

地球観測衛星TROPOMIを用いた都市スケールのNO_x排出量の逆推計に関する研究

居倉，慎太郎
九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム学専攻

<https://hdl.handle.net/2324/4372171>

出版情報：九州大学，2020，修士，修士
バージョン：
権利関係：



令和 2 年度
九州大学大学院総合理工学府
大気海洋環境システム学専攻修士論文

地球観測衛星 TROPOMI を用いた
都市スケールの NO_x 排出量の逆推計
に関する研究

氏 名 居倉 慎太郎

指導教員名 弓本 桂也

目次

第 1 章 序論	2
1.1 大気汚染	2
1.2 排出インベントリ	5
1.2.1 ボトムアップ法	5
1.2.2 逆推計	6
1.3 地球観測衛星 TROPOMI	8
1.4 本研究の目的	9
第 2 章 観測データと解析手法	10
2.1 観測データ	10
2.2 解析手法	13
2.2.1 衛星データ解析	13
2.2.2 既往の逆推計手法	14
2.2.3 本研究で用いる逆推計手法	16
第 3 章 解析結果	19
3.1 衛星データ解析結果	19
3.2 逆推計結果	23
3.3 ボトムアップ法との比較	27
第 4 章 結言	28
謝辞	29
参考文献	30

第1章 序論

1.1 大気汚染

窒素酸化物(NO_x)は、ものの燃焼や化学反応によって生じる窒素と酸素の化合物であり、主に一酸化窒素(NO)と二酸化窒素(NO_2)の形で大気中に存在する($\text{NO}_x \equiv \text{NO} + \text{NO}_2$)。発生源からは、大部分が一酸化窒素として放出されるが、大気中で酸化されて二酸化窒素になる。

環境汚染物質の発生源は主に自然起源・人為起源に大別される。 NO_x の自然起源として火事や火山活動などの自然災害や雷による電氣的過程、土壌中の微生物による還元作用などが挙げられる。人為起源としては、工場、発電所、自動車や船舶、飛行機などが挙げられる。人為起源による NO_x は主に物質が燃焼する過程で生じており、高温・高圧で燃焼することで本来反応しにくい空気中の窒素と酸素が反応して NO_x になる場合（サーマル NO_x ）と、石炭やバイオマスといった燃料由来の窒素化合物から NO_x となる場合（フューエル NO_x ）がある。例えば、排気ガスや天然ガスボイラ（家庭用調理ガス器具を含む）などから排出される NO_x は前者が主であり、石炭が燃焼した場合の NO_x はそのほとんどが後者であることが知られている。

また、 NO_x は大気汚染物質のひとつであり、 NO_x がもたらす環境問題として主に光化学スモッグや酸性雨、オゾン層の破壊、地球温暖化が挙げられる。

光化学スモッグとは O_3 を主成分としたオキシダントが周辺の大気を酸化することで、周囲の見通し（視程）が低下した状態のことを指す。大気中の NO_2 は紫外線を吸収することで酸素原子を放出する。

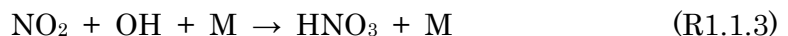


この酸素原子が大気中の酸素分子と結びつくことで O_3 が生成する。



ここで、 M は反応の過剰エネルギーを奪い反応を促す第3体である。(R1.1.1)及び(R1.1.2)の反応により NO_2 は光化学スモッグの発生に寄与しており、人間の目に刺激を与えたり喉の痛みや皮膚の発赤を引き起こしたりする原因となっている。

酸性雨とは、二酸化硫黄(SO_2)や窒素酸化物(NO_x)などを起源とする酸性物質が雨・雪・霧などに溶け込み、通常より強い酸性を示す現象である。 NO_x は主に硝酸(HNO_3)に酸化されることで大気中から消失するが、その過程は日中と夜間によって異なり、日中は



