

国際共同研究事業 共同研究報告書

令和 5 年 4 月 25 日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]

国立研究開発法人国立環境研究所・地球システム
領域

[職・氏名]

主幹研究員・斉藤拓也

[課題番号]

JPJSJRP 20181708

1. プログラム名 英国との国際共同研究プログラム(JRPs-LEAD with UKRI)

2. 研究課題名

(和文) 東アジアにおける地表オゾン濃度増加の解明に向けた VOC の化学種別連続観測

(英文) Continuous chemical speciation of Asian VOC emissions for understanding the growth of surface
ozone in East Asia

3. 共同研究実施期間(全採択期間)

平成 31 年 2 月 14 日 ~ 令和 5 年 3 月 31 日 (4 年 2 ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

University of York・Professor・Alastair Lewis

5. 委託費総額(研究経費+業務委託手数料等、返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		30,324,479 円
内訳	1年度目執行経費	109,890 円
	2年度目執行経費	9,900,000 円
	3年度目執行経費	9,864,589 円
	4年度目執行経費	10,450,000 円
	5年度目執行経費	円
	6年度目執行経費	円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	1 名
相手国側参加者等	5 名

7. 研究の概要・成果等

(1)研究概要(全期間を通じた研究の目的・実施状況)

本研究の目的は、大気汚染の原因となる揮発性有機化合物(VOC)のための高感度自動連続測定システムを開発すると共に、本装置を用いて東アジア域における VOC 排出実態を把握することにある。本研究ではまず、分子内に酸素を含む VOC に対応した全自動測定システムを英国ヨーク大学大気化学研究室と共同で開発した。続いて本装置を沖縄県波照間島の波照間モニタリングステーションに設置して大気観測を実施し、アルコールやアルデヒドなど異なるクラスから構成される VOC(計 42 成分)の大気観測データを得た。観測の結果、VOC の大気濃度が大きな季節変動性を持つこと、冬季にはアルカンやアルデヒド、夏季にはケトンやアルコールの割合が高くなることが示された。全球大気化学輸送モデルを用いて観測データを解析した結果、モデルは低分子アルカンの大気濃度を過小評価し、その原因として東アジアにおける低分子アルカンの人為起源排出量が大幅に過小評価されていることが示唆された。また、分子量の大きいアルカンや芳香族炭化水素ではモデルが過大評価した一方で、アルコールや低分子アルケン等では過小評価が大きいことがわかった。

(2)学術的価値(本研究により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

本研究の学術的価値は、標準ガス発生機構を備えた VOC 連続測定システムを世界に先駆けて開発したことにある。これにより、これまで比較的安定な非極性成分に限られてきた測定対象が、分子量の大きい非メタン炭化水素や、リモートサイトで存在量の大きいカルボニルやアルコールなど極性成分まで広がった。また、VOC の大きな発生源域であるのにも関わらず観測例が限られていた東アジアにおいて、複数年に渡る長期の大気観測データを得た。こうした VOC の長期的かつ高頻度な大気観測は、VOC の発生・消失過程の理解に繋がると期待される。その一例として、波照間島における大気観測データのモデル解析により、東アジアにおける低分子アルカンの排出量が従来考えられていたよりも2倍以上大きいことを明らかにした。これらは対流圏オゾンの前駆体として働くため、本研究による人為排出量の改訂は大気汚染や気候変動の対策にも貢献すると考えられる。

(3)相手国との交流(本研究による国際共同研究の活性化や、両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

本研究で開発した VOC 測定装置は、相手国と共同で取り組んだことで開発に成功した。また、英国ヨーク大学大気化学研究室のメンバーと広く交流したことでお互いの理解が進み、本プロジェクトには参加していない研究者が課題代表を務める新規プロジェクト(後述)に参加することに繋がった。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の広い意味での社会的貢献はどのようにあったか)

本研究は大気汚染の対策を考える上で必要な科学的基盤を提供した。主要な大気汚染物質である対流圏オゾンは、健康や農作物の収穫量などに大きな影響を与えている。地表付近における対流圏オゾン濃度は世界の多くの地域で減少傾向にあるが、東アジアでは過去 20 年に渡って増加傾向にあり、その原因解明と対策が求められている。近年、中国の都市部において実施された大気観測から、オゾンの前駆体として働く揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制がオゾン濃度の低減に効果的であることが指摘され、排出される VOC の組成や風下地域への輸送中における VOC の変質過程の把握が現象解明のキーになると考えられていた。本研究では、複雑な VOC を成分別かつ連続的に測定する手法を新たに確立し、東アジアの大規模排出源域の風下において長期的な大気観測体制を構築した。また、モデルシミュレーションにより、一部の VOC について中国等からの排出量が過小評価されていることを明らかにした。こうした知見は、大気汚染の現象解明と効率的な対策を通し

て環境問題の解決に資すると期待される。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

相手国側の若手研究者とデータ解析、論文執筆に関するディスカッションを密に行い、若手研究者養成にも一定の貢献をした。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

