

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：37111

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2021

課題番号：17K00529

研究課題名(和文) 多地点同時リモートセンシング観測による都市圏の大気環境動態の解明

研究課題名(英文) Spatiotemporal variations of nitrogen dioxide observed by multiple MAX-DOAS

研究代表者

高島 久洋 (Takashima, Hisahiro)

福岡大学・理学部・准教授

研究者番号：20469620

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：都市大気汚染物質の拡散過程を明らかにするため、MAX-DOAS法と呼ばれるリモートセンシング手法による大気汚染物質の鉛直分布観測を、福岡平野内4地点で実施した。二酸化窒素の観測から、都市部で排出された汚染物質が、局地内循環により水平・鉛直に拡散する過程の可視化に成功した。ドップラーライダーと呼ばれる装置を用いて福岡平野内の風の3次元観測を行い、汚染物質の拡散が風と整合的であることを示した。衛星観測TROPMIを地上観測データにより検証し過小評価傾向であることを示した。COVID-19による大気汚染物質の排出減少を利用し、福岡の濃度減少が韓国等の排出量減少の影響を受けていることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

国境を越えて流入する大気汚染物質が日本の都市域から排出される大気汚染物質とどのように混合し、光化学反応が促進されるかを明らかにすることは、我々の大気環境を理解する上で重要である。本研究では、日本西端の大都市(福岡市)にて、4地点にてMAX-DOAS法と呼ばれるリモートセンシング観測手法により大気汚染物質の鉛直分布観測を行い、汚染物質の輸送・拡散過程を明らかにすることを目的とした。特に二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)は都市圏で排出されるのでトレーサーとして利用し、拡散過程を明らかにした。ドップラーライダーにより福岡平野内での3次元の風観測を行い、拡散過程が風と整合的であることを示した。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify the diffusion, dilution, and transport processes of pollutants in urban areas, remote sensing observations using MAX-DOAS were conducted at four sites in the Fukuoka Plain. Based on the results of multiple observations of nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) profiles, we succeeded in visualizing the horizontal and vertical diffusion and transport processes of air pollutants emitted in the Fukuoka urban area. Three-dimensional wind observations by Doppler lidar revealed that the observed dilution and transport processes are consistent with those pollutant variations. Satellite observations (TROPMI) were validated by multiple MAX-DOAS and showed that TROPMI is underestimated. Analysis of NO<sub>2</sub> content over Fukuoka also showed a decrease due to reduced emissions by COVID-19 in South Korea.

研究分野：大気科学

キーワード：都市大気 大気環境 リモートセンシング 二酸化窒素 越境大気汚染 人工衛星観測

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、中国を中心とした東アジアの経済成長にともない越境大気汚染に関する社会的関心が高まっている。大都市圏での越境大気汚染の影響を定量的に評価するには、(a) 都市圏内での排出量、移流・拡散の物理過程と光化学過程に加え、(b) 越境してきた大気との混合・光化学過程をそれぞれ定量的に明らかにする必要がある。そのためには、化学輸送モデルを用いて複雑な物理過程(輸送、拡散、混合)と光化学過程の全体像を把握した上で、時空間に密な観測データを用いてそれらを定量的に検証することが必要不可欠である。しかし、大気化学成分を常時観測している日本での地点観測だけでは鉛直混合過程・空間代表性を評価しにくいこと、複数の大気成分を同時に連続観測できる地上測器が乏しいこと、複数の大気成分を同時に広範囲に観測できる極軌道衛星の観測頻度は低く(1日1回以下)、発生源からの輸送や輸送大気中の(数日以内の)化学過程の議論が難しいことから、越境大気汚染を評価するための観測データの蓄積は十分とは言えない。また大気境界層内(0-2 km)および境界層と自由対流圏間の鉛直混合過程、排出インベントリの不確実性が大きく、それらに強く依存する領域化学輸送モデルは、現実の大気汚染を定量的に再現するレベルには至っていない。