夜間は



により酸化される。(R1.1.3)～(R1.1.6)により生成した HNO_3 が大気中の水に溶け込み酸性化して降水することで、植物や森林を枯死させたり建造物や文化財を腐食したり土壌を劣化させる原因となっている。

NO_x はオゾン層の破壊を引き起こす物質としても知られている。成層圏において NO_x は、飛行機のエンジンで大気中の N₂ が高温で酸化されることや対流圏から生物の硝化・脱窒により生成される N₂O が輸送されることで発生するが、NO は(R1.1.7)及び(R1.1.8)の触媒反応によって O₃ を分解する。



また、N₂O は CO₂ の約 300 倍の温室効果がある気体として知られている。

大気汚染の現状について、Fig.1 に NO₂ 濃度の年平均値の推移を示す(環境省)。自排局とは、自動車排出ガス測定局の略称であり、自動車走行による排出物質に起因する大気汚染が考えられる交差点・道路・道路端付近の大気を対象にした汚染状況を常時監視する測定局のことである。一方、一般局とは、自動車の発生源の影響を直接受けない住宅地などの一般的な生活空間における大気汚染物質の測定を目的として設置されている観測局のことである。NO₂ 排出量は年々横ばいもしくは減少の傾向にある。NO₂ の環境基準は「1 時間値の 1 日平均値が 0.04ppm から 0.06ppm までのゾーン内又はそれ以下であること」であるが、一般局では 2006 年度以降全ての有効測定局で環境水準を達成している。自排局の環境基準達成率は 99.7%であり、高い水準で推移している。

また、Fig.2 に昼間の日最高 1 時間値の光化学オキシダント濃度レベル毎の測定局数の推移を一般局について示す(環境省)。光化学オキシダントの環境基準は「1 時間値が 0.06ppm 以下であること」であるが、環境基準を達成している測定局はほとんどなく、環境基準達成率は極めて低い水準となっている。自排局における環境基準達成率は 0%である。

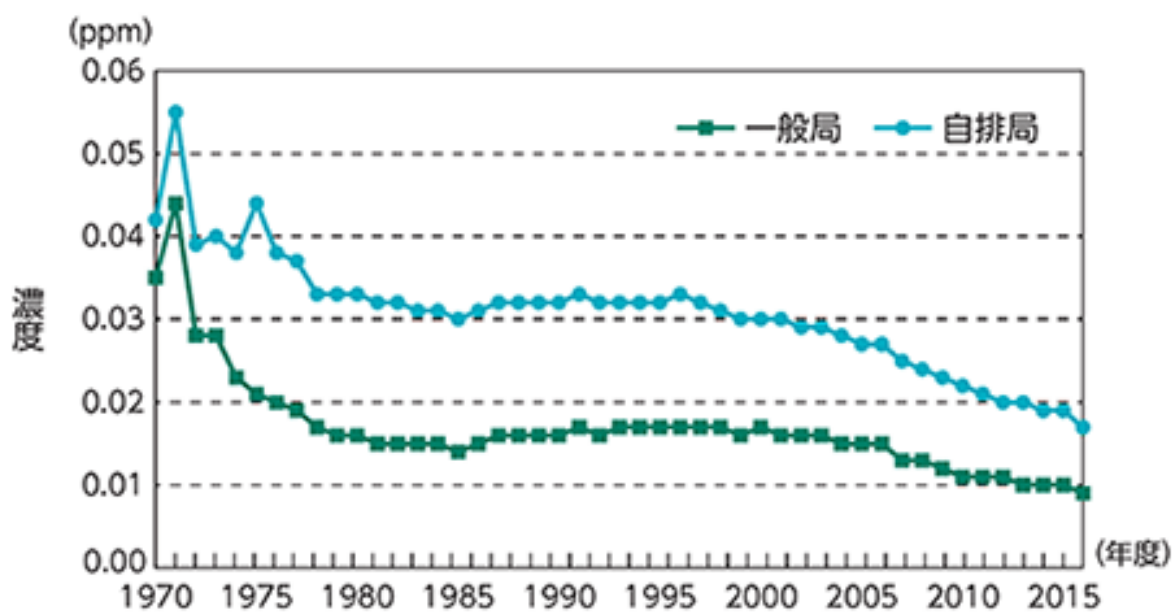


Fig.1 NO₂ 濃度の年平均値の推移(環境省)

