

分光学的手法を用いた観測による アジア大気汚染の統合的理解の推進

—2019年度堀内賞受賞記念講演—

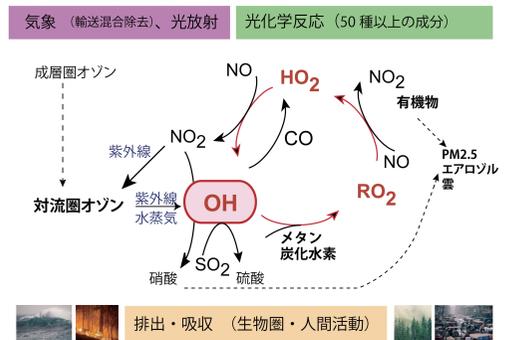
金 谷 有 剛*

1. はじめに

このたびは榮譽ある「堀内賞」をいただき、ありがとうございます。対象となりました「分光学的手法を用いた観測によるアジア大気汚染の統合的理解の推進」は、私が学位を取得した2000年の前後から約20年にわたり手がけてきた包括的なテーマです。その間、この広いテーマの中で研究トピックスを大きく展開しながら歩んでまいりました。本稿ではその一端について、受賞記念講演でお話した内容を中心に、できるだけ解説や周辺事情も交えながら記します。

具体的な話に入る前に、気象学の隣接境界分野としての、対流圏大気化学の世界について簡潔に紹介します。そのエッセンスは、第1図に示すように、輸送・混合・除去などの気象のプロセスや光放射、あるいは地表面での排出・吸収の影響を受けながら、大気中で起こる物質群の状態変化やその収支を、光化学反応等を含む形で明らかにすることです（たとえば Finlayson-Pitts and Pitts 1999 ; 秋元 2014など）。化学反応の部分では、類型化しても50種以上の化学種が起こす200種以上の反応を把握する必要があり複雑ですが、その「心臓部」(図中、赤)を構成するのはOHラジカルとその反応です（たとえば Levy 1971 ; Stone *et al.* 2012など）。OHの反応性は高く、消失と生成が1秒以下の時間で起こり、夏季日中の地表付近の大気でも、定常状態での数密度が $10^6 \sim 10^7$ 個/cm³ (体積混合比で

は0.04~0.4 ppt (pptは1兆分の1の単位))程度と非常に低いものと考えられています。このような反応系の中で、OHは、窒素酸化物(NO_x)や揮発性有機化合物(VOC)を含む連鎖反応サイクルを引き起こしオゾン生成する、メタン等のあらゆる微量成分の除去過程を提供する、PM_{2.5}の二次的な生成にもかかわる、といった主要な役割を担うと考えられています。こうした大気化学研究の世界での究極の目標は、境界条件が与えられれば、過程を表現したモデルによって物質群の濃度の将来時間発展を予測できる、ということです。とくにアジアの経済発展などによって排出等の境界条件が大きく変わる中でも十分な予測が可能になるよう、モデルの完成度を高めること、そして気候変動や大気汚染へのインパクトを正しく評価できるようにすることが重要です。しかしながら、反応を含む大気化学理論の完成度は私見ではまだ7割方であり、引き続き検証が必要です。近年、大気汚染物質であると同



* 海洋研究開発機構地球環境部門
地球表層システム研究センター。
yugo@jamstec.go.jp

—2020年2月26日受領—
—2020年4月30日受理—

◎究極目標:境界条件から過程モデルにより将来を予測できる

第1図 対流圏大気化学研究の構成要素と相互関係の概念図。OHラジカルの化学反応は大気化学反応の心臓部となる。

時に地球温暖化にも影響するオゾンやブラックカーボン (BC), それにメタン等を加えた物質群を SLCFs (Short-Lived Climate Forcers, 短寿命気候強制因子) と呼ぶようになり, 2021年に公表される IPCC (気候変動に関する政府間パネル) 第6次評価報告書でも第一作業部会の独立チャプターとして取り上げられています。そのため, これらの物質の収支理解やプロセス表現の適正化にも重点がおかれています。CO₂に比べ対策効果が短期的に現れることに注目が集まるもので, その対策を最適化する意味でも重要な位置づけとなっています。

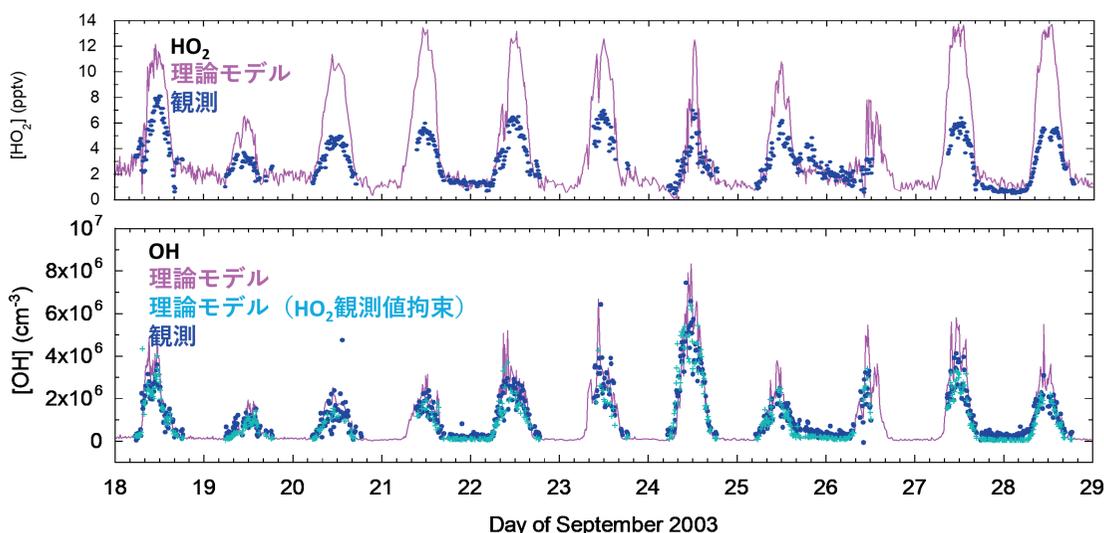
このような背景のもと, 私が分光学的な観測を駆使することなどにより精力的に進めてきた大気化学研究のうち, OH ラジカルの直接計測と収支プロセス研究 (第2節), 差分吸収分光法による対流圏 NO₂ 計測と衛星検証 (第3節), 中国・泰山での総合集中観測での農業残渣燃焼の影響解明 (第4節), 福江島での PM_{2.5} 越境大気汚染評価と政策貢献 (第5節) の4点について以降に述べます。また, 第6, 7節では研究の境界領域性と複合研究の意義, 国際性や今後の方向性についての主観を述べます。