これらの学術・社会的背景から、対流圏下層のエアロゾル・大気ガス成分の鉛直分布を連続観測できる複数仰角・差分吸収法(Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy: MAX-DOAS法)が有用視され利用されつつある。同手法の利点は、1) 大気汚染物質を含む、エアロゾル( $PM_{2.5}$ )、大気ガス成分の多成分(二酸化窒素( $NO_2$ ), ホルムアルデヒド(HCHO), 亜硝酸(HONO)など)を同時に連続観測ができ、長期間のモニタリングが可能であること、2) 1)の成分の地上から高度およそ3 kmまでの鉛直分布が得られ、水平・鉛直輸送・拡散過程の議論が可能である点である。

我々は、2012年7月より、日本最西端の大都市である福岡にて、大気の時空間変動(汚染物質の循環過程)を明らかにするため、都市中心部から離れた福岡大学(33.55°N, 130.36°E)から、都市中心部(天神(北東)方向)と郊外(糸島(北西)方向)の2方位について、MAX-DOAS法による連続観測を行ってきた。その観測により、都市中心部の高濃度の $NO_2$  空気塊が海陸風循環にともない水平・鉛直方向に輸送される過程を明らかにした[Takashima et al., 2015]。排出源の空間分布について明らかにするため、自動車搭載型(モバイル)MAX-DOAS装置を試作し、福岡都市高速環状線内(1周約35 km)で移動しながら $NO_2$ の観測を行い、排出源の空間不均質性と輸送過程、および窒素酸化物( $NO_x$ )の排出量を示した[山口ほか, 2016]。さらに、オゾンを含む光化学反応で中心的な役割を果たすホルムアルデヒド(HCHO)について、空間不均質性を示した[高島, 2014]。

そこで本研究では、モバイルMAX-DOAS観測装置を長時間の連続測定ができるように高度化し、福岡都市中心部(薬院)および海風が流入する沿岸部で同時に観測を実施する。そして福岡市城南区(福岡大学)と福岡市の南の春日市(千葉大学)で実施している定常観測と合わせて、福岡都市中心部から郊外の大気化学ガス成分(大気汚染物質)の時空間変動を明らかにする。その過程で越境大気がどのように都市大気と混ざり、光化学反応が促進されるかを明らかにする。 $NO_2$ ( $NO_x$ )は大気汚染物質のトレーサーとして利用可能であり[Takashima et al., 2015]、物理過程を明らかにする際に利用する。光化学過程についてはオゾン光化学に密接に関連する大気ガス成分に着目する。大気汚染物質の拡散過程を検証するため、3次元で風を計測できるドップラーライダーを利用する(福岡大学にH28年11月に設置し、福岡都市圏の大気の流れを直接観測

できる環境が整う)。

また近年の世界の動向として、静止衛星観測による高空間分解能での大気化学成分の観測が始まる。2018年には、韓国の静止衛星搭載センサー (GEMS) が打ち上げられる予定であり、同様の衛星観測が欧米でも行われる計画である (米国 TEMPO, 欧州 Sentinel-5P)。静止衛星により、これまでの極軌道衛星で分からなかった化学成分の日変動が、高時空間分解能 (1 時間毎) で観測されるが、その際、地上からの検証が必須となる。MAX-DOAS 法については、国内の先駆けとして、日本・中国・韓国・ロシアの多地点での定常観測網を展開してきた実績がある。本研究での時空間に密な地上観測により、国際的な検証観測の一翼を担うことが期待される。

## 2. 研究の目的

国境を越えて流入する大気汚染物質が日本の都市域から排出される大気汚染物質とどのように混合し、光化学反応が促進されるかを明らかにすることを目的とした。日本西端の大都市 (福岡市) にて、都市中心部とそれを囲む 3 地点 (計 4 地点) で、MAX-DOAS 法と呼ばれるリモートセンシング観測手法により、大気汚染物質の鉛直分布を連続観測する。NO<sub>2</sub> は寿命が短く大気汚染物質のトレーサーとして利用し、この観測に加えてドップラーライダーによる 3 次元の風観測から物理過程 (排出、拡散、輸送、混合) を明らかにする。都市圏の大気環境の諸過程の理解の深化に加え、大気環境予報精度の向上を介して社会に貢献する。

