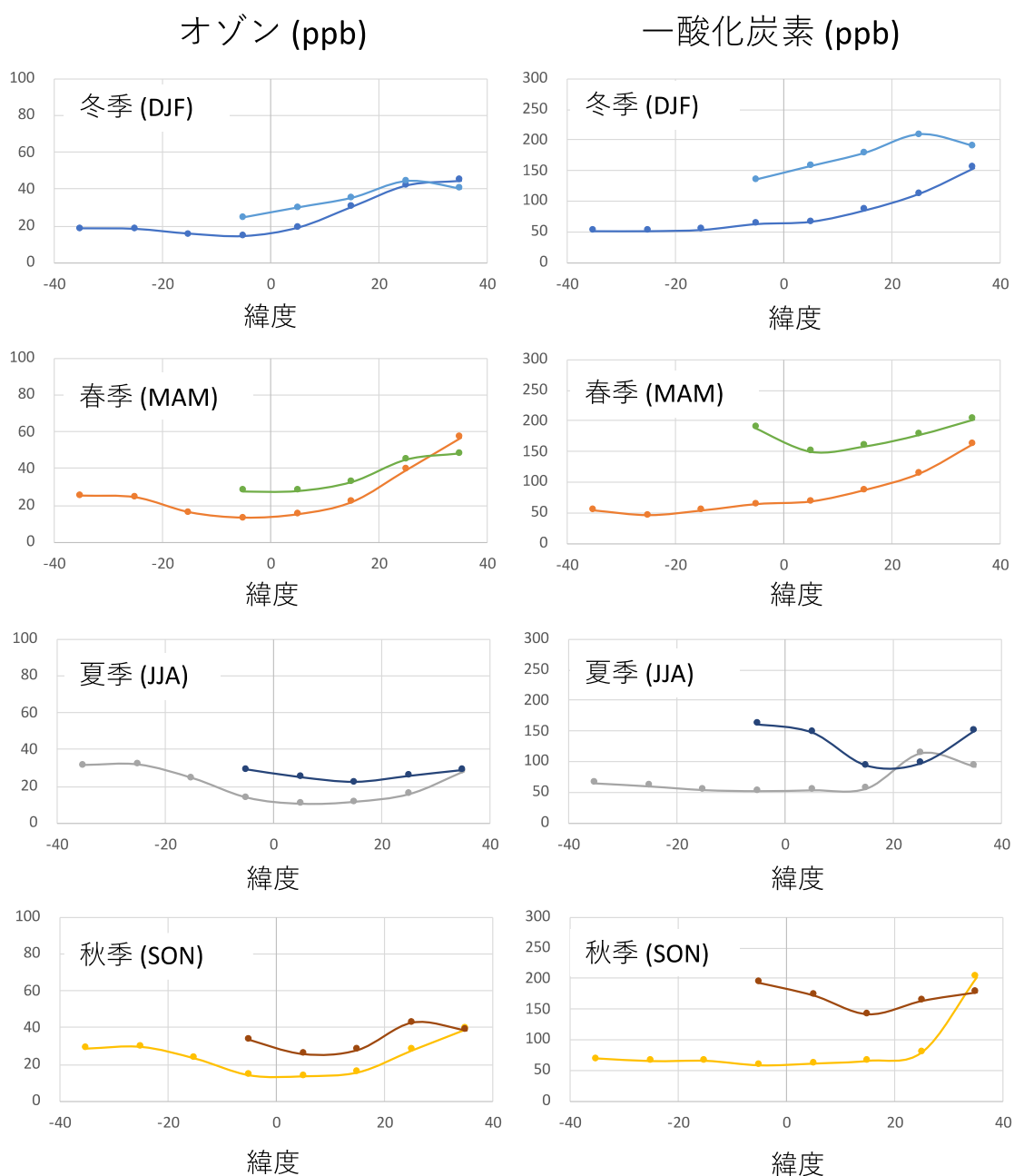


図 10. オゾンおよび一酸化炭素濃度の緯度依存性のオセアニア航路と東南アジア航路の季節別比較

ゾンもCOも濃度分布に変化があるほどではない、と言える。一方、アジア大陸およびアメリカ大陸に近い経度帯では濃度が高くなっており、人間活動からの排出の影響を捉えている。

(3) 各航路におけるオゾン・一酸化炭素の季節変動と特徴

図 8 に、オセアニア航路、東南アジア航路、および北米航路における連続測定で得られたオゾンおよびCOの大気中濃度データを緯度帯および経度帯毎に整理して、年内の変化を調べた。

オセアニア航路では北半球の中緯度帯において明瞭な季節変化が見られた。中緯度帯では濃度レベルが高いだけでなく、その変動も大きい。窒素酸化物や揮発性有機化合物を前駆物質として、特に春季に正味でオゾンが生成していることが示唆される。北半球においては、春季に極大となり夏季に極小となる季節変化が見られた。春季よりは小さいものの秋季にも小さな第2極大が見られた。また、季節変化の振幅は高緯度になるほど大きく、北緯30-40度では40 ppbにも達した。中緯度帯から亜熱帯を経て熱帯に近づくにつれて季節変化の振幅は小さくなり、熱帯域では非常に小さな振幅しか示さなかった。濃度レベルも熱帯では低く、これは太平洋上の清浄な大気中でオゾンが消失傾向にあることを示しているものと考えられた。南半球においては、(北半球の)夏季(つまり、南半球の冬)に極大となり(北半球の)冬季に極小となる季節変化が見られた。ただし、季節変化の振幅は小さく、10 ppb程度であった。季節変化の振幅は高緯度になるほど大きく、南緯20度以北から赤道にかけては季節性が見られなかった。この特徴は北半球と同じである。

東南アジア航路のデータでも、中緯度帯では、概ねオセアニア航路と同様な傾向が見られた。一方、北緯10度以南の熱帯域では、東南アジア航路におけるオゾン濃度は概してオセアニア航路よりも高い値を示していた。前駆物質濃度が低いためオゾンが正味で消失となっているオセアニア航路とは対照的に、前駆物質濃度が高く、豊富な太陽光が一年を通じて得られる東南アジア航路ではオゾンが正味で生成となり、全体的に高いオゾン濃度をもたらしていると推測された。

北米航路におけるオゾン濃度は、経度帯による差異は明瞭に見られず、オセアニア航路の同緯度帯において得られたオゾン濃度と同じ季節変化を示していた。これは、太平洋の中緯度帯では、西から東まで幅広い海域にわたって濃度が均一であり、オゾンの大気中寿命を考えると、空気塊がよく混ざっているためであると考えられる。

COについては、オセアニア航路のデータからは、北緯10度以北で明瞭な季節変化が見られた。季節変化の形状がオゾンとは若干異なり、冬～春にかけて幅広いピークを示したが、これはCOが一時排出されていることと、その大気中寿命が1-2ヶ月と比較的長いことによると思われる。季節変化の振幅は、北緯30-40度で100-150 ppbであった。南半球では北半球と位相が逆転しているが、季節変化の振幅は非常に小さい。オゾンと同様、北半球中緯度帯は、大陸からの汚染空気塊が太平洋上に輸送されてくる影響を比較的受けるためであると考えられる。対照的に、北半球でも低緯度帯や赤道付近、そして、南半球においては、大陸から遠く、汚染空気塊の輸送の影響を受けにくいために、濃度変動が小さいと考えられる。

東南アジア航路におけるCO濃度はその濃度レベルが高いことが見て取れ、オセアニア航路における濃度より常に高くなっていた。特に、南緯10度～赤道では顕著で、年間を通じて200-400 ppbもの濃度を示した。当該地域でCOの大きな発生源があることを示唆している。その濃度変動も大きく、これは高濃度イベントがしばしば観測されたことによる。バイオマス燃焼などからの放出が東南アジアの熱帯域で多く、CO濃度に大きな影響を及ぼしていることが示唆された。

北米航路におけるCO濃度は、経度帯による差異は明瞭に見られず、オゾンの結果からも推察されたように、太平洋の中緯度帯では空気塊がよく混ざっているためであると考えられる。