本研究で開発した VOC 測定装置は、離島のように頻繁なアクセスが困難な遠隔地において、全自動で広範な VOC の大気観測を実現するために開発された。このため、本装置は様々なフィールドでの大気観測に活用できるポテンシャルを持っている。また、本研究において、バックグラウンド大気中での検出例がほとんど報告されていない含ハロゲン VOC が複数見つかった。これは今回研究対象とした地表オゾンの生成・消失には関係しないが、成層圏オゾンの消長には関わる可能性があるため、後述する新規共同研究プロジェクトにおいて今後詳細に調査することになった。

(7)その他(上記(2)～(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

特になし。

8. 今後の展望(今後の国際共同研究・協力体制の維持・発展に向けた展望について、具体性・実現可能性等を踏まえて、継続的に展開していくための計画を記載してください)

日本側研究代表者は、英国が主導する新しいプロジェクトに参加し、本研究で構築した大気観測システムを引き続き活用する予定である。このプロジェクトは、JSPS-UKRI の国際共同研究において英国側の環境科学分野を担当した自然環境研究会議(NERC)が支援するもので、VOC の一種であるハロカーボンがグローバルな大気環境に及ぼすインパクトの評価を目的としている(課題名: Investigating HALocarbon impacts on the global Environment, InHALE)。日本側研究代表者は、JSPS-UKRI の英国側研究機関であるヨーク大学を通してプロジェクトに参加するが、ブリストル大学など、このプロジェクトに参加する他の大学・研究機関との共同研究にも繋がる可能性がある。このように、本研究で構築された国際共同研究・協力体制は、継続的に維持・展開できると期待される。

9. 最終年度実施状況

- ・ 最終年度実施計画書の「当該年度実施計画の概要」の内容と対応させつつ、最終年度のみの実施状況を簡潔に記載してください。再委託又は共同実施を行った場合は、それぞれの実施状況がわかるように記載してください。
- ・ 当該年度又は前年度(複数年契約を締結し繰越を行った場合)の各費目における増減が研究経費総額の 50% (この額が 300 万円を超えない場合は 300 万円)に相当する額を超えた場合は、その理由と費目の内訳を変更しても計画の遂行に支障がないと考えた理由を記載してください。

今年度は波照間島における大気観測の継続と高度化を行うと共に、全球大気化学輸送モデルを用いて観測結果の解析を行った。

まず、VOC 観測を担う大気濃縮装置/ガスクロマトグラフ/質量分析計/水素炎イオン化検出器システム(TD/GC/MS/FIDs)について、これまでに明らかになった技術的な課題に対応した。具体的には、一部の含酸素 VOC や高沸点 VOC で認められていたサンプルのキャリーオーバー問題に対応するため、配管に直接電流を印加して加熱する方式を採用した新しい大気濃縮装置を開発した。これにより、配管全体が加熱され、サンプル流路のコールドスポットがなくなったことでキャリーオーバーの問題が解消された。また、FID の燃料ガス供給ラインに微量流量に対応した高精度な圧力調整器を導入し、FID シグナルの安定性を改善した。更に、VOC 測定システムの定量を担う希釈システムについても改良を行い、加湿したガスによる希釈を行うことで、希釈率を高精度化するとともに希釈率の妥当性を検討した。

以上のような測定システムの高度化を行いつつ、大気中 VOC の観測を継続した。改良型の装置を使用した2022年6月から2023年3月まで連続的に大気観測データを取得し、季節的な VOC の特徴を明らかにした。すなわち、総 VOC 濃度は夏期よりも冬季に高く、冬季の高いベースラインには人為起源の低分子アルカンが寄与していることが分かった。一方、清浄な海洋性空気塊に覆われる夏期にはケトンやアルコールなど含酸素 VOC の寄与が大きくなることが分かった。成分別では、C2-C11 アルカン、C2-C5 アルケン、C2 アルキン、C6-C9 芳香族炭化水素、C1-C2 アルコール、C2-C4 アルデヒド、C3-C4 ケトンの異なるクラスから構成される VOC (計 42 成分)が測定された。含酸素 VOC のうち、アセトアルデヒドが最も高い濃度で検出され、アセトン、メタノール、エタノールが続いた。なお、これら以外にもメチルエチルケトンやベンズアルデヒドなど、多くの成分が検出された。これらは、今後、FID の有効炭素数法あるいは追加の標準ガスを利用することで定量が可能になる。

観測との比較やデータ同化には、全球大気化学輸送モデル GEOS-Chem を使い、エミッションインベントリーには CEDS(人為)、MEGAN(陸域植生)、GFED(火災)を採用した。その結果、比較的分子量の大きいアルカンや芳香族炭化水素ではモデルが過大評価した。一方、低分子アルカン、生物起源炭化水素であるイソプレン及びその酸化生成物、アルコールで過小評価が大きかった。OVOC の中ではアセトンで最も良い一致が見られた。今回のモデルでは海洋からの放出を考慮していないため、海洋の影響が比較的小さいか、モデルが他の発生源を過大評価している可能性がある。以上の研究成果を国際会議(IGAC2022)で発表すると共に、ヨーク大学においてこれまでの課題や今後の進め方について打合せを行った。