2. OH ラジカルの直接計測と収支プロセス研究

私が取り組んだ最初の仕事は, OH ラジカル計測装置の開発と対流圏大気化学の基礎プロセスの解明です。東京大学先端科学技術研究センター・秋元研究室の学生だった時代から, 地球フロンティア研究システ

ムの研究員だった2002年にかけて, レーザー誘起蛍光法による OH ラジカルの超高感度装置をほぼゼロから開発し, 数密度での検出下限 2×10^6 個/cm³ (積分時間1分) を達成しました。最初に評価した際の検出下限値は目標よりはるかに高い 4×10^{10} 個/cm³ で, 5年超にわたる長い闘いでした。その詳細については, 2007年に頂いた日本大気化学会 (当時, 大気化学研究会) 奨励賞の受賞記事 (金谷 2008) をご参照いただければと思います。その装置は分解して4トントラックで運び, 現場でまた何日かかけて組み立てるようなものでしたが, 北海道・利尻島や東京都心に持ち出しての野外集中計測に成功しました。OH 濃度は, 直接観測とは独立して, その場の NO_x やオゾンなどの環境濃度や紫外線量と大気化学反応速度の方程式を用いた化学反応ボックスモデルによって理論的に算出することができます。この理論 OH 濃度と観測値とを比較することで, 大気化学反応理論の完全性を検証しました。その比較の結果, 有意な差を多くの観測機会で見出し (第2図), その差とさまざまな環境因子との相関関係などを調べることで, 理論に不足しているプロセスを探索しました (Kanaya *et al.* 2007a, b)。具体的には, OH ラジカルの貯留形態でありいわば兄弟にあたる HO₂ ラジカルについて, これまでの理論には含まれていなかったエアロゾル粒子の上での不均一反応や, ハロゲン類の化学反応などが重要であることを提唱しました。

OH 計測の信頼性については, ドイツ・ユーリッヒ



第2図 2003年9月, 北海道・利尻島で観測された HO₂ ラジカルおよび OH ラジカル濃度と理論モデルとの比較。

研究所での相互比較キャンペーン HO_xCOMP2005に参加して担保しました (Schlosser *et al.* 2009; Fuchs *et al.* 2010). その相互比較データが確定し、理論モデルとの比較を行っていた2011年ごろはちょうど、植物から大気へ放出される炭化水素の一種であるイソプレンが未知の化学反応を引き起こしているのではないかと世界の化学コミュニティが揺れた時期でした。具体的には、イソプレン反応の中間生成物である過酸化ラジカルが、これまでに知られていない「異性体化反応」を引き起こし、その際に OH が再生しているのではないかとこの仮説が提唱されたのです。そこで私は、相互比較のために複数の測定装置が投入され OH の「アンサンブル」観測がなされた HO_xCOMP2005を真値に迫ることのできる貴重な機会と捉え、この新過程の有無ごとにモデル理論値を計算し、観測値を基準として評価しました。その結果、この新過程を加えるとモデルが観測 OH 濃度に対し過大となり、不一致性が高まることを見出し、この仮説を反証しました (Kanaya *et al.* 2012)。その後、この異性体化過程は定性的には起こるものの、その速度は仮説が提案された当初より一桁以上遅いことがわかり、大きなインパクトはもたらされないことがわかってきました。

その後我々は、野外観測結果に基づいて提唱してきた、エアロゾル粒子上での HO₂の不均一反応による消失の可能性を追求すべく、実験室に戻り、エアロゾルフローチューブをレーザー誘起蛍光装置の前段に設置した反応実験を行いました。その結果、この過程による HO₂の消失が大気中でも無視できない速度で起こることを見出しました。不均一反応速度定数の大小は、HO₂の粒子への衝突頻度に対し不可逆的に消失する確率として取り込み係数 γ として定量化されます。私たちはまず、対流圏で普遍的に存在する硫酸アンモニウムや海洋性の塩化ナトリウム、有機物ジカルボン酸類など既知の単一組成粒子に対する取り込み係数がおよそ 0 ~ 0.2 の間の値となることを示しました (Taketani *et al.* 2008 など)。その後、実大気中に存在する混合物としてのエアロゾル粒子に対する取り込み係数を、世界に先駆けて決定しました。具体的には、後述する中国での集中観測でフィルターに捕集したエアロゾル粒子を実験室に持ち帰り、いったん水溶してから再噴霧して粒子を再生し、エアロゾルフローチューブ内で HO₂と反応させました。中国 2 地点での計 20 枚以上のフィルター試料を用いた実験の結果、HO₂の取り込み係数は平均で 0.24 という高い値となることがわかりま

した (Taketani *et al.* 2012)。単一組成の場合との比較から、主要ではない化学成分 (微量元素など) が重要な役割を果たしているのではないかと推察されましたが、この点は未だ結論に達しておらず、今後の解明が待たれます。

この HO₂不均一反応の影響については、ボックスモデルを用いた評価から、日中の HO₂自身の濃度を 4 割以上低下させ、二次的な反応を通じて OH 濃度も 2 割以上低下させうることを、また NO_x の共存下で起こる光化学的なオゾン生成速度についても 3 割以上低下させるほど大きいことを見出しました (Kanaya *et al.* 2009)。これは中国・泰山での評価ですが、後述する福江島での評価でも OH を約 1 割減少させることがわかり (Kanaya *et al.* 2016a)、影響が広域に及ぶ可能性が示唆されています。

このプロセスは一見無関係な現象を説明するメカニズムとして最近脚光を浴びています。その現象とは中国中東部広域で 2013 年ごろから見られるオゾン濃度の急増です。オゾン濃度の変動理由は、気象的な要因を除けば、光化学的生成の原料物質である NO_x や VOC の排出・濃度の変動とされるのが一般的ですが、それでは説明がつかない現象とされました。オゾン増加トレンドにはむしろ近年の PM_{2.5} 減少を裏返したような特徴が見出され、不均一反応が効いているのではないかとされたのです (Li *et al.* 2019)。具体的には、2013 年以前は大気中に豊富に存在したエアロゾル粒子表面での HO₂不均一反応によって、オゾン生成の連鎖サイクルが停止しやすい状態にあったが、その後の PM_{2.5} の急減により連鎖サイクルが停止しにくくなり、オゾンをより活発に生成するようになったのではないかと考察されています。PM_{2.5} の減少が別の大気汚染物質であるオゾンの増加をもたらしたとは皮肉ですが、多くの化学種が相互作用する大気環境研究の奥深さを認識させられる事象です。