図9にオセアニア航路と比較した、東南アジア航路で観測されたオゾンと一酸化炭素濃度

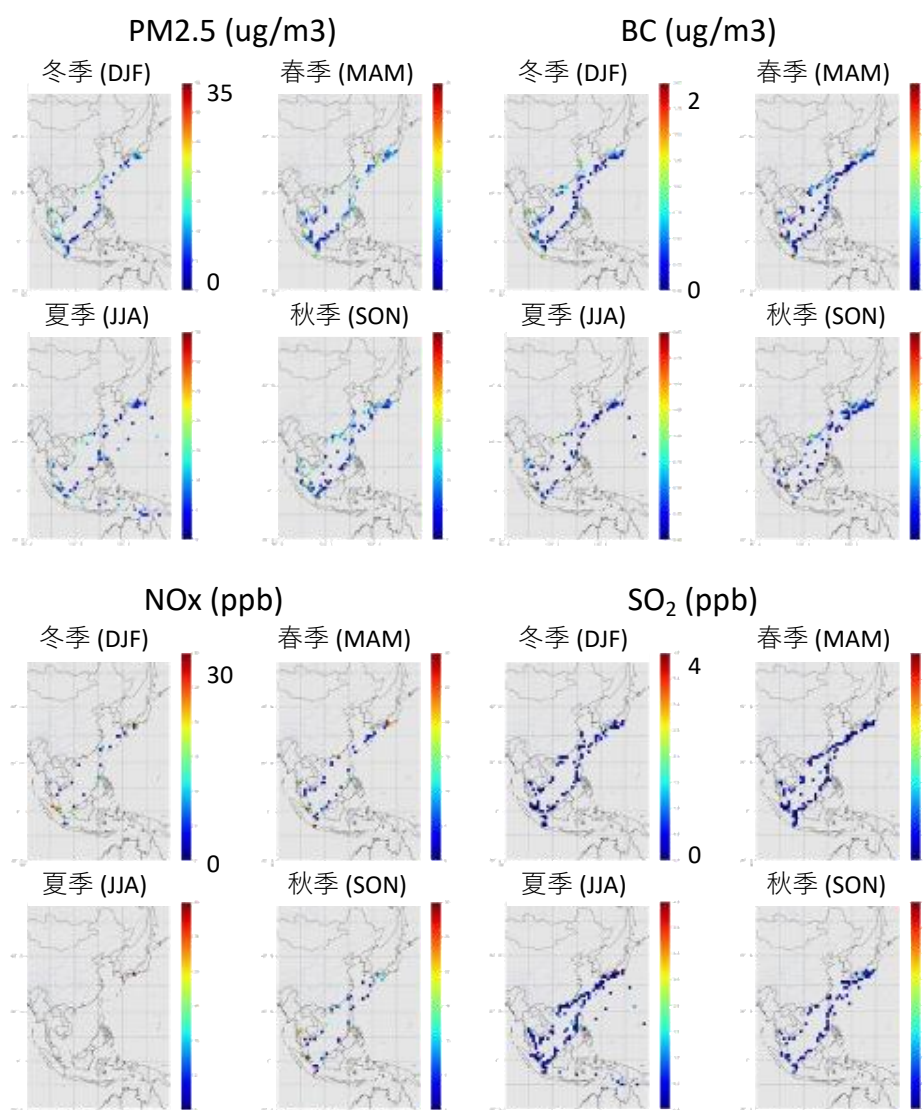


図 11. 東南アジア航路における PM2.5 (左上)、BC (右上)、NOx (左下)、SO₂ (右下) の濃度分布。2019-2022 年の期間におけるデータを緯度 1 度・経度 1 度で平均化した。

の差の季節変化を示す。オゾンについては、概して南緯10度～北緯20度では、年間を通じて 5-10 ppb 程度の差異が見られた。このことは、東南アジア航路（東経100-110度）では、オセアニア航路（東経150度）と比較して、地域的にオゾンが増大していることを示す。COについては、その差はより顕著で、南緯10度～北緯20度では100-150 ppb程度の増大が見られた。

図10からは、東南アジア航路の北緯20度以北では、オゾン濃度が太平洋上の濃度とあまり変わらないことがわかる。一方、北緯20度以南の熱帯域では、東南アジア航路におけるオゾン濃度は概してオセアニア航路よりも高い値を示している。年間を通じて差があり、熱帯域では豊富な太陽光が一年を通じて得られるため、と考えられる。COの濃度差も北緯20度以南で顕著である。

(4) 東南アジア航路におけるエアロゾル・ブラックカーボン・窒素酸化物・二酸化硫黄の濃度分布と特徴 緯度分布・経度分布と特徴

図11に東南アジア航路で2019年から2022年までの期間に得られたPM2.5、BC、NO_x、SO₂のデータを緯度1度・経度1度で平均化して、季節ごとにグリッドデータとしたものを示す。PM2.5、BC、NO_x、SO₂は大気中寿命が非常に短いので、ある程度の大気中寿命があるオゾン、COと異なり、濃度の分布が非常に不均一になっており、洋上ではほとんどゼロに近い。一方、沿岸や湾内、港湾では濃度が「局所的(local)」または「ホットスポット」として高くなっていることが見て取れる。そこで、このうち定常的な濃度増大が見られるエリアを中心に、「西部太平洋周縁域」「東シナ海」「南シナ海」「タイランド湾」「マラッカ海峡・ジャワ海」の5つのエリアに分けた(図12)。

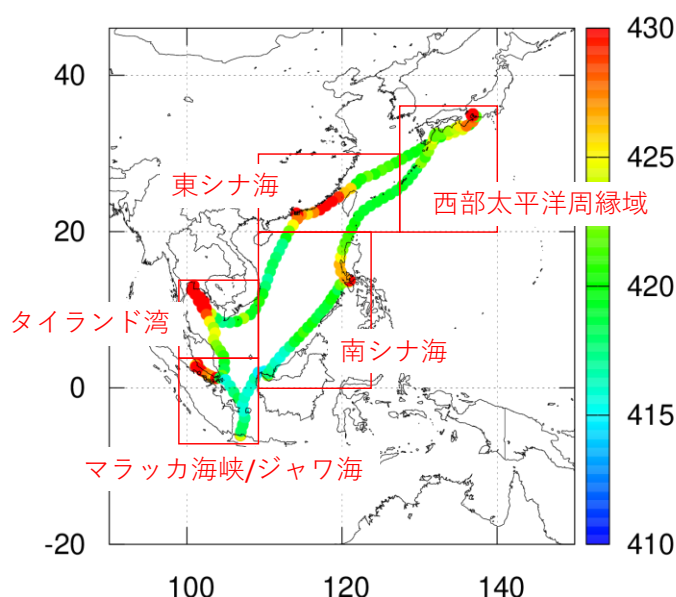


図12. 東南アジア航路におけるエリア分け。カラーバーはCO₂ (ppm)。

(5) 東南アジア航路におけるエアロゾル・ブラックカーボン・窒素酸化物・二酸化硫黄の季節変動と特徴

図13に、5エリアにおけるPM2.5、BC、NO_x、SO₂の季節変化をボックスプロットで示す。これらは短寿命であるため、データの濃度範囲が大きい。欠測もあるため、季節変化について明瞭な結論を出すことはやや難しいが、濃度幅と年々の差異がよく捉えられており、非常に貴重なデータが得られた。

PM2.5濃度は、西部太平洋周縁域、東シナ海、南シナ海、タイランド湾において、冬季に高くなり夏季に減少する傾向が見られた。その濃度レベルは概ね15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、洋上大気においては合理的と考えられる。一方、PM2.5の構成成分であるBCの濃度には、目立った季節変化傾向は見られず、濃度範囲は概ね1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下に収まっていた。NO_x濃度は、データ取得が難しかったものの、冬季に高くなり夏季に減少する傾向が見られた。SO₂濃度は、基本的にゼロであるが、イベント的に高くなるデータが見られている。