続いて、大気中の存在量が大きい低分子アルカン(エタン、プロパン)及びオゾン生成に関わる微量成分(CO, オゾン, NO_x, NO_y)について詳細にモデルとの比較を行った。その結果、CO やオゾンについては季節変動や短期変動を比較的よく再現できた。一方、エタンとプロパンでは冬期に顕著な過小評価、NO_x と NO_y についてはそれぞれ過小評価、過大評価が認められた。エタンとプロパンについて冬期の過小評価の原因を調べたところ、冬期には主要な排出源の一つであるバイオマス燃焼の寄与は小さく、人為排出量を2倍以上過小評価していることが原因になっていることを示唆した。NO_x と NO_y についてはモデルによる低い再現性の原因は不明だが、観測側(測定法、ローカルな発生源の影響)とモデル側(大気寿命等)のそれぞれで原因となりうる項目を検討した。以上の成果を論文としてまとめ、Atmos. Chem. Phys.誌に投稿した。

11. 研究発表(最終年度において、本共同研究の一環として本事業による支援を受けたことを明示して発表したもの(発表予定のものを含む)について記載してください)

〔雑誌論文〕 計(1)件 うち査読付論文 計(0)件

通番	共著の有無 ^{*1}	著者名、論文標題等 ^{*2}
1	○	<u>Adedeji AR</u> , <u>Andrews SJ</u> , <u>Rowlinson MJ</u> , <u>Evans MJ</u> , <u>Lewis AC</u> , Hashimoto S, Mukai H, Tanimoto H, Tohjima Y, and <u>Saito T</u> (2022) Measurement report: Assessment of Asian emissions of ethane, propane, carbon monoxide, and NO _x based on observations from the island of Hateruma. Atmos Chem Phys Disc 1-26. https://doi.org/10.5194/acp-2022-703 .
2		
3		

〔学会発表〕 計(4)件 うち招待講演 計(0)件

通番	共著の有無 ^{*1}	発表者名、発表標題等 ^{*2}
1	○	<u>斉藤拓也</u> , <u>Stephen Andrews</u> , <u>Adedayo Adedeji</u> , <u>Mathew Evans</u> , <u>Alastair Lewis</u> (2022) 波照間島における極性及び非極性VOCの大気観測:観測結果の概要とモデルとの予備的な比較. 第27回大気化学討論会
2	○	<u>Adedeji A.</u> , <u>Andrews S.</u> , <u>Evans M.</u> , <u>Lewis A.</u> , <u>Saito T.</u> (2022) Modelling and Measuring VOCs and OVOCs Concentrations in East Asia. iCACGP-IGAC2022, UK.
3	○	<u>Andrews S.</u> , <u>Saito T.</u> , <u>Adedeji A.</u> , <u>Evans M.</u> , <u>Lewis A.</u> (2022) Achieving continuous measurement of Asian VOC emissions, including oxygenates, on Hateruma Island. iCACGP-IGAC2022, UK.
4	○	<u>Saito T.</u> , <u>Andrews S.</u> , <u>Adedeji A.</u> , <u>Evans M.</u> , <u>Lewis A.</u> (2022) Evaluating the first year of volatile organic compound (VOC) measurements at the subtropical remote site of Hateruma in East Asia. iCACGP-IGAC2022, UK.

〔図 書〕 計(0)件

通番	共著の有無 ^{*1}	著者名、著書名等 ^{*2}
1		

*1 相手国側参加者との共著(共同発表)がある場合は○と記入。

*2 当該発表等を同定するに十分な情報を記載すること。例えば学術論文の場合は、著者名、論文標題、雑誌名、巻号、発行年(西暦)、最初と最後の頁、掲載論文の DOI、学会発表の場合は発表者名、発表標題、学会等名、発表年(西暦)、発表地(国名、国外開催の学会の場合のみ)、図書の場合は著者名、著書名、出版社名、発行年(西暦)、総ページ数、ISBN、など(順番は入れ替わってもよい)。相手国側参加者との共著となる場合は、著者名が複数であっても省略せず、その氏名を記入し下線を付すこと。

*3 足りない場合は適宜行を追加すること。

11. 本事業による産業財産権の出願・取得状況(最終年度に出願又は取得したもの)

〔出 願〕 計(0)件

通番	産業財産権の名称、発明者、権利者、産業財産権の種類、番号、出願年月日、国内・外国の別
1	

【取 得】 計(0)件

通番	産業財産権の名称、発明者、権利者、産業財産権の種類、番号、取得年月日、国内・外国の別
2	

* 必要に応じて、欄を追加してください。