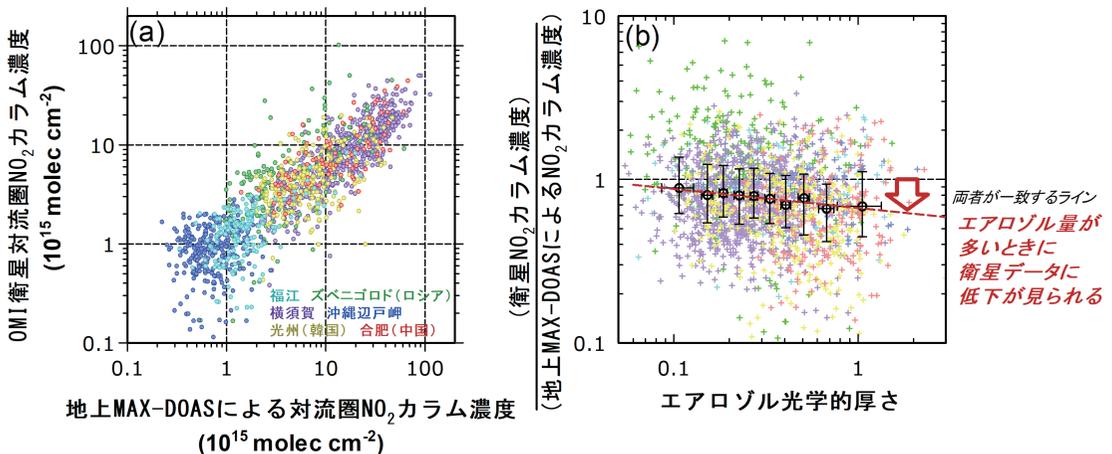
3. 差分吸収分光法による対流圏 NO₂計測と人工衛星観測の検証

2005 年頃からは、OH ラジカル計測で培った分光計測技術を差分吸収分光法に展開し、NO₂大気汚染衛星観測の高度化に関わる仕事を展開しました。この分野での衛星観測は格段に進歩し、NO_x 排出量に関する重要な情報をもたらしてきました。たとえば、中国中東部では 1996 年から 2011 年までの約 15 年で 3 倍に NO₂濃度が増加し (Hilboll *et al.* 2013)、その後急減したこと

が衛星から捉えられ、排出の評価（たとえば Miyazaki *et al.* 2017）でも用いられています。しかしながら、衛星観測から導出される濃度絶対値の信頼性が高くありませんでした。そこで、地上からの MAX-DOAS（複数仰角による太陽散乱光計測・差分吸収分光法）と呼ばれるリモートセンシング法を国内で初めて確立し、日本・中国・韓国・ロシアの地上サイトや研究船に展開して長期運用し、これまでにない大規模データを取得し、衛星データの検証に使いました (<https://ebcrpa.jamstec.go.jp/maxdoashp/indexj.html> 2020. 4. 30閲覧)。文部科学省・地球観測システム構築推進プランでの課題「地上からの分光法による対流圏中のガス・エアロゾル同時立体観測網の構築」（2006-2010年度）などを活用して実施したもので、その開発や運用には入江仁士氏、岩淵弘信氏、高島久洋氏らの大きな貢献がありました。定点当たりでみると、地上 MAX-DOAS 観測では、仰角の異なる複数の軸で時間をかけて計測するため、1軸で一瞬の計測から評価する衛星の場合と比較して、より多くの情報を利用して濃度導出を行うこととなります。また、NO₂計測波長帯(460-490nm)に含まれる O₄ (酸素分子の衝突錯体) による吸収度も同様に計測し、エアロゾルの情報も引き出しつつその放射影響を加味して NO₂を定量することも我々の MAX-DOAS 観測の強みとなっています。我々の観測網 MADRAS (MAX-DOAS network observations of NO₂ in Russia and Asia) では、都市域 (横須賀, 中国合肥, 韓国光州) から、郊外域 (福江島, ロシア・ズベニゴロド), リモート地域 (沖縄辺戸岬) ま

でをカバーするように観測サイトを配置し、NO₂濃度で3桁以上もの広いレンジをカバーすることができました。評価対象とした衛星観測は2004年から現在まで長期観測を継続する OMI (Ozone Monitoring Instrument) センサによるもので、オランダ気象研究所 (KNMI) が開発した DOMINO version 2 と呼ばれるアルゴリズムや、NASA が開発した標準アルゴリズム (version 2) に基づく対流圏 NO₂鉛直カラム濃度値を検証しました。その結果、対数軸同士での散布図のレベルでは衛星の値と地上からの値との間に十分な正の相関が見られ、衛星からの広域分布情報などは十分活用できることが示されました (第3図 a)。その一方で、それらの比を算出して詳細に解析すると、共存するエアロゾル量が多いときに衛星が30-50%も過小評価となることを見出しました (第3図 b, Kanaya *et al.* 2014)。このことから、大気中に共存するエアロゾルによる光攪乱効果 (シールド効果) が実際は重要で、このエアロゾル放射プロセスを雲で代替し簡易に表現している、衛星の標準アルゴリズムでは不十分である可能性を指摘しました。またこの原因により、現在報告されている衛星からのカラム濃度値に基づく、人間活動等による NO_x 排出量を過小評価する傾向となるのではないかと指摘しました。

このことは NASA が韓国の国立環境研究院 (NIER) と2016年に行った韓国上空での航空機観測 KORUS-AQ の企画書にも引用されるなど、関心を集めました。また我々は、2017年に打ち上げられた衛星センサ TROPOMI での世界的な検証チームにも参加し、役割



第3図 MAX-DOAS 観測網によって OMI 衛星観測による対流圏 NO₂カラム濃度を評価した結果。(a) 対数軸での散布図, (b) 両者の比とエアロゾル光学的厚さとの対応関係。