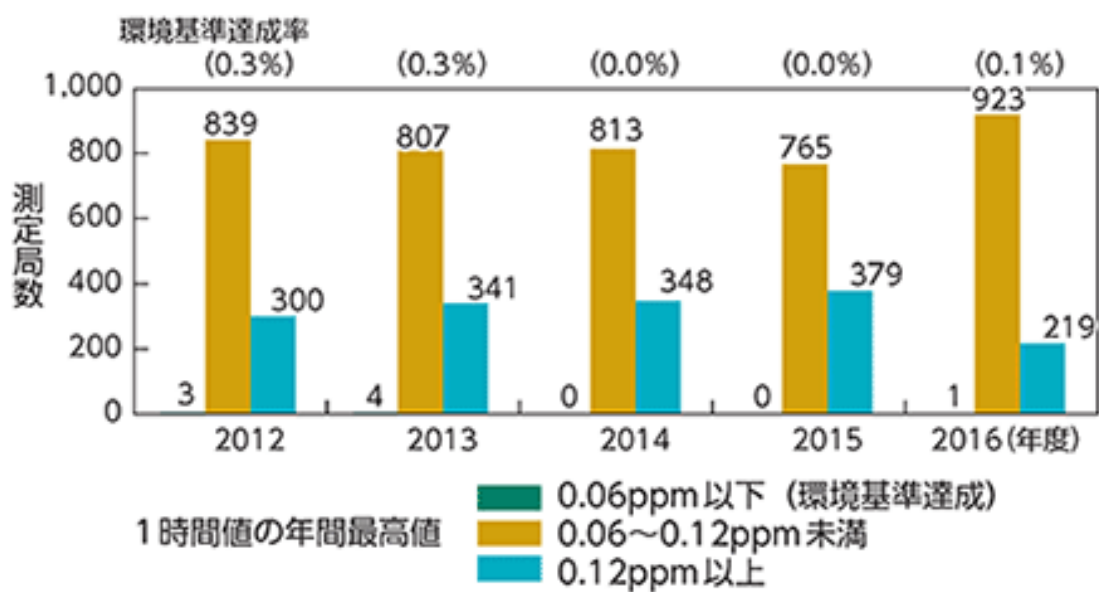


Fig.2 昼間の日最高1時間値の光化学オキシダント濃度レベル毎の測定局数の推移(一般局)
(環境省)

1.2 排出インベントリ

1.2.1 ボトムアップ法

排出量データとは、大気汚染物質が空間的・時間的にどのように大気中に排出されているかを示すデータベースであり、「目録」あるいは「一覧」を意味することから、排出インベントリ(Emission Inventory)とも呼ばれる。排出インベントリは、大気環境の理解や環境対策の検討に不可欠なものである。

大気汚染物質の排出量を推計する手法には 2 つの方法がある。一般的に用いられるのは、エネルギー消費や人口分布などの統計量を基に計算を行うボトムアップ法と呼ばれる手法である。排出量 E は、ごく単純化すると式(1.2.1)のように算出できる。

$$E_k = A_k \times EF_k \quad (1.2.1)$$

ここで A_k は排出源 k についての活動量(Activity Data)、 EF_k は排出係数(Emission Factor)と呼ばれる。排出をもたらす活動の大きさを示す活動量と単位活動量当たりの汚染物質の平均排出量を示す排出係数の積として排出量を算出する。ボトムアップ法では、これを基に各種統計量(石炭・石油消費量など)と排出係数や除去効率などの設定を積み上げて行う。