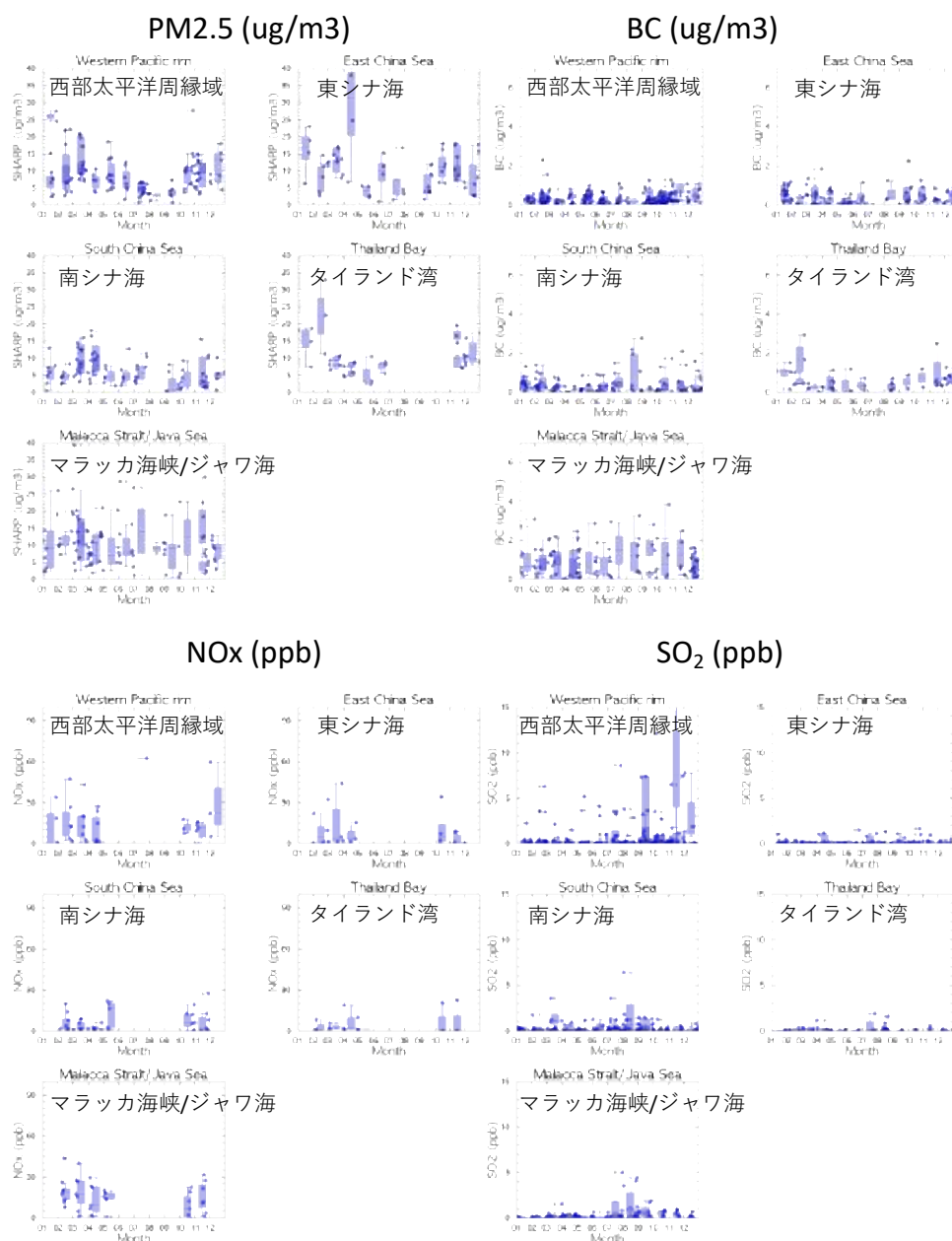


図 13 . 東南アジア航路での PM2.5 (左上)、BC (右上)、NOx (左下)、SO₂ (右下) の季節変化

図14、15にNO、NO₂、NOx、PM2.5と地表面付近の風向を合わせて示す。PM2.5は、ベータ線吸収法、光散乱法、およびハイブリッド法(SHARP)の値を示した。観測が実施されたFW268の期間は、東南アジア域における卓越風向を決定しているモンスーン循環が、冬季モンスーンから夏季モンスーンへ遷移する時期に当たる。特に、冬季から夏季モンスーンへの遷移期に特徴的な太平洋からの東風が南シナ海で卓越していることがわかる。この太平洋からの東風が東南アジアに流れ込むことにより、冬季に卓越するシベリアを起源とする北東アジア域から東南アジア域へのエアマスの輸送が弱まり、航路上の東アジア域(日本沿岸、東シナ海、およ

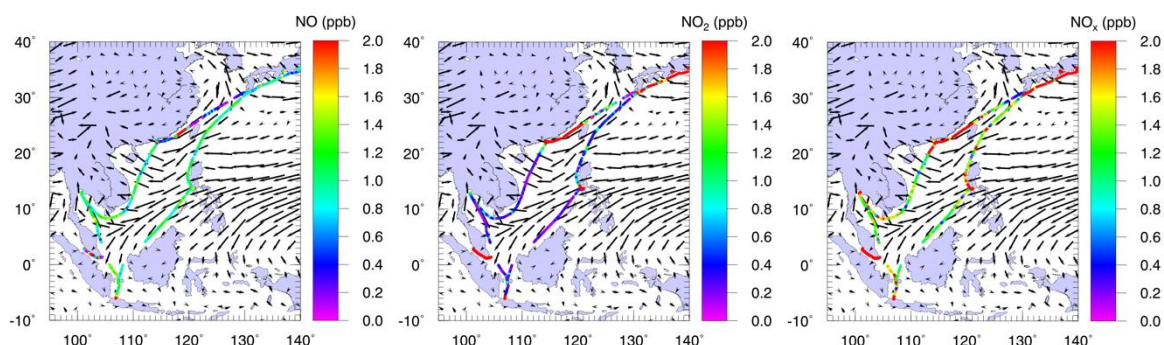


図 14. 航海番号 FW269 で船舶に搭載した CAPS で観測した NO(左)、NO₂(中央) および NO_x(右)の値と地表面付近の風向

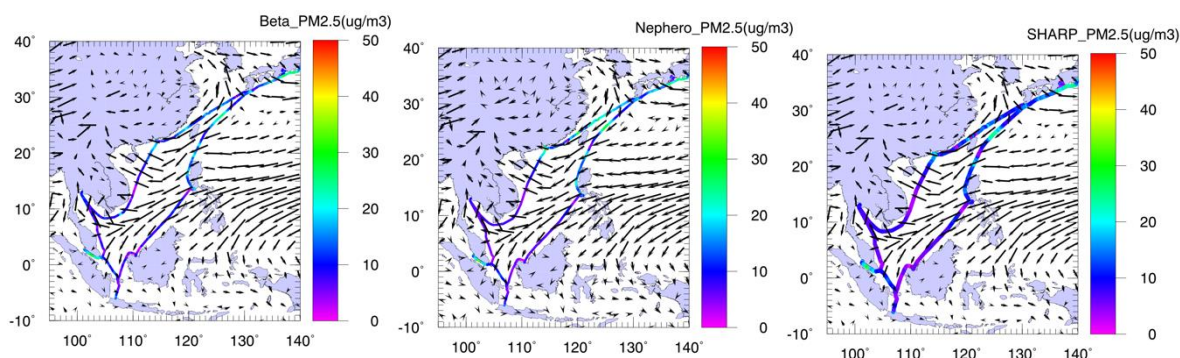


図 15. 航海番号 FW269 で船舶に搭載した SHARP で観測したベータ線吸収法(左)、光散乱法(中央)およびベータ線吸収法と光散乱法の結果をもとに算出されるハイブリッド法 (SHARP) の値(右) と地表面付近の風向

び中国沿岸部)のみがそのエアマスの影響下となっている。この一方で、南シナ海の全域がフィリピンを通過して流れ込む太平洋からの東風エアマスの影響下となっている。

NO_xは大気中寿命の短さを反映して、観測された分布が場所に依存して大きな濃度差を示していることが認められる。例えば、日本沿岸、中国南東および南部の沿岸部そしてフィリピンの西岸部などでは高濃度(50 ppb程度)を示している。これらの地点では風上に当たる陸域に都市部が存在しており、人間活動に起因する燃焼発生源からの放出が原因であると考えられる。また、マラッカ海峡においても高濃度を示していることがわかる。これは、海峡内に停泊あるいは通過している船舶の数が常に多いこと、海峡の両岸沿岸部、特にマレー半島側に工業施設が多数存在することから、これらの燃焼発生源の影響を強く受けたものと考えられる。このように、窒素酸化物の分布は風上にある燃焼発生源の影響を良く捉えることができていると考えられる。

一方で、燃焼発生源の風下となっていない航路上の地点においても比較的高い濃度がNO_xや

NOで観測されており、その濃度は約1 ppb程度を下限として非常に高い濃度分布を示している。これらとは対照的に、NO₂の濃度は高くても200 ppt程度であり、NOとNO₂の濃度には大きな濃度差が見られ、NOの大気中寿命は非常に短いことを考慮すると、CAPSによるNOの測定結果については、今後、複数の異なる計測原理を持つ計測機器との比較を通じてその妥当性を評価する必要があると考えられる。特に、海洋性大気中では、観測される窒素酸化物の濃度が都市大気で観測される濃度よりもはるかに低いいため、今後の窒素酸化物の高精度・高確度観測のための課題として本船舶における並行計測の実施等が挙げられる。

図16に、2020年1月以降におけるSO₂の濃度分布を示す。2020年1月に船舶の燃料油に含まれる硫黄分濃度を、従来の3.5%以下から0.5%以下にする国際的な規制強化（SO_x規制）が開始された。これは、2016年10月に国際海事機関（IMO）の海洋環境保護委員会で決定したもので、硫黄酸化物（SO_x）や粒子状物質（PM）による人の健康や環境への悪影響をより低減してゆくために、世界一律で実施されたものである。これに伴い、大型船等で主力燃料とされてきたC重油（硫黄分を多く含む）は、一般海域においてそのままでは使用できず、違反した場合には船舶の港湾抑留や罰金などが科せられる。本規制への対応として、（規制適合となる）低硫黄燃料の使用、排ガス脱硫装置（スクラバー）の設置、（液化天然ガスLNG等）硫黄分を含まない代替燃料の使用が選択肢としてあり得るが、スクラバー設置は設置や維持にかかる費用負担が大きく、LNG使用は改造・新造にかかる作業的制約があり、対応は一部のタンカーやクルーズ船に限られ、商船はそのほとんどが規制適合燃料の使用を選択したと考えられている。