を担っています。さらには、2020年2月に韓国が打ち上げた静止衛星からの大気環境観測衛星センサー GEMS の検証でも同様に国際任務を負っています。

こうした研究活動は、日本からの衛星観測提案にも結び付いています。私が所属する日本大気化学会・大気環境衛星検討会では、水平分解能を1 km 級にまで高めた大気汚染観測衛星を提案してきました。局所的な個別排出源の識別および排出量の定量化に加え、排出源の近傍で顕著と考えられるオゾン生成の「非線形化学理論」の診断に応用するなど、科学面でも大きな期待があります。なかなか実現は難しい状況でしたが、温室効果ガス観測技術衛星の3号機 (GOSAT-GW) が、大規模排出源の監視のために NO₂ の高水平分解能計測を取り入れる方向となり、提案の一部実現の機会を得ることとなりました。その際には MAX-DOAS 等による検証に加え、エアロゾルの放射影響を組み込んだアルゴリズム開発などでも知見を活かしていく計画です。

4. 中国・泰山での総合集中観測での農業残渣燃焼の影響解明

以上のように開発した機材や解析手法等を活用し、2006年以降は中国や離島でのオゾン・エアロゾル・関連物質の総合集中観測にも力を注ぎました。特に中国華北平原の中央に位置する山東省・泰山の山頂で行った2006年6月の集中観測は、海外で行う初めての大型集中観測で強く印象に残るものとなりました。半年前からの念入りな下見などは比較的順調に進めることができましたが、ガスシリンダーと機材の輸送で戸惑ったり、当時の日中外交状況の影響を受けたりする場面も多くありました。一方で現地では、人足の皆さんがロープウェイを使わず機材を山頂まで8000段もの階段を担いで上げていく力強さに圧倒されたものでした。

2003年に開始されていた泰山での通年無人観測での謎の1つは、毎年6月にオゾン月平均濃度が80ppb 超に達する急峻なピークを示すことでした。高度1534mでの計測であり局所的な汚染とは考えられず原因は不明でした。そこでこの集中観測では、首都大学東京や国立環境研究所、北海道大学のグループの協力も得て、オゾンの原料物質である NO_x、VOC や、NO_y (反応性総窒素酸化物)、EC/OC (元素状・有機炭素)、エアロゾル中のトレーサー物質などを多数、有人下で計測し、原因の手掛かりを得ることを目的としました。その結果、OC や K⁺ および塩化メチルの濃度上昇をオ

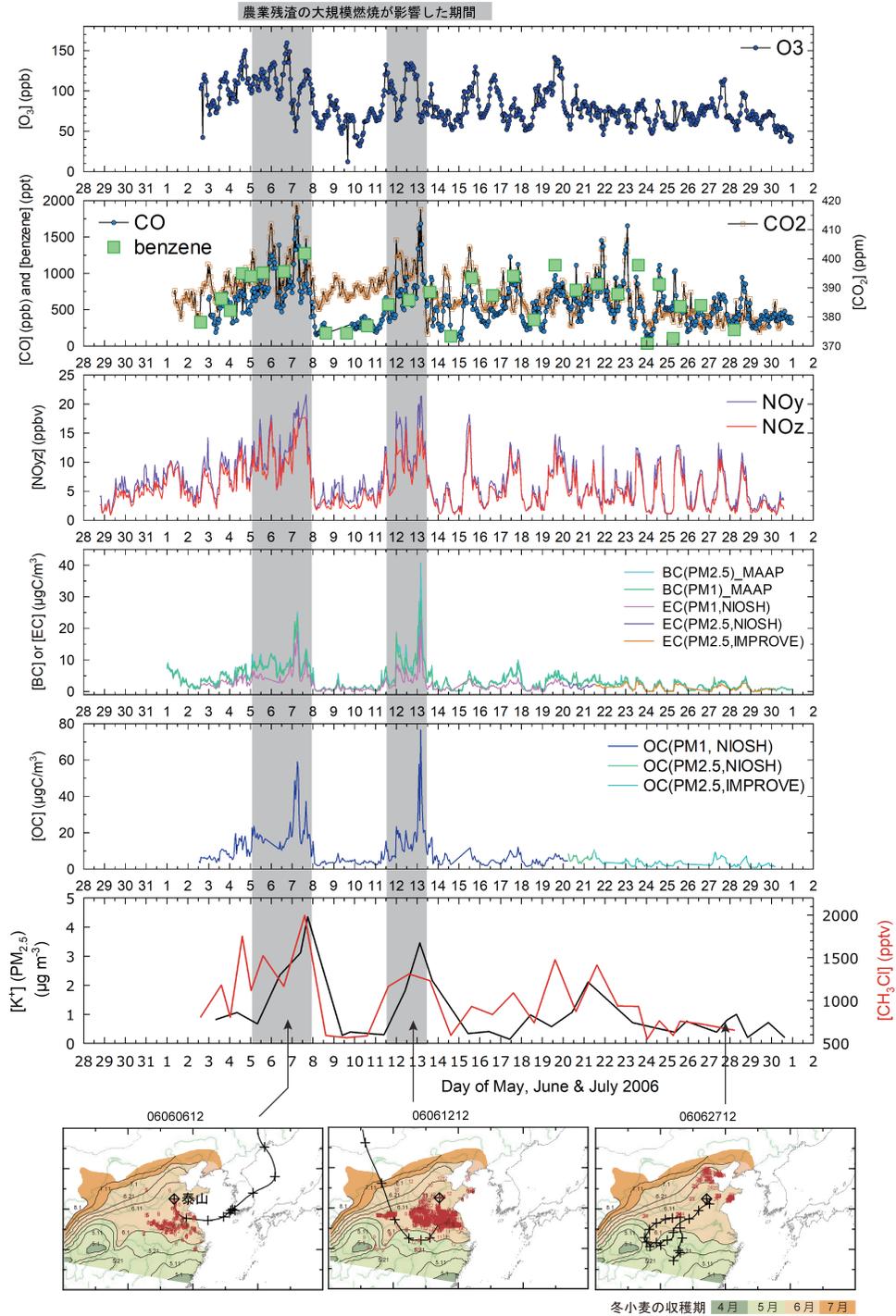
ゾンとともにとらえ (第4図)、初夏の大気汚染ピークには「農業残渣の大規模燃焼」の影響が大きいことを先駆的に見出しました (Kanaya *et al.* 2013a)。5月下旬から6月上旬は平原一帯が冬小麦の収穫期を迎えるタイミングで、収穫後の残渣処理のために行われる大規模な野焼きが、観測された EC/OC やオゾン等に影響を及ぼしていることが、有人現地観測で初めて明らかとなったのです。野焼きの時期が集中するのには、冬小麦の次にトウモロコシなどの次の作物を植え育てなければならない食糧事情があるとのことでした。人間活動による大気汚染といえば重工業の影響かと思いがちですが、10億人以上の食糧生産を支えるこの地域では、農業の影響も大きいことがわかりました。滞在中、山中においても明らかに野焼きの匂いが感じられたこと、またあまりのエアロゾルの濃さに上弦の月が上空でも赤黒く輝いていたことなど、五感に刻まれることもありました。最近では有機ガスの衛星データなどからも、この地域での大規模かつ季節的な農業残渣燃焼が広域の大気汚染に与える影響が評価されるなど (Stavrakou *et al.* 2016)、知見が一般化しています。農業残渣の野外燃焼は中国国内では禁止されているのですが、今後もその動向を見極めていくことが重要です。