例えば、自動車の場合では単位走行距離あたりの大気汚染物質排出量が排出係数、自動車の走行距離が活動量に相当する。自動車の排出係数に関する情報は車種や年式別の排出規制情報、車速別の走行量の割合、大型車の場合には積載量、車が新車か劣化車かなど、様々な情報を基に作成される。

様々な工夫によって高度化されてきた排出インベントリだが、ボトムアップ法によって推計することには問題点が存在する。ひとつは推計の不確実性が高いことである。活動量や排出係数といった各データに含まれる不確実性は推計の過程で積算されるため、最終的な推計結果に含まれる不確実性も大きくなる。もうひとつは推計までに数年のタイムラグが生じることである。推計するための基礎となる各種統計資料が公開されるのに数年の時間を要するため、排出インベントリの整備に時間がかかり、ボトムアップ法によるリアルタイム推計を難しくしている。

1.2.2 逆推計

ボトムアップ法の問題点を補うために大気汚染物質の排出量を推計するもうひとつの手法として逆推計(インバージョン, トップダウン法とも呼ばれる)が用いられている。逆推計とは, 数値アルゴリズムやモデルを用いて観測データから排出量を逆算するという手法である。ボトムアップ法と比較したメリットとして, 逆推計においては観測データが拘束条件となるため, 観測された濃度場が推計に反映されることから推計の確実性が高いことが挙げられる。そして, 逆推計に必要な観測データは統計量に比べて格段に早く入手できるため, リアルタイム性の高い推計を行うことができる。

Fig.3 に地球観測衛星 OMI により実際に観測された NO_2 鉛直カラム濃度と先見統計量を用いた標準計算及び逆推計によって推計された NO_2 鉛直カラム濃度の分布を示す(Yumimoto, K.(2015)). 北京から上海に至る中国中央部・東岸地域で濃度の濃い地域が広がっていることが分かる。中央の図が標準計算により算出されたカラム濃度分布に相当するが, こちらは左側の図の衛星により観測されたカラム濃度と比較すると NO_2 の空間分布・季節変化をおおむね再現できているが, 観測された特徴を捉えきれていない部分もある。例えば, 瀋陽周辺(X), 西安周辺(Y), 成都・重慶周辺 (Z)のように計算が常に過小・過大になっている地域がある。特に4月と10月の場合は山東省や河北省周辺の濃度を過大に評価している。これらの差異の原因として, 排出インベントリや化学輸送モデルの誤差に加え, インベントリがまだ整備されていない部分を過去のインベントリを簡易的にスケーリングして用いていることが挙げられる。右側の図は逆推計によるカラム濃度分布を示しており, 衛星により観測された濃度分布と並べてみると逆推計による効果がよく見て取れる。逆推計によって, カラム濃度の空間分布は観測された分布に近づき, 大都市周辺に見られた過大・過小評価も改善している。

以上より, 逆推計による NO_2 排出量の計算は, ボトムアップ法に比べて情報の信頼性・リアルタイム性が高く, より正確に計算することができると考えることができる。