## 3. 研究の方法

モバイル型 MAX-DOAS 観測装置を自動連続観測できるよう高度化する (高度化・製作した観測装置を図 1 に示す)。これまで福岡市 (福岡大学) と春日市で実施している MAX-DOAS 法による定常観測に加えて、新たに都市中心部で定常観測を行う (福岡平野内に展開した観測地点を図 2 に示す)。またモバイル型装置を海風が流入する都市中心部の北側 (海側) にて連続観測を実施する。ドップラーライダーで得られた 3 次元風観測データを解析し、都市圏で発生した大気汚染物質の拡散過程について解析する。得られたデータを使い人工衛星観測データ (TROPOMI) を評価し、より広域の動態について把握する。あわせて鉛直分布導出方法の高度化を行う。

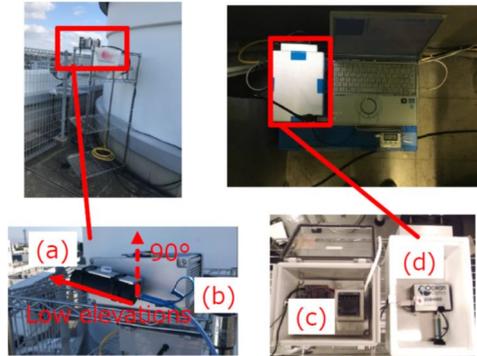


図 1. 製作した小型 MAX-DOAS 観測装置。屋外部分 (a, b) および屋内分光器 (d), 温度制御システム (e)。

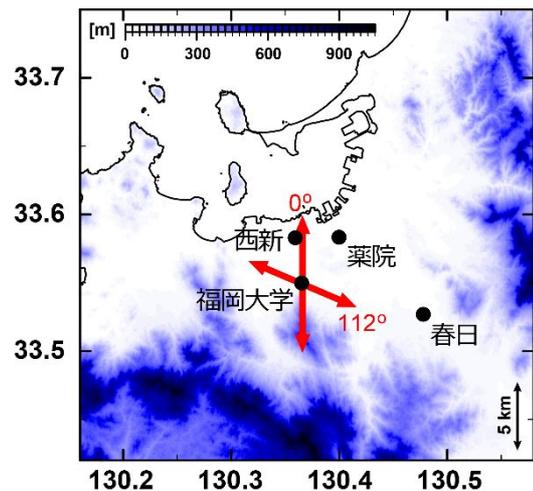


図 2. 福岡平野内に展開した 4 つの観測地点 (福岡大学, 西新, 薬院, 春日) について示す。赤矢印はドップラーライダーの RHI 観測方位を示す。

#### 4. 研究成果

##### 1) 福岡平野における多地点同時 MAX-DOAS 観測による NO<sub>2</sub> をトレーサーとした大気汚染物質拡散過程の可視化

福岡都市圏の多地点 (図 2) にて MAX-DOAS 法による大気微量成分の鉛直分布連続観測を実施した。福岡大学および春日 (九州大学) は研究期間内において連続観測を実施した。モバイル MAX-DOAS 装置を製作し (図 1)、福岡大学の MAX-DOAS 観測装置を使って評価を行い、同程度の精度で観測ができることを確認した。モバイル装置による観測は、都市部の薬院、海側の西新、福岡大学にて、4 分間 1 プロファイルの高時間分解能で行った。

福岡大学から天神方向の大気を高時間分解能で観測すると、昼前から都市部の上空で NO<sub>2</sub> 濃度が増大する事例が、季節によらず、しばしば観測された。図 3 に 2018 年 11 月 29 日の事例を示す。