泰山集中観測では、MAX-DOAS の中国国内初観測 (Irie *et al.* 2008) や、大気化学輸送モデルとの連携 (Yamaji *et al.* 2010)、有機エアロゾルの特徴づけ (Fu *et al.* 2008) などでも多くの成果を上げ、Atmospheric Chemistry and Physics 誌の特集号「The Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006): regional ozone photochemistry and aerosol studies in Central East China」を企画し19報を収録できたことは、当初想定以上の成果でした。

その後、北京郊外・蟒山 (2007年)、江蘇省・如東 (2010年)、韓国済州島 (2012年) でも集中観測を行いました。その際、モデルで過小評価されることの多い有機エアロゾルの二次生成に着目しました。OH と有機ガスの反応で生成物の蒸気圧が多段階的に低下していき、有機物がエアロゾル相に移行するメカニズムの重要性などを、最新のモデルとの比較から指摘しました (Kanaya *et al.* 2017)。

5. 福江島での PM_{2.5} 越境大気汚染評価と政策貢献

2009年以降は軸足を大陸から日本へ、あるいは太平洋域・北極域へ移して観測研究を遂行してきました。とくに越境大気汚染の西の玄関口ともいえるべき、長崎



第4図 2006年6月、中国山東省・泰山山頂で計測された、オゾン、CO、CO₂、ベンゼン、NO_y、NO_z (=NO_y-NO_x)、BC、OC、K⁺、塩化メチル濃度の時間変化。農業残渣の大規模野外燃焼が発生し、その影響を受けた空気塊が観測所に2度到来した(灰色の縦帯)。下図には、2006年6月6日、12日、27日における後方流跡線(黒線および+)、衛星から検出された高温点の位置と測定された日付(6月、赤字)および冬小麦の収穫期(背景の色と等高線)を示す。

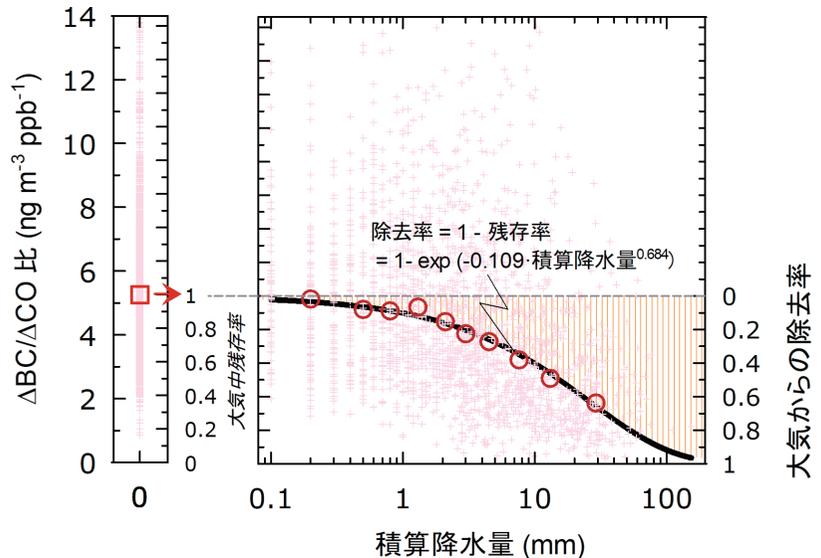
県西方・五島列島福江島に拠点を設け、長期観測と過程解明に注力しています。

2009年は我が国での微小粒子状物質 $PM_{2.5}$ の環境基準が告示された年ですが、当時一般市民の方々にはまだその名称すら認知されていませんでした。告示から一年間、2010年9月までの福江島での観測データを手早くまとめ（金谷ほか 2010）、「九州の離島でも $PM_{2.5}$ 環境基準は満たせず」とプレスリリースしたところ、西日本の広域に大陸からの越境汚染が及んでいるイメージが十分に伝わらず、福江で局所的な汚染があるのではないかと、農作物は大丈夫か、修学旅行へ行っても大丈夫かなどの問い合わせが現地に殺到し、風評被害の火消しをする事態となりました。新しい科学的知見を的確に社会に伝えることの難しさとその重要性を思い知らされたものです。ところが2013年1月、突如として $PM_{2.5}$ がその年の流行語に選ばれるまでの事態がやってきます。100m 先が霞んで見えないほどの北京中心部の映像と、 $900 \mu\text{g}/\text{m}^3$ という高い数値が報道され、ほどなく日本に影響が及ぶのではないかと懸念されるようになりました。我々は福江島での観測データなどから、この問題は重要であるが、この年に突然濃度上昇したわけではないことを発信しました。また、 $PM_{2.5}$ は新種の汚染物質ではなく、日本の昔の大気汚染でも酷かったもので、現在でも国内活動の影響もあることを社会に伝えました。こうした背景の下、観測によって検証された大気化学輸送モデルでの感度実験から、「西日本（広域）では $PM_{2.5}$ 越境汚染の寄与が通年で6割以上、関東では国内発生源の影響の方が大きい」とする結果を得て定量的な知見として提示しました（金谷 2014；Ikeda *et al.* 2015）。このことは環境省・中央環境審議会もとの微小粒子状物質等専門委員会などでも取り上げられ、同省における $PM_{2.5}$ 改善のための政策指針となり、実質的な国際的取り組みや国内発生源対策に結びついていきました。こうして、得られた