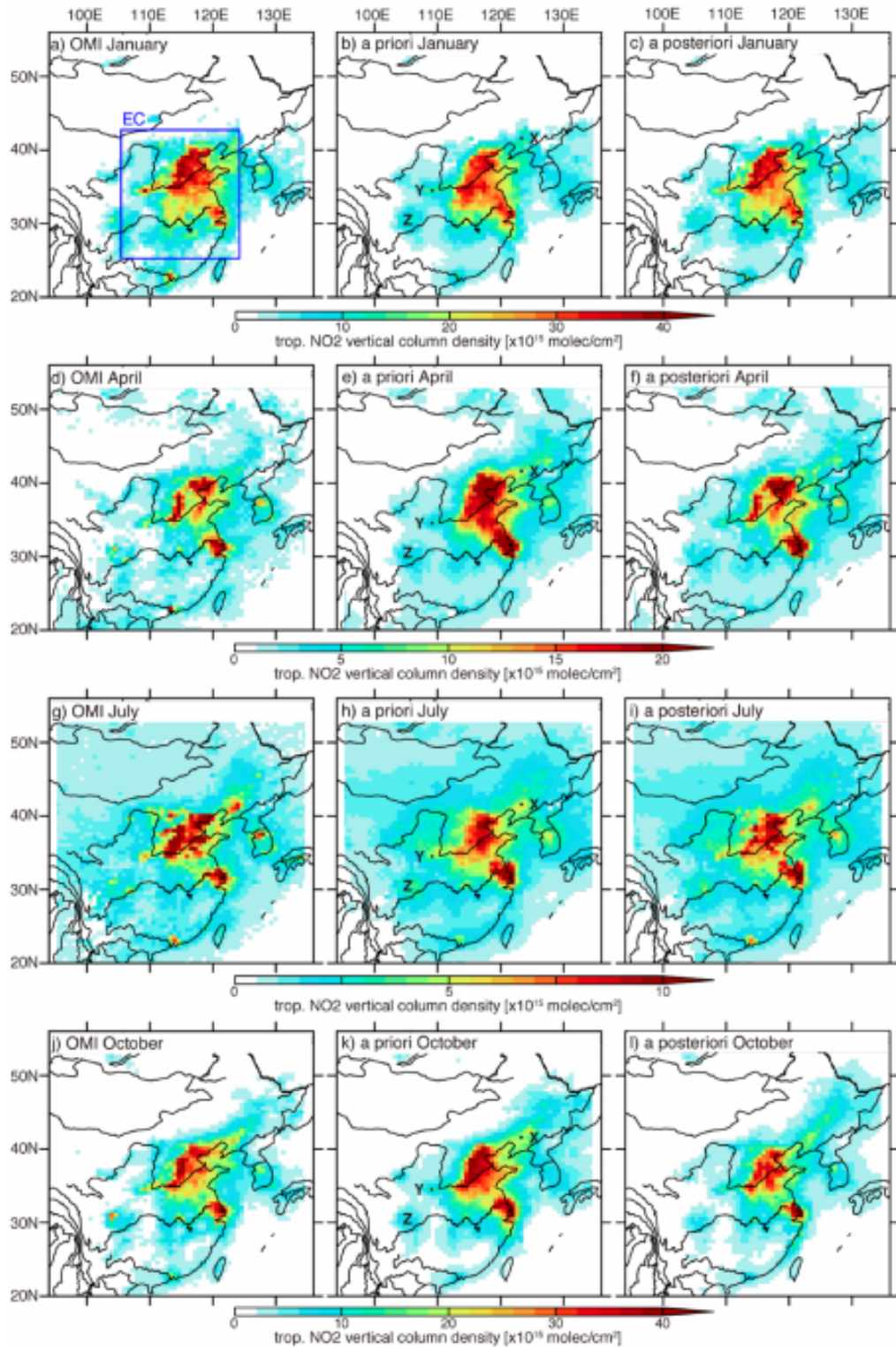


Fig.3 中国の2010年1月(a,b,c),4月(d,e,f),7月(g,h,i),10月(j,k,l)におけるNO₂鉛直カラム濃度をOMIにより観測した場合(左),先見統計量を用いた標準計算により算出した場合(中央),逆推計により算出した場合(下段) (Yumimoto, K(2015))

1.3 地球観測衛星 TROPOMI

TROPOMI(TROPOspheric Monitoring Instrument)は人工衛星 Sentinel-5 Precursor に搭載されたセンサであり,2018 年 11 月に正式運用された.TROPOMI は紫外線・可視光線・近赤外線・短波赤外線を観測する波長帯を有しており,大気中の O_3 , CH_4 , $HCHO$, CO , NO_2 , SO_2 , エアロゾルをモニタリングすることができる.また,気候変動やオゾンホール形成などの研究のみならず,航空機の安全のために火山灰をモニタリングしたり,紫外線が強い場合に肌へのダメージを警告するようなサービスに用いられ,その用途は多岐にわたる.