薬院は都市中心部にあり海方向を観測しており、朝に地表付近で NO<sub>2</sub> 増大がみられ、また午後に濃度減少がみられる。福岡大学から都市中心部 (天神) 方向の観測 (図 3(b)) は、朝に薬院と同様に地表付近で増大がみられるが、それが徐々に上空で濃度が高くなる様子が観測された。この大気の鉛直輸送・鉛直拡散過程は、ドップラーライダーで観測した福岡平野の 3 次元風観測と整合的であり (図 4)、大気汚染物質である NO<sub>2</sub> をトレーサーとして大気汚染物質の拡散過程の可視化に成功した。得られた成果の一部を投稿論文として取りまとめた (Ueki et al., 2021)。

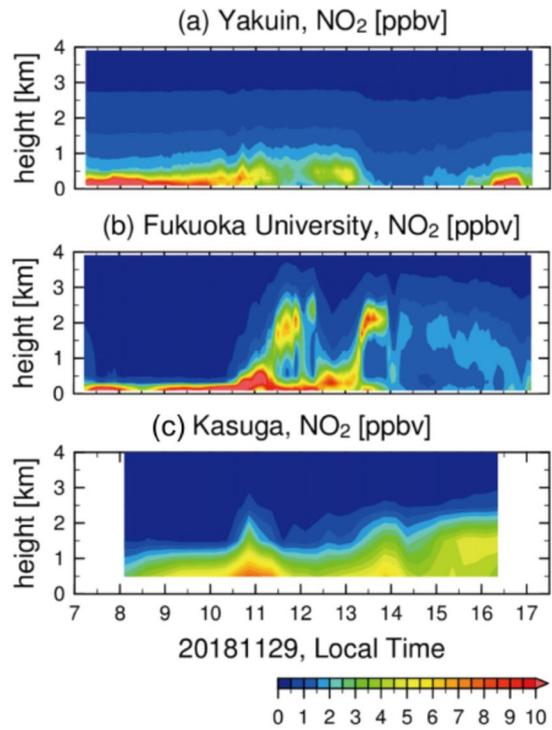


図 3. 2018 年 11 月 29 日の二酸化窒素鉛直分布の観測時例 (a:薬院, b:福岡大学, c:春日)。

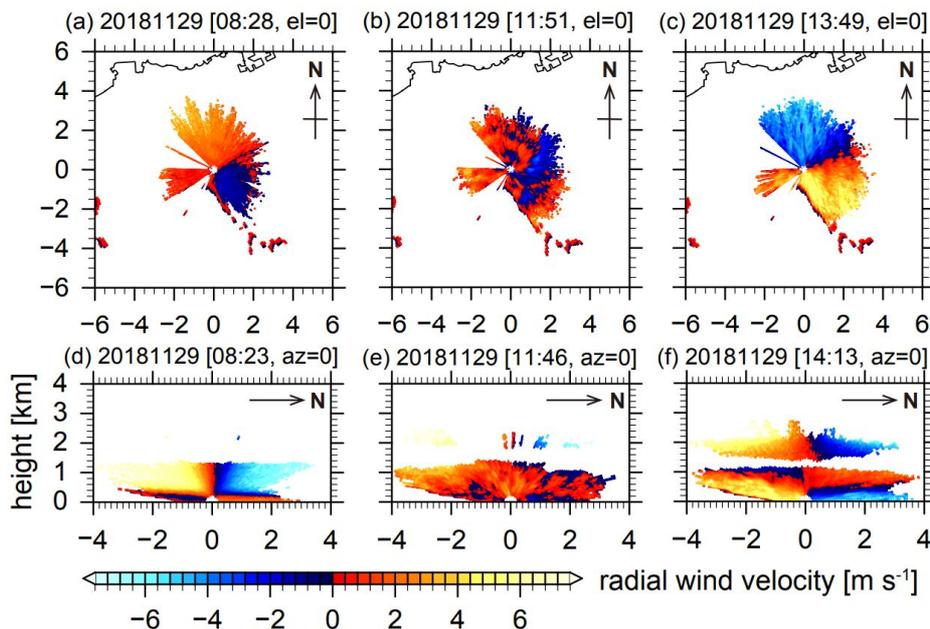


図 4. Doppler lidar により観測した視線速度 [m/s]。2018 年 11 月 29 日の事例について示す (Ueki et al., 2021)。