知見はようやく正しい形で、一般市民の方々や自治体などにも広く浸透する知識となっていきました。

国内の環境基準超過の意味では、近年低下傾向にある $PM_{2.5}$ と比較して、達成率が毎年ほぼ0%であるオゾン（オキシダント）の方がより深刻です。越境流入する気塊ではすでにオゾン濃度は高まった状態にあることが多いのですが、流入後の追加的なオゾンの増加を防ぐには、原料物質である NO_x 、VOC のどちらの削減が有効か、福江島の春季集中観測のデータを用いて評価しました。その結果、オゾン生成の主要な制限因子は NO_x であり、 NO_x の削減が有効であるものの、約14%の時間では VOC が制限因子となっており、郊外域でも VOC 削減が有効な場合もあることを示しました（Kanaya *et al.* 2016a）。その際、先に述べたラジカルの不均一反応の影響も加味してこの結論を導いています。

福江では SLCF として注目されている BC の計測からも成果を上げました。5年超の観測データを統計的に扱い、BC 濃度の増減を左右する2つの項である「排出量」と「湿性除去速度」を分離して定量評価する方法を示しました（第5図、Kanaya *et al.* 2016b）。具体的には、不完全燃焼から BC と同時に排出されるガスである一酸化炭素（CO）との濃度比に着目し、降水の



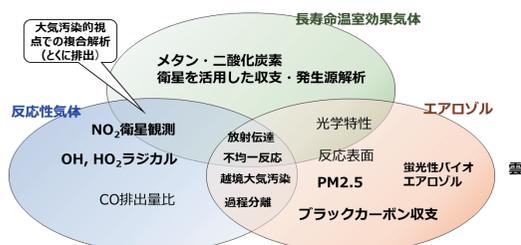
第5図 BCデータの解析にCOと積算降水量を導入し、排出と湿性除去を分離評価した解析。具体的には、福江島にて計測された $\Delta BC/\Delta CO$ 比を輸送経路上の積算降水量ごとに評価し、降水の影響がない場合（左図）の濃度比から排出量を議論し、一方で、降水の影響とともに減衰する $\Delta BC/\Delta CO$ 比から湿性除去を議論した。

影響を受けていない空気塊での比の値から「排出量」を議論し、一方で、湿性除去されないCOの性質を利用して、空気塊が経験した積算降水量 (Oshima *et al.* 2012; Matsui *et al.* 2011) の増加に対する比の減衰から「湿性除去」を議論しました。後者については、観測された比の減衰を stretched exponential decay 式で近似できることも示し、たとえば数値モデルがBC濃度を過大評価した際に、排出項の問題なのか、湿性除去の問題なのか、分離して評価することが可能となりました。福江でのBCの計測では、我々が2005年に中国で開始した長期観測から使い続けるMAAP (Multi-Angle Absorption Photometer) と、近藤 豊先生らが開発されたCOSMOS (continuous soot monitoring system) とを長年併用し、それらの高い相関性から計測の信頼性を高めていること (Kanaya *et al.* 2013b) も重要です。

2010年以降は、より広域へのアジア大気汚染の影響を調べるために、JAMSTECの海洋地球研究船「みらい」での連続観測にも注力し、すでに20を超える航海でデータを取得しています。太平洋を渡る高オゾン濃度気塊の追跡と衛星データ同化モデルの評価 (Kanaya *et al.* 2019)、北極へ広がるBC (Taketani *et al.* 2016) などから成果を発表しつつあります。今後、さらにMAX-DOASや各種エアロゾル計測の成果を公表していきたいと考えています。

6. 反応性気体・エアロゾル・長寿命温室効果気体の複合研究へ

前節までに述べたように、私はこれまで、「分光的手法」と「大気化学プロセス解明」とを掛け合わせ、OHラジカル収支、MAX-DOASや衛星によるNO₂計測、



第6図 これまでに取り組んできた、「反応性気体」と「エアロゾル」の境界領域研究の概念図。今後は「長寿命温室効果気体」を複合させた研究も強化し、地球システム物質科学の新機軸を見出していきたい。

アジア大気汚染を対象とした研究開発に取り組んできました。このことは視点を変えると、「反応性気体」と「エアロゾル」の複合研究とみることもできます(第6図)。HO₂ラジカルの不均一反応やNO₂衛星観測への粒子影響、BCやCOの複合による過程分離などがその最たる例です。一般に「反応性気体」と「エアロゾル」の研究はそれぞれ独立に進められるケースも多いのですが、私はそれらの境界部分にこそまだ見ぬ重要なテーマが潜むものと捉え、今後も研究展開のヒントとしたいと考えています。関連して、「エアロゾル・雲の相互作用」も不確か性の大きい部分です。蛍光特性を頼りにしてバイオエアロゾルの適切な計測が可能か、また氷晶核特性に関わりを持っているか、との点に着目した海洋大気観測研究にも着手しており(金谷ほか2019)、今後も気象学と接点を持ちながら展開を進めたいと考えています。

また今後は、「長寿命温室効果気体」を複合させた研究も強化し、地球システム物質科学の新機軸としていけたらと考えています(第6図)。主要な温室効果気体である二酸化炭素(CO₂)等については、パリ協定やグローバルストックテイクなどの喫緊の要請に基づき、人間活動による排出量の評価に加え、排出削減量の客観的な証拠まで求められる時代がまもなくやってきます。そうした要請にこたえるために、大気汚染研究の視点での複合解析が有効です。3節で触れた日本の人工衛星GOSAT-GWでは、CO₂、CH₄とNO₂を同時に計測する計画となっており、高い水平分解能で高精度に計測されるNO₂を燃料燃焼のマーカーとみなして、CO₂の収支・発生源解析等を高度化することとなっています。現在の実現レベルとのギャップはまだ大きいですが、有用な知見や技術の創出に注力していけたらと考えています。

7. 研究の国際性、今後の方向性

以上に記したように、私のこれまでの成果の多くは、日本はもとより、中国・韓国・ロシア・ドイツ・フランス・オランダ・米国など多くの国際共同研究者に支えられて得られたものです。また、国際オゾンコミッション (IO3C) の委員、大気化学と地球汚染に関する委員会 (iCACGP) のリエゾン委員、IPCCの第6次評価報告書でのレビューエディター、ドイツの専用航空機によるアジア上空観測 (EMeRGe-Asia) の国内窓口などの立場で、国際的な場でも刺激を多く受け、研究のエネルギーとしてきました。大変な場面に出く