表 1 に各 NO_2 観測衛星の空間分解能と測定頻度を示す(Uno, I. et al.(2021)).1995 年に衛星センサ GOME (Global Ozone Monitoring Experiment)が打ち上げられ,その後衛星観測は SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY),OMI (Ozone Monitoring Instrument),GOME-2 などの衛星で空間分解能と測定頻度を向上させながら継続され,最新の衛星である TROPOMI では空間分解能 $7 \times 3.5km$ の解像度を持つ NO_2 データが得られるに至っている.従って,TROPOMI は従来のセンサに比べて解像度が高く,都市スケールでの観測が可能である.

また,Fig.4 に TROPOMI と OMI で観測された NO_2 カラム濃度の比較を示す(Griffin, D. et al.(2018)).上段は 2018 年 4 月 9 日の NO_2 カラム濃度を(a)は TROPOMI,(b)は OMI で観測した分布を示す.分解能が高い TROPOMI の方が OMI より詳細に分布を示している.下段は 2018 年 3-5 月の間で平均した NO_2 カラム濃度を(c)は TROPOMI,(d)は OMI で観測した分布を示す.(d)から, NO_2 が分布している地域を読み取ることはできるが(c)ではその地域に 2 ヶ所の排出源が存在することを明確に示すことができている.

表 1 NO_2 観測衛星の空間分解能と測定頻度 (Uno, I. et al.(2021))

衛星センサ	観測期間	空間分解能/頻度	計測時間	主要な成分	搭載衛星
GOME	1995-2003	$40 \times 320km/3$ 日	10:30	#, $OC10$	ERS-2
SCIAMACHY	2002-2012	$30 \times 60km/6$ 日	10:00	#, N_2O , CO , CO_2 , CH_4 , IO	ENVISAT
OMI	2004-	$12 \times 24km/1$ 日	13:45	#	Aura
GOME-2A/2B	2007-/2013-	$40 \times 40km/1.5$ 日	9:30	#, $OC10$	MetOp A/B
TROPOMI	2017. 10-	最高 $7 \times 3.5km/1$ 日	13:35	#, CO , CH_4	Sentinel-5P
GEMS*	2020. 2. 19 打ち上げ	$7 \times 8km/1$ 時間	1 時間毎 (予定)	#, aerosol	GEO-KOMPSAT-2B (千里眼 2B)

#= O_3 , NO_2 , SO_2 , $HCHO$, $CHOCHO$, BrO ,

* 静止衛星 (Geostationary Environment Monitoring Spectrometer)