## 2) 人工衛星観測データの検証

地上 MAX-DOAS 観測データを用いて人工衛星観測データの検証を行うとともに、最適な鉛直分布導出アルゴリズムの検討を行った。研究開始前は韓国の静止衛星 (GEMS) を利用して日変化を中心に解析することを予定していたが、衛星打ち上げ・データ入手が遅延したため、太陽同期極軌道衛星 TROPOMI の観測データのみを用いた。1) で解析した 2018 年 11 月 29 日の観測時の TROPOMI による対流圏 NO<sub>2</sub> のスナップショットを図 5 に示す。TROPOMI の観測はこれまでの衛星センサーと比べて空間分解能が向上し都市スケールの解像が可能になったが、1 年間で比較すると系統的な過小評価傾向があり OMI と同程度であることが分かった (図 6)。

COVID-19 の影響で人為起源ガスの排出量が減少したことが報告されている。それを利用することで日本起源と越境大気汚染を切り分けがある程度可能になり、その影響について調べた。TROPOMI が観測する日本時間で昼過ぎの観測時間について、2020 年前後について解析した。その結果韓国などの排出量の減少が福岡の大気汚染物質濃度減少に影響していることが明らかとなった。鉛直分布の導出時のアプリオリ依存は大きく、また大気汚染物質の水平不均質性については十分な議論ができなかったため、今後の課題である (図 7)。