わすこともありますが、今後も衛星関係の国際連携、PACES (Air Pollution in the Arctic : Climate, Environment and Societies) や TOAR-II (Tropospheric Ozone Assessment Report, Phase II) など IGAC (地球大気化学国際協同研究計画) のアクティビティ推進なども含め、国際活動を強化していきたいと考えています。

最後に自らのキャリア後半を見据えていくつか思うところを述べます。モントリオール議定書が発効したのは高校生のときでしたが、オゾン層破壊プロセス解明を果たし社会貢献を遂げた科学の役割に魅せられたものでした。そうした「初心」を忘れずに、また、「正しい計測は全ての基本」との「信条」を大切に、さらには、地球環境研究では「競争」よりも「協力」が大事であることを念頭に今後も歩いていきたいと考えています。「物質循環」は地球温暖化などの喫緊の課題を解決し地球環境を自然に近い姿に近づけていける唯一の「ハンドル」といえるかもしれません。そうした目標のためにも、発生源から全球まで、一撃の理解を確立していけるようにと願っております。最後になりますが、気象学・気候学と大気化学の境界領域の発展に尽力する所存ですので、今後ともどうぞよろしくお願いいたします。

謝 辞

東大の学生時代から地球フロンティア研究システムへと導いていただいた秋元 肇先生、研究の同志である谷本浩志氏にまず深く感謝いたします。秋元研究室同窓の皆さん（とくに梶井克純先生、廣川 淳先生、加藤俊吾氏、持田陸宏氏、松本 淳氏、定永靖宗氏）、地球フロンティアをリードされた松野太郎先生、大気組成領域等でお世話になった鶴野伊津志先生、大原利真先生、中澤高次先生、共著論文や各種プロジェクトでお世話になった近藤 豊先生、小池 真先生、河村公隆先生、竹川暢之氏、高村民雄先生、林田佐智子先生、高見昭憲氏、清水 厚氏、笠井康子氏、故横内陽子氏に深くお礼申し上げます。JAMSTEC での同僚・元同僚の皆さん、とくに入江仁士氏、高島久洋氏、岩淵弘信氏、竹谷文一氏、駒崎雄一氏、宮川拓真氏、滝川雅之氏、Prabir Patra 氏、山地一代氏、池田恒平氏、須藤健悟氏、宮崎和幸氏、松井仁志氏、Pakpong Pochanart 氏、Xiaole Pan 氏との連携やチームワークがなくては本稿で述べた成果は達成できませんでした。改めて感謝申し上げます。また、故才野敏郎先生、

故鈴木力英氏のご指導にも感謝いたします。福江島や辺戸岬の現場でサポートいただいた皆様、衛星コミュニティ皆様、大気化学・オゾンコミュニティ皆様、「みらい」首席・観測技術員皆様、委員として意見交換させていただいている気象庁関係の皆様、IPCC 関係者皆様、海外共同研究者皆様にもお礼申し上げます。環境省（推進費2-1803など）、JST、JSPS、文部科学省などの研究費にも支えられました。深く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 秋元 肇, 2014: 大気反応化学. 朝倉書店, 432pp.
- Finlayson-Pitts, B. J. and J. N. Pitts, Jr., 1999: Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere: Theory, Experiments, and Applications. Academic Press, 969pp.
- Fu, P., K. Kawamura, K. Okuzawa, S. G. Aggarwal, G. Wang, Y. Kanaya and Z. Wang, 2008: Organic molecular compositions and temporal variations of summertime mountain aerosols over Mt. Tai, North China Plain. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **113**, D19107, doi:10.1029/2008JD009900.
- Fuchs, H. *et al.*, 2010: Technical Note: Formal blind inter-comparison of HO₂ measurements in the atmosphere simulation chamber SAPHIR during the HO_xComp campaign. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 12233–12250.
- Hilboll, A., A. Richter and J. P. Burrows, 2013: Long-term changes of tropospheric NO₂ over megacities derived from multiple satellite instruments. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 4145–4169.
- Ikeda, K., K. Yamaji, Y. Kanaya, F. Taketani, X. Pan, Y. Komazaki, J. Kurokawa and T. Ohara, 2015: Source region attribution of PM_{2.5} mass concentrations over Japan. *Geochem. J.*, **49**, 185–194.
- Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, H. Tanimoto, Z. Wang, J. F. Gleason and E. J. Bucsela, 2008: Validation of OMI tropospheric NO₂ column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 6577–6586.
- 金谷有剛, 2008: 大気化学研究会奨励賞を受賞して, 大気化学研究会ニューズレター. **18**, 4. <https://jpsac.org/wordpress/wp-content/uploads/2017/05/NL18.pdf> (2020. 2. 17閲覧)
- 金谷有剛, 2014: 日本のPM_{2.5}はどこからくるのか～越境汚染の寄与をさぐる～. 環境省中央環境審議会 微粒子状物質等専門委員会 (第2回) 資料. <https://www.env.go.jp/council/07air-noise/y078-02a.html> (2020. 2. 17閲覧)