こうした状況を踏まえて、2020年1月以降のSO₂濃度分布の比較を見ると、概して外洋において濃度が低いように見受けられる。一方、港湾に近い地点においてはピーク状の濃度増大も見られており、また、船舶の交通量が多いマラッカ海峡・ジャワ海や西部太平洋周縁域においては月平均濃度が高い月があることから、今後も注視が必要であろう。

（6）オゾンの長期変化および季節変化の変調

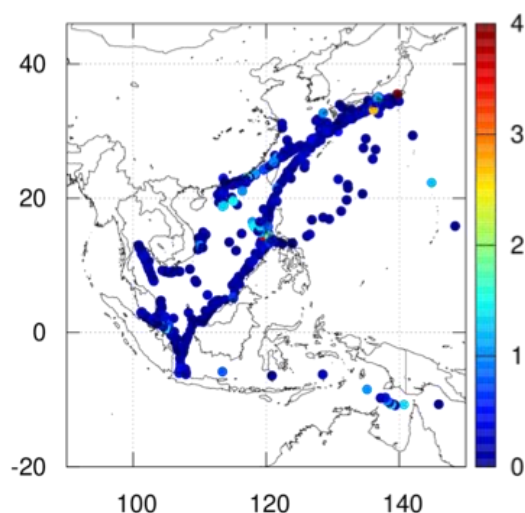


図 16. 2020 年 1 月以降における SO₂ の濃度分布

図17に、2006年から2021年の16年間におけるオゾンの季節変化に関して濃度レベル、振幅、位相に変化がないかを調べた。月内のデータのばらつきを考慮すると、統計的に結論づけるのは早計であるが、2つの特徴的な変化が見られた。一つ目の特徴は、北緯10度から40度の緯度帯において、12月から4月の冬季にオゾン濃度が増加していたことである。これは、冬季でも比較的日射量が多く、オゾンの光化学的生成が起こっていると思われる低緯度

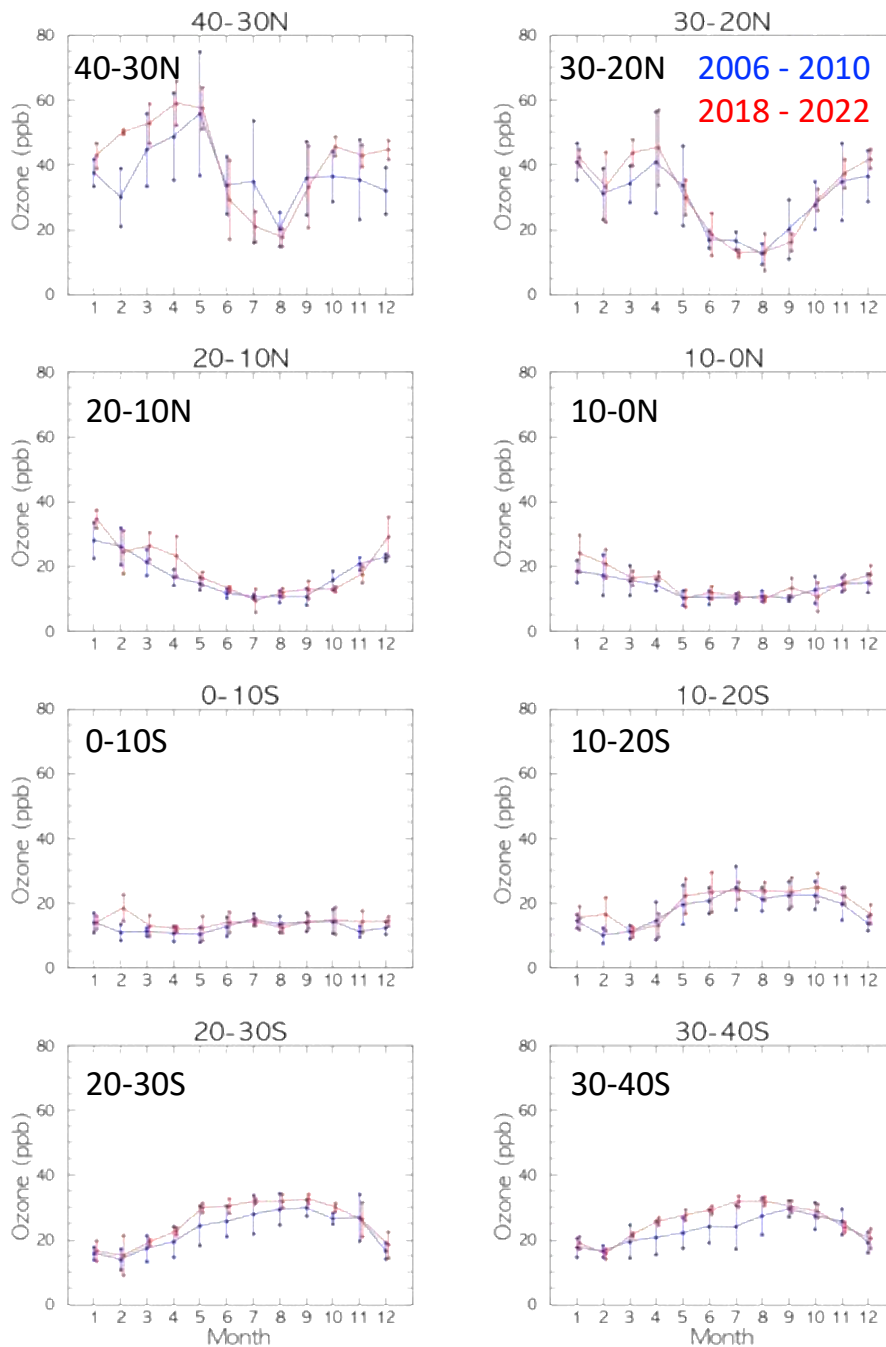


図 17. 2006-2010 年の期間と 2018-2022 年の期間における、日本—オセアニア航路で得られたオゾン濃度の季節変化（丸は月平均値、上下の誤差棒は月内のばらつきを示す。）