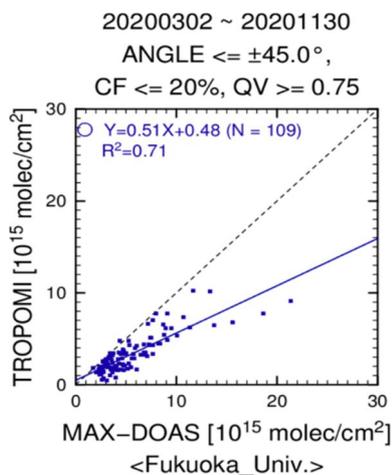


図 6. MAX-DOAS 法および人工衛星 (TROPOMI) による対流圏二酸化窒素積算量の散布図。

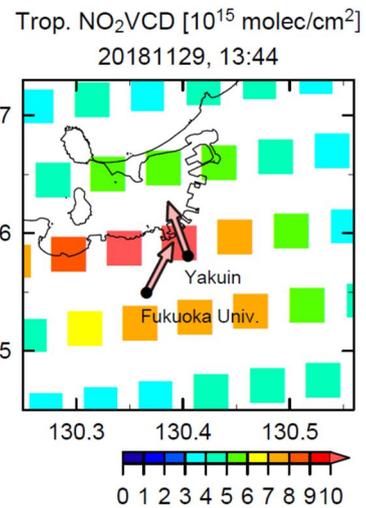


図 5. 人工衛星 (TROPOMI) による対流圏二酸化窒素積算量 (2018 年 11 月 29 日)。

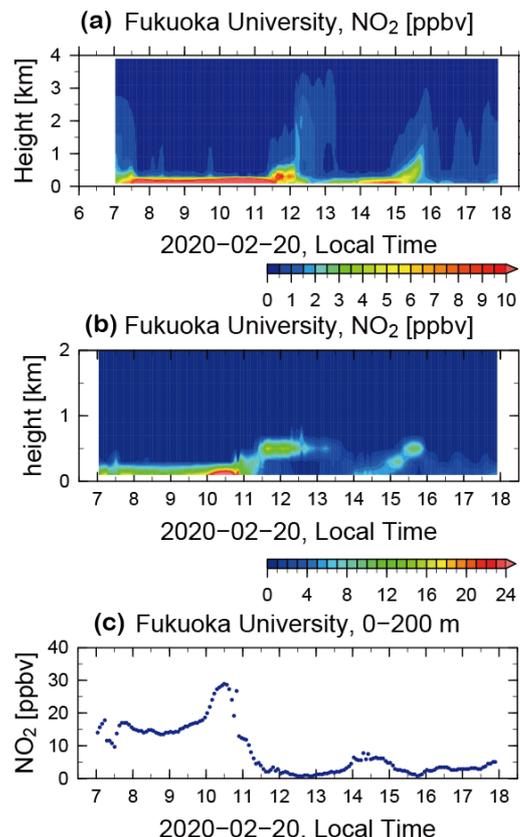


図 7. MAX-DOAS 法による対流圏二酸化窒素の鉛直分布と地表付近の濃度 (福岡大 2020 年 2 月 20 日)。アプリオリを変えて導出。

謝辞: 西新 (福岡大学西新病院) での観測について福岡市の協力を得た。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ueki Hironobu, Takashima Hisahiro, Friedrich Martina Michaela	4. 巻 17
2. 論文標題 Spatiotemporal Variations of NO <sub>2</sub> over Fukuoka Japan, Observed by Multiple MAX-DOAS and 3-D Coherent Doppler Lidar	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 SOLA	6. 最初と最後の頁 69~73
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2151/sola.2021-011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Hisahiro Takashima, Keiichiro Hara, Chiharu Nishita-Hara, Yasushi Fujiyoshi, Koichi Shiraishi, Masahiko Hayashi, Ayako Yoshino, Akinori Takami, Akihiro Yamazaki	4. 巻 3
2. 論文標題 Short-term variation in atmospheric constituents associated with local front passage observed by a 3-D coherent Doppler lidar and in-situ aerosol/gas measurements	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Atmospheric Environment: X	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.aeaoa.2019.100043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 植木洸巨, 高島久洋, Martina M. Friedrich
2. 発表標題 福岡都市圏での2地点同時MAX-DOAS観測によるTROPOMI対流圏二酸化窒素データの検証
3. 学会等名 第25回大気化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高島久洋, 原圭一郎, 乙部直人, 田代尚輝, Frederik Tack, Alexis Merlaud
2. 発表標題 小型センサーを用いた二酸化窒素 (NO <sub>2</sub> ) の鉛直分布観測
3. 学会等名 第25回大気化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hironobu Ueki, Hisahiro Takashima, Martina M. Friedrich
2. 発表標題 Spatiotemporal variations of nitrogen dioxide (NO <sub>2</sub> ) over Fukuoka, observed by multiple MAX-DOAS instruments and 3-D coherent Doppler lidar
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hisahiro Takashima, Keiichiro Hara, Yuki Ohira, Akinori Takami, Ayako Yoshino, Yasushi Fujiyoshi
2. 発表標題 Stepwise decrease in atmospheric trace gases near the ground associated with rapid vertical mixing observed by a 3-D coherent Doppler lidar and in-situ tracer measurements
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 植木洗亘, 高島久洋, Martina M. Friedrich, 入江仁士
2. 発表標題 福岡都市圏におけるNO <sub>2</sub> の時空間変動 ~多地点MAX-DOASとドップラーライダーの複合的解析~
3. 学会等名 第 22 回 環境リモートセンシングシンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高島 久洋, 原圭一郎, 大平湧貴, 高見昭憲, 吉野彩子, 藤吉康志, 林政彦
2. 発表標題 地表大気ガス濃度の急減少 大気ガス成分直接観測と3-D コヒーレントドップラーライダーによる風観測
3. 学会等名 日本気象学会2019年度秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 植木洸亘, 高島久洋, Martina M. Friedrich
2. 発表標題 2地点MAX-DOAS観測とドップラーライダーの風観測を統合したNO2の時空間変動要因解析
3. 学会等名 第24回大気化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高島久洋
2. 発表標題 福岡都市圏で排出された環境物質のゆくえ
3. 学会等名 福岡から診る大気環境研究所公開講演会「福岡の大気環境と健康」
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	入江 仁士  (Irie Hitoshi)  (40392956)	千葉大学・環境リモートセンシング研究センター・准教授   (12501)	
研究分担者	乙部 直人  (Otobe Naohito)  (70320273)	福岡大学・理学部・助教   (37111)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	植木 洸亘  (Ueki Hironobu)	福岡大学・理学研究科・大学院生   (37111)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------