- Kanaya, Y., R. Cao, H. Akimoto, M. Fukuda, Y. Komazaki, Y. Yokouchi, M. Koike, H. Tanimoto, N. Takegawa and Y. Kondo, 2007a: Urban photochemistry in central Tokyo: I. Observed and modeled OH and HO₂ radical concentrations during the winter and summer of 2004. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **112**, D21312, doi:10.1029/2007JD008670.
- Kanaya, Y., R. Cao, S. Kato, Y. Miyakawa, Y. Kajii, H. Tanimoto, Y. Yokouchi, M. Mochida, K. Kawamura and H. Akimoto, 2007b: Chemistry of OH and HO₂ radicals observed at Rishiri Island, Japan, in September 2003: Missing daytime sink of HO₂ and positive nighttime correlations with monoterpenes. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **112**, D11308, doi:10.1029/2006JD007987.
- Kanaya, Y. *et al.*, 2009: Rates and regimes of photochemical ozone production over Central East China in June 2006: A box model analysis using comprehensive measurements of ozone precursors. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 7711-7723.
- 金谷有剛, 竹谷文一, 入江仁士, 駒崎雄一, 高島久洋, 鶴野伊津志, 2010: 九州福江島における通年PM_{2.5}質量濃度測定値の大気環境短期基準超過. *大気環境学会誌*, **45**, 289-292.
- Kanaya, Y. *et al.*, 2012: Comparisons of observed and modeled OH and HO₂ concentrations during the ambient measurement period of the HOxComp field campaign. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 2567-2585.
- Kanaya, Y. *et al.*, 2013a: Overview of the Mount Tai Experiment (MTX2006) in Central East China in June 2006: studies of significant regional air pollution. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 8265-8283.
- Kanaya, Y., F. Taketani, Y. Komazaki, X. Liu, Y. Kondo, L. K. Sahu, H. Irie and H. Takashima, 2013b: Comparison of black carbon mass concentrations observed by multi-angle absorption photometer (MAAP) and continuous soot-monitoring system (COSMOS) on Fukue Island and in Tokyo, Japan. *Aerosol Sci. Technol.*, **47**, 1-10.
- Kanaya, Y. *et al.*, 2014: Long-term MAX-DOAS network observations of NO₂ in Russia and Asia (MADRAS) during the period 2007-2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 7909-7927.
- Kanaya, Y., H. Tanimoto, Y. Yokouchi, F. Taketani, Y. Komazaki, H. Irie, H. Takashima and S. Inomata, 2016a: Diagnosis of photochemical ozone production rates and limiting factors in continental outflow air masses reaching Fukue Island, Japan: Ozone-control implications. *Aerosol Air Qual. Res.*, **16**, 430-441.
- Kanaya, Y., X. Pan, T. Miyakawa, Y. Komazaki, F. Taketani, I. Uno and Y. Kondo, 2016b: Long-term observations of black carbon mass concentrations at Fukue Island, western Japan, during 2009-2015: constraining wet removal rates and emission strengths from East Asia. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 10689-10705.
- Kanaya, Y. *et al.*, 2017: Observed and modeled mass concentrations of organic aerosols and PM_{2.5} at three remote sites around the East China Sea: Roles of chemical aging. *Aerosol Air Qual. Res.*, **17**, 3091-3105.
- Kanaya, Y. *et al.*, 2019: Ozone and carbon monoxide observations over open oceans on R/V *Mirai* from 67°S to 75°N during 2012 to 2017: testing global chemical reanalysis in terms of Arctic processes, low ozone levels at low latitudes, and pollution transport. *Atmos. Chem. Phys.*, **19**, 7233-7254.
- 金谷有剛, 竹谷文一, 宮川拓真, 2019: 大気中蛍光性バイオエアロゾル粒子のオンライン計測. *地球環境*, **24**(1), 53-61.
- Levy, H., 1971: Normal Atmosphere: Large radical and formaldehyde concentrations predicted. *Science*, **173** (3992), 141-143.
- Li, K., D. J. Jacob, H. Liao, L. Shen, Q. Zhang and K. H. Bates, 2019: Anthropogenic drivers of 2013-2017 trends in summer surface ozone in China. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **116**, 422-427.
- Matsui, H. *et al.*, 2011: Seasonal variation of the transport of black carbon aerosol from the Asian continent to the Arctic during the ARCTAS aircraft campaign. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **116**, D05202, doi:10.1029/2010JD015067.
- Miyazaki, K., H. Eskes, K. Sudo, K. F. Boersma, K. Bowman and Y. Kanaya, 2017: Decadal changes in global surface NOx emissions from multi-constituent satellite data assimilation. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 807-837.
- Oshima, N., Y. Kondo, N. Moteki, N. Takegawa, M. Koike, K. Kita, H. Matsui, M. Kajino, H. Nakamura, J. S. Jung and Y. J. Kim, 2012: Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **117**, D03204, doi:10.1029/2011JD016552.
- Schlosser, E. *et al.*, 2009: Technical Note: Formal blind intercomparison of OH measurements: results from the international campaign HoxComp. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 7923-7948.
- Stavrakou, T., J.-F. Müller, M. Bauwens, I. De Smedt, C. Lerot, M. Van Roozendael, P.-F. Coheur, C. Clerbaux, K. F. Boersma, R. van der A and Y. Song, 2016: Sub-

- stantial underestimation of post-harvest burning emissions in the North China Plain revealed by multi-species space observations. *Sci. Rep.*, **6**, 32307, doi:10.1038/srep32307.
- Stone, D., L. K. Whalley and D. E. Heard, 2012: Tropospheric OH and HO₂ radicals: field measurements and model comparisons. *Chem. Soc. Rev.*, **41**, 6348–6404.
- Taketani, F., Y. Kanaya and H. Akimoto, 2008: Kinetics of heterogeneous reaction of HO₂ radical at ambient concentration levels with (NH₄)₂SO₄ and NaCl aerosol particles. *J. Phys. Chem. A*, **112**, 2370–2377, doi:10.1021/jp0769936.
- Taketani, F., Y. Kanaya, P. Pochanart, Y. Liu, J. Li, K. Okuzawa, K. Kawamura, Z. Wang and H. Akimoto, 2012: Measurement of overall uptake coefficients for HO₂ radicals by aerosol particles sampled from ambient air at Mts. Tai and Mang, China. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 11907–11916.
- Taketani, F., T. Miyakawa, H. Takashima, Y. Komazaki, Y. Kanaya, X. Pan and J. Inoue, 2016: Ship-borne observations of atmospheric black carbon aerosol particles over the Arctic Ocean, Bering Sea, and North Pacific Ocean during September 2014. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **121**, 1914–1921.
- Yamaji, K., J. Li, I. Uno, Y. Kanaya, Y. Komazaki, P. Pochanart, Y. Liu, M. Takigawa, T. Ohara, X. Yan, Z. Wang, and H. Akimoto, 2010: Impact of open crop residual burning on air quality over Central Eastern China during the Mount Tai Experiment 2006 (MTX2006). *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 7353–7368.

Promotion of Integrated Understanding of Air Pollution over Asia based on Observations using Spectroscopic Techniques

Yugo KANAYA *

* *Earth Surface System Research Center, Japan Agency for Marine–Earth Science and Technology (JAMSTEC), 3173–25 Showa-machi, Kanazawa-ku, Yokohama, Kanagawa 236–0001, Japan.*
E-mail: yugo@jamstec.go.jp

(Received 26 February 2020; Accepted 30 April 2020)