オゾン

一酸化炭素

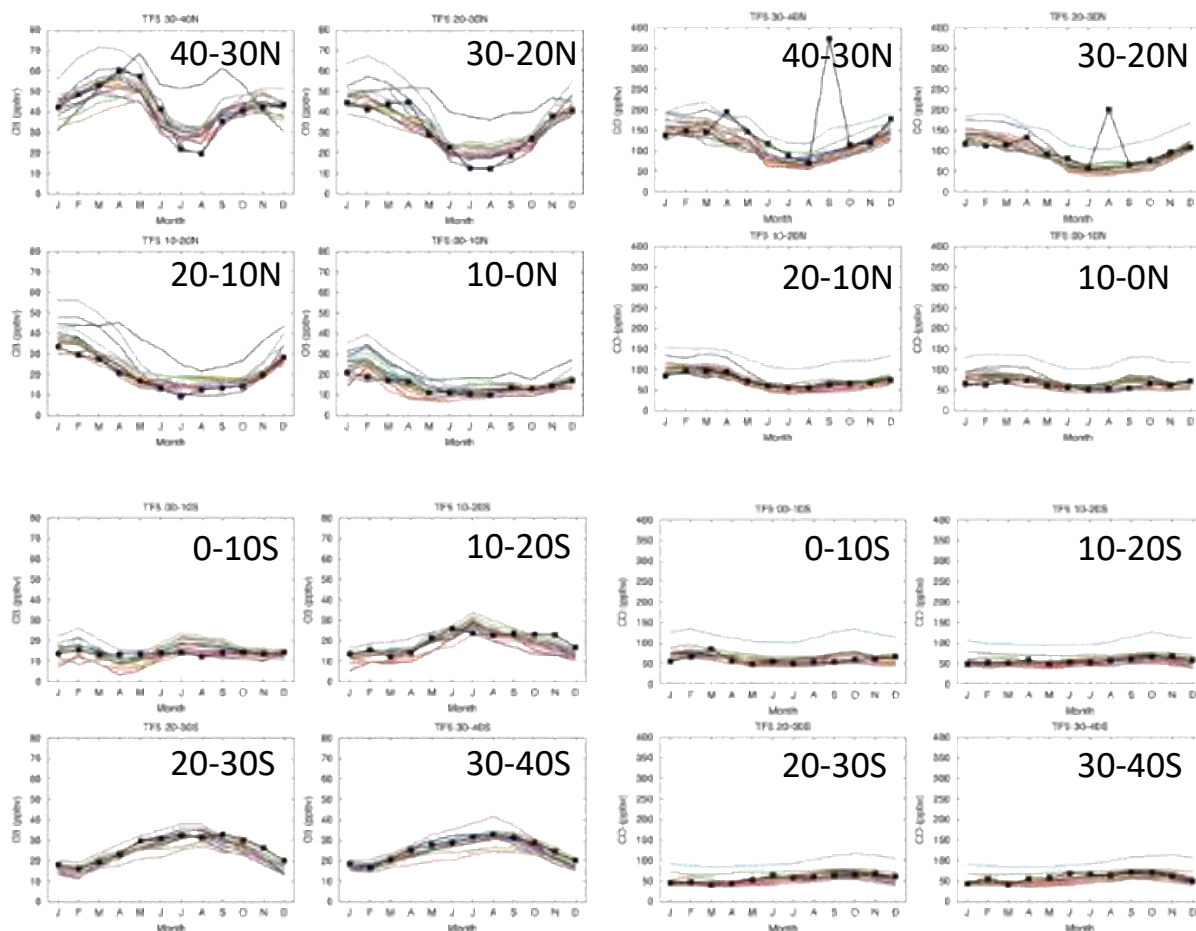


図 18. オセアニア航路におけるオゾンおよび酸化炭素濃度の季節変化の観測 (■)・モデル (実線) 比較

帯と、この20年間に於けるアジアの経済成長によるオゾン前駆物質の排出量増加を考えると理解しやすい。もう一つの特徴は、南半球の、南緯20度から40度までの緯度帯において、3月から7月にオゾン濃度が増加していたことである。この原因については、現在のところ不明である（オーストラリアの森林火災も9月以降の発生が多い）が、オゾンの生成には前駆物質の放出やオゾンの光化学（生成・消失）だけではなく大気の循環や気象場とも関係するため、その支配要因の解明は、今後、化学輸送モデルを用いた解析を進める。

(7) 化学輸送モデルとの比較・検証

今後、化学輸送モデルを用いた解析を進めるためにも、モデルの評価は必要である。そこで、得られた観測結果を全球・領域化学輸送モデルと比較した。

図18、19は、オセアニア航路と東南アジア航路における各緯度帯別の、オゾンとCOの季節変化について観測とモデルを比較したものである。TF HTAP Phase 2（国連・半球規模大気汚染タスクフォース）の活動における全球化学輸送モデルの結果を本観測と比較すると、オ

オゾン

一酸化炭素

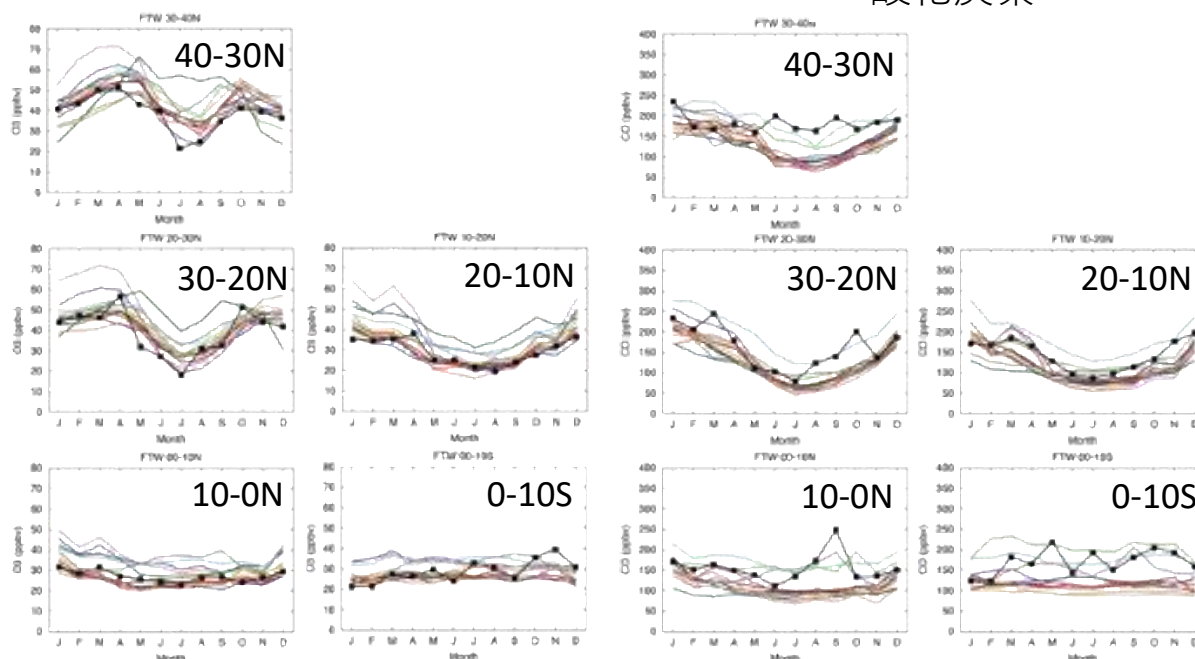


図 19. 東南アジア航路におけるオゾンおよび酸化炭素濃度の季節変化の観測 (■)・モデル (実線) 比較

セアニア航路は南北両半球とも良い一致を示し、清浄な海洋大気での再現性は良かった。特に、南半球のオゾンは、観測とモデルの一致がよく、外れるモデルも非常に少ない。一方、北半球では、季節変化の形を再現できなかったモデルや極大値を大幅に過大評価・過小評価するモデルも存在していることは注目に値する。夏季のオゾン過大評価傾向は、日本の地上観測サイトとの比較でも見られており、アジアの中緯度帯に共通する問題であることがわかった。COについては、オゾン同様、南北両半球とも概して良い一致を示し、ほとんどのモデルが季節変化の形や極大・極小をよく再現できていた。

東南アジア航路のデータについても、モデルの再現性は悪くはなく、オゾンは濃度レベルや季節変化の形を概ね再現していた。しかしながら、COは低緯度帯でモデルが過小評価傾向にあり、これは排出量の不確実性を示している可能性が高い。特に、COの過小傾向は、排出源に近い東南アジア航路でより顕著であり、排出インベントリの過小評価が示唆された。

図20は東南アジア航路における各緯度帯別の、PM_{2.5}とブラックカーボンの季節変化について観測とモデルを比較したものである。モデルは、全球化学輸送モデルGEOS-Chem v9-02と領域化学輸送モデルWRFv3.3.1/CMAQv4.7.1によって計算された各成分の季節変化を緯度帯別に比較した。GEOS-ChemとCMAQの水平解像度はそれぞれ $2^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ 、 $60 \text{ km} \times 60 \text{ km}$ であり、CMAQのモデル領域は東アジア・東南アジア域を対象としている。排出インベントリは、EDGARv3 (GEOS-Chem)、REASv2.1 (CMAQ) をそれぞれ使用している。GEOS-ChemとCMAQで差異が見られるものの、東南アジア航路の中緯度帯ではにおけるPM_{2.5}濃度とBC濃度レベルの再現性は良い。一方で、北緯20度以南では、モデルは観測を過小評価している様子が明確に認められ、排出インベントリの過小評価が示唆されるものの、降水の多い熱帯・亜熱帯でも

あることから、輸送過程の再現性も含めて、今後の課題であると考えられる。

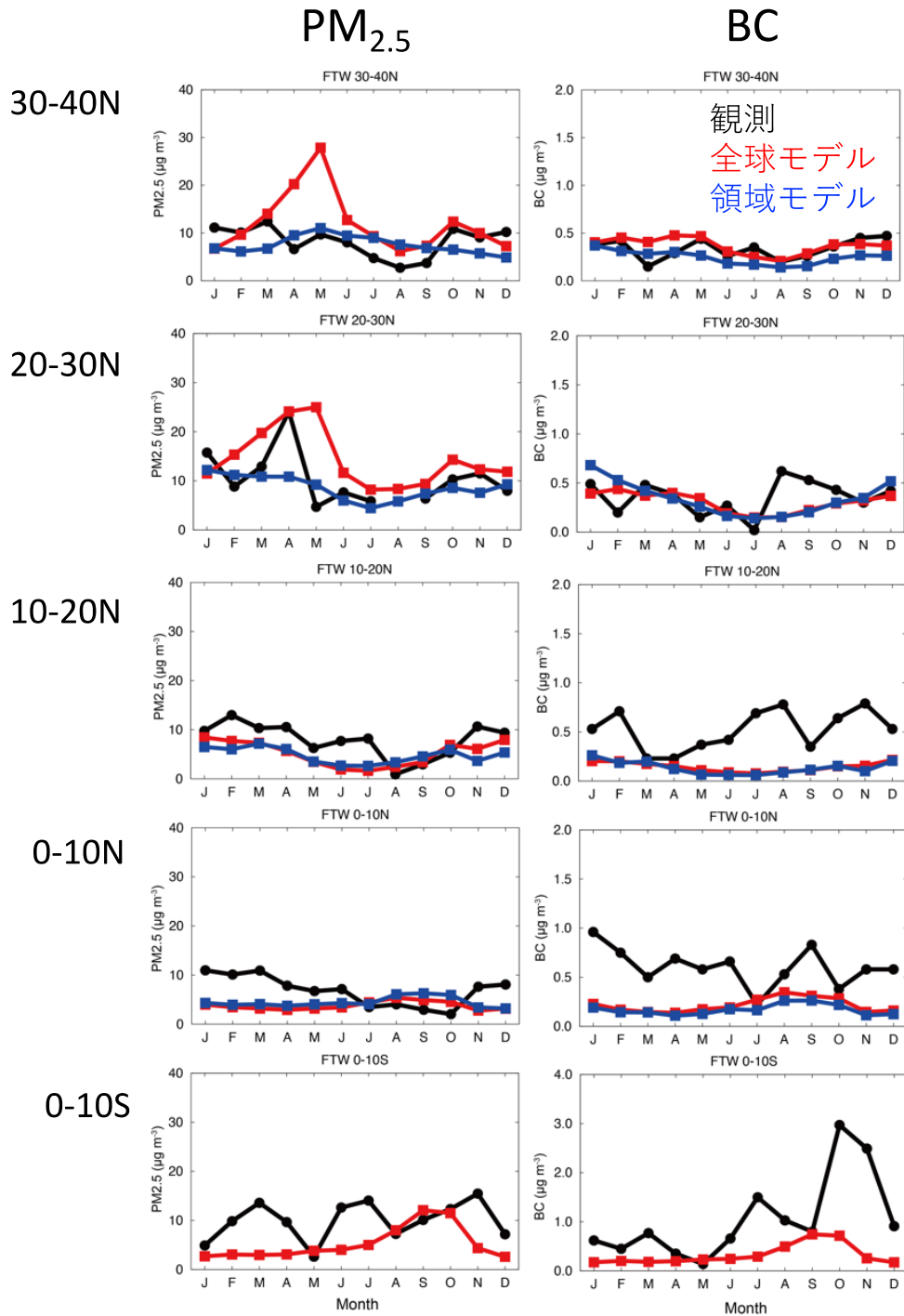


図 20. 東南アジア航路における PM_{2.5} およびブラックカーボン濃度の季節変化の観測 (■)・モデル (実線) 比較

(8) 栄養塩およびクロロフィルの分布と特徴

貨物船舶 2 隻による海洋観測においては栄養塩とクロロフィル試料について本課題を開始

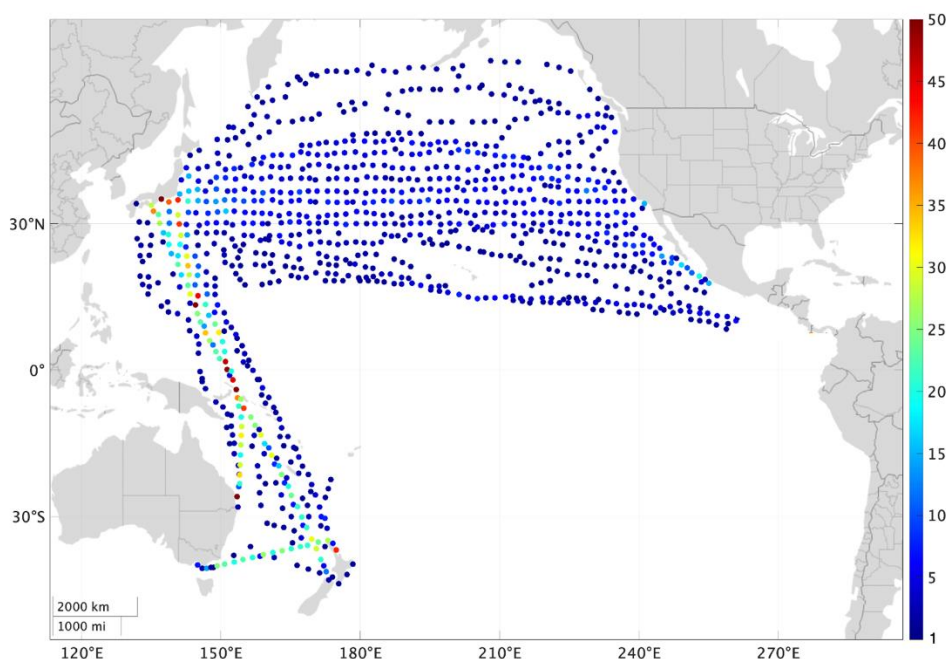


図 21. 各船舶で得られた栄養塩濃度・クロロフィル濃度試料のサンプリング頻度分布

した2018年度からの課題期間中に5500点以上のデータを取得した。各船舶によるサンプリング頻度分布を図21に示す。それぞれの航路において7月から9月にかけてのクロロフィルa濃度分布と硝酸塩濃度の分布を図22(a-d)に示す。New Century 2号による経度分布(図22a, b)からは硝酸塩濃度やクロロフィル濃度の局所的な極大域が年によって異なっているものの、全体で見ると低濃度であることを示している。一方、Trans Future 5号の航海(名古屋—メルボルン—ネルソン)における観測結果(図22c, d)から、いずれの年でもクロロフィル濃度が北緯30度付近から南緯25度付近までは(赤道域の一部海域を除き) 0.2 mg m^{-3} 以下と低濃度の状態が続き、そこから高緯度に向かって増加傾向を示している。また、硝酸塩濃度もクロロフィル濃度と同様の分布パターンを示しており、南半球の高緯度側で高い濃度を検出した。これは栄養塩が豊富な南大洋起源の水塊の流入により、植物プランクトンの光合成活動が活発化したことを示している。

次に、観測海域の中でサンプリング頻度が高かった日本近海(北緯27度、東経140度)付近での硝酸塩濃度とクロロフィル濃度変化を図23(a, b)に、両者の関係を図23(c)に示す。当該海域では硝酸塩は枯渇する一方で、クロロフィル濃度は冬季から春季にかけて高く、夏季から秋季にかけて低くなる変化を示している。年々の変化については、2020年以降はそれ以前と比べて硝酸塩濃度もクロロフィル濃度も高い傾向がみられる。一方、硝酸塩濃度とクロロフィル濃度の関係は、硝酸塩濃度が高い際にクロロフィル濃度が高くなる傾向が見られるものの、硝酸塩濃度が低くてもある程度クロロフィル濃度が上昇する様子も確認できる。Itahashi et al. (2016)によると、中国起源の窒素酸化物が中国東岸域から日本近海域に輸送される際に海塩粒子が窒素酸化物を取り込むことで当該域での窒素沈着を促進している。また、Taketani et al. (2018)は地球シミュレーターによるシミュレーション結果から北太平洋西部海域(北緯20度から30度)において大気から海洋への人為起源窒素の沈着により

生物生産が活発になることを示している。これらのことから、当該海域では大気沈着等により植物プランクトンが効率よく光合成を行うことでクロロフィル濃度が上昇した結果を観測

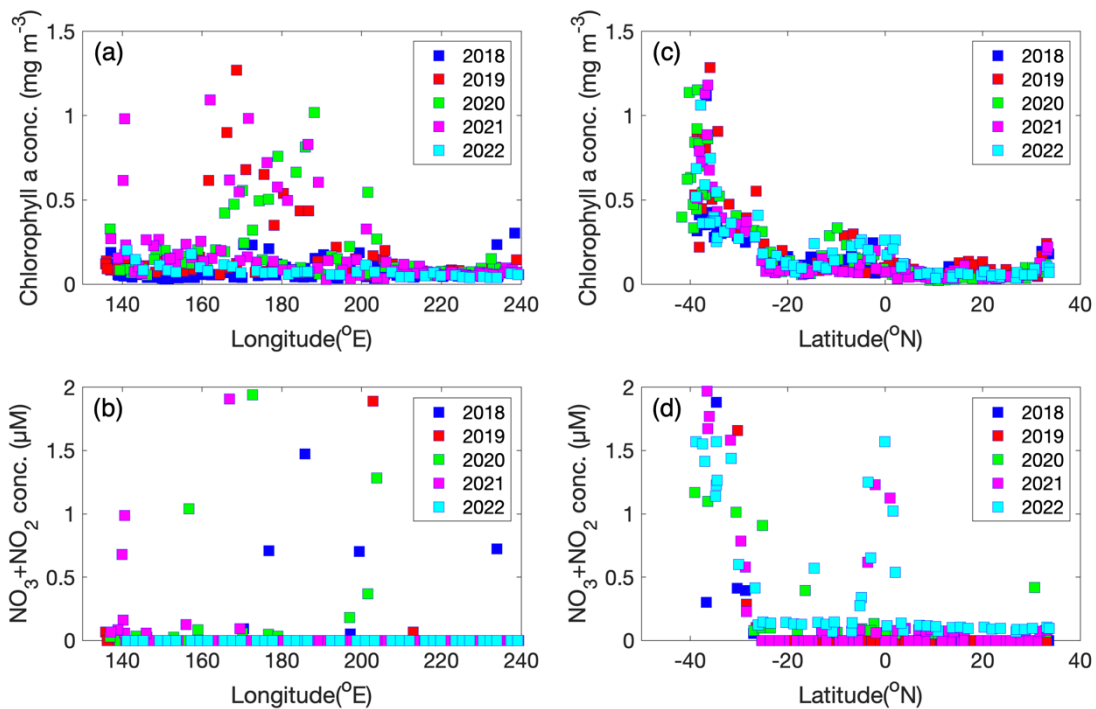


図 22. New Century 2 号の航路上（田原—ロサンゼルス）と Trans Future 5 号の航路上（名古屋—メルボルン—ネルソン）で観測されたクロロフィル濃度 (a, c) と硝酸塩（と亜硝酸塩）濃度 (b, d) の経度 (a, d)・緯度 (c, d) の空間分布。青が 2018 年、赤が 2019 年、緑が 2020 年、赤紫が 2021 年の結果を示す。

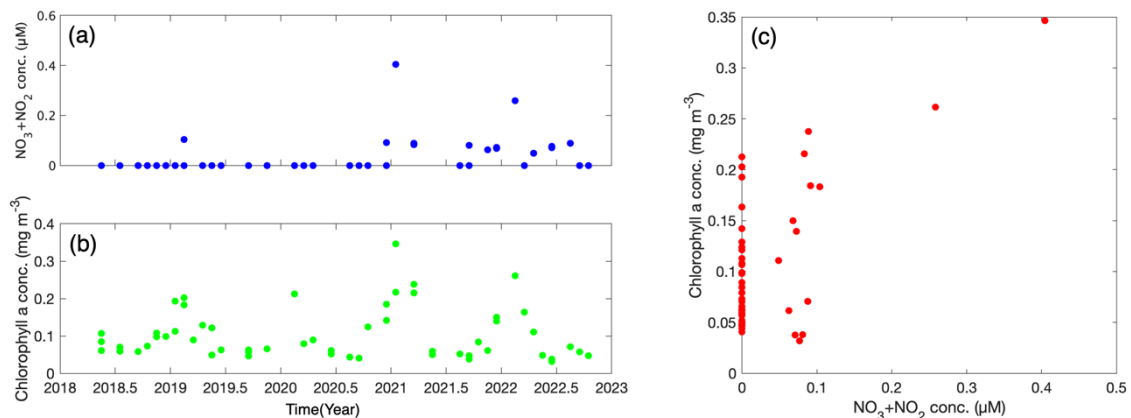


図 23. 北緯 27 度、東経 140 度付近で観測された硝酸塩（と亜硝酸塩）濃度 (a) とクロロフィル濃度 (b) の時間変化、および当該海域における両者の関係 (c)

で捉えた可能性が考えられる。

5. 成果

本研究では、南北太平洋および東南アジアの海洋上（外洋、沿岸）における大気質を中心に、海洋表層における栄養塩・クロロフィルをモニタリング観測した。このようにして連続観測されたオゾンや一酸化炭素、エアロゾルといった短寿命大気汚染成分、海洋表層のクロロフィルと硝酸塩・亜硝酸塩について緯度・経度分布や季節性が明らかになった。地域代表性のあるデータが確実に取得されていることが示され、観測データの空白域となっている当該地域を埋めることができた。今後、観測データをデータベースとして整備して国内および国際コミュニティに提供することで、全世界の研究者に利用され、本課題および日本の国際貢献が見える形になる予定である。こうして公開されたデータは、大気質や気候変動のモデル相互比較に用いられる化学輸送モデルや化学気候モデルの評価・検証に用いられ、こうしたモデルを用いた気候変動予測の高精度化に貢献できると期待される。

6. 引用文献

永島達也, 高見昭憲, 菅田誠治, 清水英幸, 河野なつ美, 茶谷聡, 青野光子, KIM Satbyul, 向井人史, 谷本浩志, 寺尾有希夫, 奈良英樹, 池田恒平, 西橋政秀, 野村渉平, 橋本茂, 気候変動が日本の大気汚染にもたらす影響とその健康・植生へのインパクト評価, 第34回全国環境研究所交流シンポジウム, 2019.

Itahashi, S., H. Hayami, I. Uno, X. Pan, M. Uematsu (2016), Importance of coarse-mode nitrate produced via seasalt as atmospheric input to East Asian oceans, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 5483-5491, <https://doi.org/10.1002/2016GL068722>

Taketani, F., Aita, M. N., Yamaji, K., Sekiya, T., Ikeda, K., Sasaoka, K., Hashioka, T., Honda, M., Matsumoto, K., Kanaya, Y. (2018). Seasonal Response of North Western Pacific Marine Ecosystems to Deposition of Atmospheric Inorganic Nitrogen Compounds from East Asia. *Scientific Reports*, 8(1), 9324. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-27523-w>

【研究成果の発表状況】（課題開始年度—令和4年度）

（1）誌上発表（学術誌）

1. Sakata, K., M. Kurisu, H. Tanimoto, A. Sakaguchi, M. Uematsu, C. Miyamoto, Y. Takahashi, Custom-made PTFE filters for ultra-clean size-fractionated aerosol sampling for trace metals, *Marine Chem.*, 206, 100-108, 2018.
2. Müller, A., Tanimoto, H., Sugita, T., Machida, T., Nakaoka, S., Patra, P. K., Laughner, J., and Crisp, D.: New approach to evaluate satellite-derived XCO₂ over oceans by integrating ship and aircraft observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 8255-8271, <https://doi.org/10.5194/acp-21-8255-2021>, 2021.
3. Niwa, Y., Sawa, Y., Nara, H., Machida, T., Matsueda, H., Umezawa, T., Ito, A., Nakaoka, S.-I., Tanimoto, H., and Tohjima, Y.: Estimation of fire-induced

carbon emissions from Equatorial Asia in 2015 using in situ aircraft and ship observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 9455–9473, <https://doi.org/10.5194/acp-21-9455-2021>, 2021.

4. Butz, A., Hanft, V., Kleinschek, R., Frey, M.M., Mueller, A., Knapp, M., Morino, I., Agusti-Panareda, A., Hase, F., Landgraf, J., Vardag, S. and Tanimoto, H., Versatile and Targeted Validation of Space-Borne XCO₂, XCH₄ and XCO Observations by Mobile Ground-Based Direct-Sun Spectrometers. *Front. Remote Sens.* 2:775805. doi: 10.3389/frsen.2021.775805 (2022).
5. 佐藤啓市, 池田恒平, 寺尾有希夫, 山下陽介, 町田敏暢, 谷本浩志, 地球環境モニタリング等の活動30年の歴史と将来展望 (9章 将来の地球観測への期待), *地球環境*, 26(1,2), 2022.
6. Ikeda, K., H. Tanimoto, Y. Kanaya, F. Taketani, Evaluation of anthropogenic emissions of black carbon from East Asia in six inventories: Constraints from model simulations and surface observations on Fukue Island, Japan., *Environ. Sci.: Atmos.*, 10.1039/D1EA00051A., 2022.

(2) 口頭発表

1. Tanimoto, H., H. Nara, S. Okamoto, K. Sakata, K. Ikeda, Y. Tohjima, T. Machida, H. Mukai, Y. Nojiri, Pan-Pacific observations of short-lived climate pollutants in marine surface air by voluntary cargoships, iCACGP-IGAC 2018 国際会議, 高松, 2018.
2. Nara H., H. Tanimoto, Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, T. Machida, An 8-year record of atmospheric trace gases and aerosols in Southeast Asia based on shipboard observation, iCACGP-IGAC 2018 国際会議, 高松, 2018.
3. Tanimoto, H., Lawrence, M. G., Melamed, M. L., 大気化学研究と国際連携のこれまで、現在、そしてこれから, 日本地球惑星科学連合 2018年大会, 幕張, 2018.
4. Tanimoto, H., 地球大気化学国際協同研究計画 (IGAC) : 大気化学研究と国際連携, 日本地球惑星科学連合 2018年大会, 幕張, 2018.
5. Saigusa N., Tanimoto H. (2019) Carbon cycle and satellite data contribution to the global stocktake. The 15th Meeting of the Atmospheric Composition Virtual Constellation
6. Tanimoto H., Ikeda K., Okamoto S. (2019) Issues and challenges in modeling ozone and aerosols in Asia: A few perspectives from recent studies. The 27th IUGG General Assembly, Abstracts
7. Niwa Y., Sawa Y., Nara H., Machida T., Matsueda H., Umezawa T., Ito A., Nakaoka S., Tanimoto H. (2019) Fire-induced CO₂ emission in Equatorial Asia during the 2015 drought estimated by aircraft and ship observations. AGU Fall Meeting 2019
8. 永島達也, 高見昭憲, 菅田誠治, 清水厚, 河野なつ美, 茶谷聡, 青野光子, KIM

- Satbyul, 向井人史, 谷本浩志, 寺尾有希夫, 奈良英樹, 池田恒平, 西橋政秀, 野村渉平, 橋本茂 (2019) 気候変動が日本の大気汚染にもたらす影響とその健康・植生へのインパクト評価. 第60回大気環境学会年会
9. Müller, A., Tanimoto, H., Nakaoka, S., Machida, T., Sugita, T., Patra, P., Laughner, J., New approach to evaluate satellite CO₂ observations by combined ship and aircraft measurements over the ocean, IWGGMS-16, online hosted by EUMETSAT/Darmstadt, 2-5 June 2020.
 10. 梅澤拓, 遠嶋康徳, 野村渉平, 西橋政秀, 寺尾有希夫, 向井人史, 中岡慎一郎, 笹川基樹, 町田敏暢, MUELLER Astrid, 奈良英樹, 杉田考史, 谷本浩志, 丹羽洋介, 伊藤昭彦, 大山博史, 森野勇, 佐伯田鶴, 野田響, 齊藤誠, 松永恒雄 (2021) 全球メタン濃度の2020年の急増加の原因を探る-NIES観測ネットワークによるメタン濃度の時空間変動の解析-. 第26回大気化学討論会
 11. Mueller A., Tanimoto H., Sugita T., Machida T., Nakaoka S., Patra P.K., Laughner J., Crisp D. (2021) How well can satellite derived XCO₂ determine seasonal and interannual changes of CO₂ over oceans? Evaluation by integrated ship and aircraft observations. 16th IGAC Science Conference
 12. Mueller A. et al., Constraining the accuracy of satellite derived XCO₂ and XCH₄ trends and variations over oceans – two approaches using commercial ship and aircrafts, IGAC Science Conference, Manchester, September 2022.
 13. Tanimoto, H., A. Mueller, T. Fujinawa, M. Frey, H. Nara, S. Nakaoka, T. Sugita, I. Morino, T. Machida, Y. Tohjima, S. Inomata, A. Kuze, Y. Kanaya, K. Ikeda, Y. Yamashita, T. Sato, Y. Kasai, T. Matsunaga, N. Saigusa, Ship, aircraft and satellite observations of greenhouse gases and air pollutants in the Monsoon Asian region, AOGS2021 Virtual 18th Annual Meeting, 1-6 August, 2021. (invited)
 14. Tanimoto, H., The GOSAT series satellites: Present and Future, TCCON/COCCON/NDACC 2022 Joint Meeting, online, 2022. (invited)
 15. Tanimoto, H. et al. Challenges for the GOSAT-GW satellite mission to better quantify anthropogenic emissions of greenhouse gases and air pollutants for climate policy, IGAC Science Conference, Manchester, September 2022. (invited)
 16. Niwa Y., Tohjima Y., Ishii M., Ito A., YAMADA K., Terao Y., Machida T., Umezawa T., Nakaoka S., Tanimoto H., Iida Y., Tsujino H., Kosugi N., Maki T., Ishijima K., Tsuboi K., Fujita R. (2023) Multiple observation platforms and inverse/transport simulations for monitoring GHGs around Asia. WMO International Greenhouse Gas Monitoring Symposium, Geneva, Jan 2023 (基調講演)

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

谷本浩志, 2018年度NIES賞, 国立環境研究所.

谷本浩志, IGAC Co-Chair 感謝状「SSC メンバー及び Co-Chair として9年間にわたる IGAC への献身的なコミュニティサービスに対して」2021年9月17日

Astrid Mueller, 2021 16th IGAC Science Conference, Early Career Poster Presentation Award(優秀賞) 2021年9月30日

藤縄環, 2021 16th IGAC Science Conference, Early Career Poster Presentation - Honorary Mention (特別賞) 2021年9月30日

(5) 一般への公表・報道等

2021年6月25日 筑波研究学園都市記者会、環境省記者クラブ、環境記者会、文部科学記者会、科学記者会同時配布、谷本浩志、Astrid Müller、町田敏暢、杉田考史、中岡慎一郎、Prabir K. Patra「貨物船と旅客機の民間協力観測によりCO₂の人工衛星観測データを評価する新手法を開発」、国立環境研究所プレスリリース：
<http://www.nies.go.jp/whatsnew/20210625/20210625.html>

2021年7月19日 日経産業新聞、第7面に「CO₂観測データの精度向上」記事掲載。

(6) 研究分野における成果の発展・牽引

- 1) Future Earth傘下の国際研究プロジェクトであるIGAC (International Global Atmospheric Chemistry) project (地球大気化学国際協同研究計画)において、本課題代表の谷本が共同代表を2020年まで務め、本研究の内容を世界第一線の大気化学者と共有するとともに、定期貨物船を用いた大気質のモニタリングの重要性について世界的議論を主導している。
- 2) Future Earth傘下の国際研究プロジェクトであるIGAC (International Global Atmospheric Chemistry) project (地球大気化学国際協同研究計画)の、アジアにおける活動であるIGAC - MANGO (Monsoon Asia and Oceania Networking Group) (地球大気化学国際協同研究計画 モンスーンアジア・オセアニアネットワーキンググループ)において、本課題代表の谷本が代表を務めており、本研究の内容をアジア・オセアニア地域の第一線の大気化学者と共有するとともに、定期的な会合において、定期貨物船を用いた大気質のモニタリングをアジア太平洋地域で行う重要性について議論を主導している。
- 3) IGACプロジェクトの世界大会であるiCAGGP-IGAC 2018 (地球大気化学国際会議)を、本課題代表の谷本が代表として24年ぶりに日本で開催し、世界46カ国から730名と過去最高の人数を集め、本研究の内容を世界第一線の大気化学者と共有するとともに、定期貨物船を用いた大気質のモニタリングの重要性についてWMOなどと議論を行っ

た。

- 4) 本課題代表の谷本が共同主催者として、IGAC - Atmospheric Composition and the Asian Summer Monsoon (ACAM) workshop, Kuala Lumpur, Malaysia, 2019. (地球大気化学国際協同研究計画 アジアモンスーンと大気組成ワークショップ) を2019年9月に開催し、本研究の内容をアジア・オセアニア地域の第一線の大気化学者と共有するとともに、定期貨物船を用いた大気質のモニタリングをアジア太平洋地域で行う重要性について議論を主導した。

(7) 政策への寄与・貢献

- (1) 「環境研究・環境技術開発の推進戦略」(令和元年5月21日環境大臣決定)が「必要な研究」と定める「国際的な環境協力等にも資する地球温暖化現象の解明、予測、対策評価に焦点を当てた」研究である。
- (2) パリ協定の実施状況を確認し、目標を見直すため、2023年の第1回以降、5年ごとに実施されるグローバルストックテイクにおいて、各国政府が最良の科学的根拠に基づいて、各国・各地域・全球の温室効果ガス排出量と、各国の削減目標に向けた進捗状況を報告する義務を持っている。2023年の第一回グローバルストックテイクに貢献するため、国立環境研究所はGHG収支報告書2021年版「Bulletin of Multi-scale Estimation of Greenhouse Gas Budgets」を作成し提出したが、その改訂版で使われた数値モデルによる算出には、本課題の観測データが活用された。
- (3) 太平洋の洋上におけるオゾンおよびエアロゾルの観測データの空白域を無くすことで、グローバルに輸送されるとともに、年々濃度が上昇しているこれら大気汚染物質のモデルによる再現性や将来予測の不確定性を低減させ、気候変動予測、とりわけ、化学反応が関わる物質に関するモデル予測の確度を上げ、地球規模の環境変動への対策の立案に貢献することができる。
- (4) 「気候変動の影響への適応計画」、特に2020年前後における「次期の気候変動の影響評価」に向けた科学的知見が提供される。特にアジアでは、影響が顕在化しつつあると思われる事象も多く、温暖化が大気質に及ぼす影響の先駆けとなる知見を得ることができる可能性がある。
- (5) 「今後10年の我が国の地球観測の実施方針のフォローアップ報告書」(令和2年8月28日地球観測推進部会)においても、気候変動等の課題への政策判断を国内外で進めていくために地球観測データの必要性が指摘されているが、本課題で行う民間船舶を活用した観測は「定期的・長期継続性の観点から極めて優れた観測手法として評価されている」と評価を受けている。