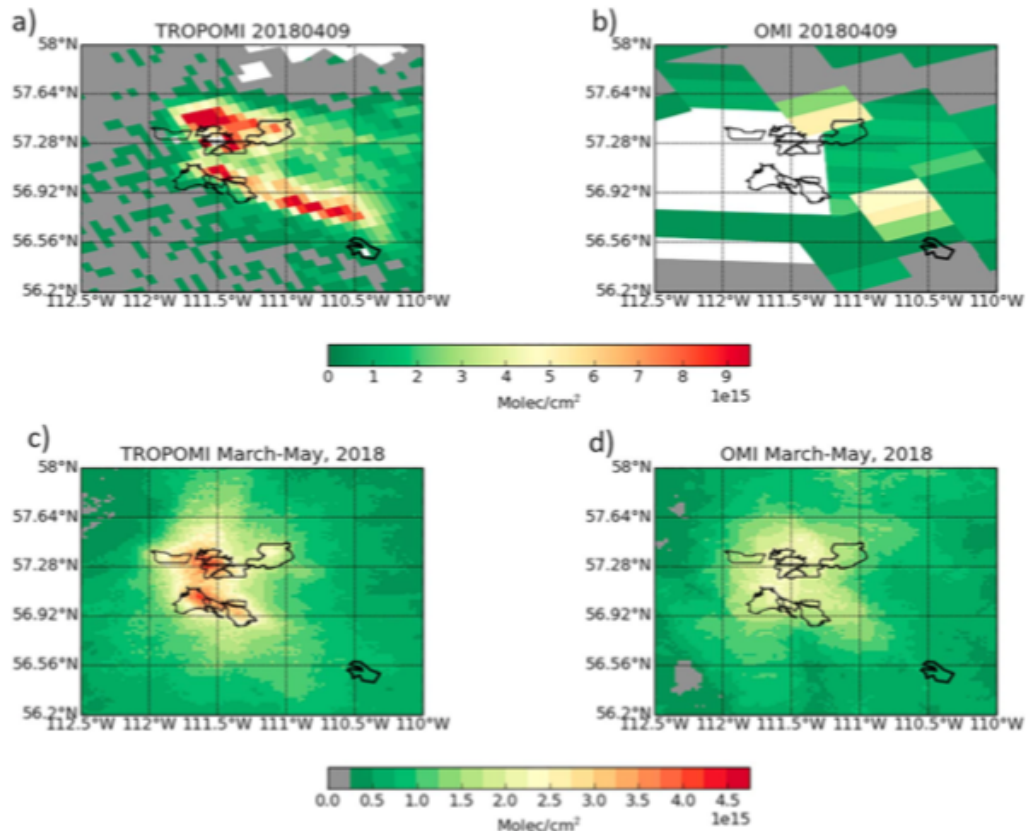


Fig.4 Athabasca Oil Sands 周辺地域(カナダ)における NO_2 カラム濃度を(a)2018 年 4 月 9 日に TROPOMI で観測した分布(b) 2018 年 4 月 9 日に OMI で観測した分布(c)TROPOMI で観測した分布を 2018 年 3-5 月の間で平均した濃度(d)OMI で観測した分布を 2018 年 3-5 月の間で平均した濃度(Griffin, D. et al.(2018))

1.4 本研究の目的

以上から,TROPOMI の観測データを用いることで,都市スケールで NO_2 濃度を観測し,逆推計を行うことができると考えられる.そこで本研究では, NO_2 濃度分布を解析することで都市スケールの逆推計手法を確立することを目的とし,その手法を用いて都市・地域の NO_x 排出量の推定を試みる.

2 章では,本研究で行った衛星データ解析及び逆推計の手法について説明する.逆推計の手法の参考にした既往の研究についても合わせて述べる.

3 章では,衛星データ解析及び逆推計によって得られた結果を示すと共にその考察を行う.

4 章では,本研究で得られた結果を総括して結論を述べる.

第2章 観測データと解析手法

2.1 観測データ

本研究では、逆推計には TROPOMI センサで 1 日ごとに観測された NO₂ 鉛直カラム濃度 (Vertical Column Density ; NO₂-VCD) をデータとして用いる。観測データには NO₂-VCD の他に風速、風向、位置(緯度・経度)、QA 値の情報が含まれている。ここで、QA(Quality Assurance) 値はデータの信頼度を表す指標であり、太陽の天頂角や雲の割合によって決定される。

Fig.5-8 に例として 2020 年 4 月 24 日の観測データを示す。Fig.5 は平均に用いたデータ数の分布を示している。本研究では、観測データを 0.02°×0.02°のグリッドに平均化して用いており、それらが緯度方向及び経度方向に並べられることでマップを形成している。2020 年 4 月 24 日では衛星は Fig.5 の範囲ではロシアから中部・関東地方を通過して太平洋へ抜けていく観測路と中国から近畿地方を通過して太平洋へ抜けていく観測路の 2 つを左右に首を振るように動きながら進行し、太陽光が地上から反射された光を検知することで各データを収集する。従って、衛星の観測路下は解像度が細かく、データ数が多くなる傾向がある。データ数が多くなることで、データの正確性・信頼性は向上する。また、データ観測は気象条件に大きく影響を受ける。雲や雪が存在すると反射光を検知できないことがあるため、その地域ではデータ数が少なくなる。2020 年 4 月 24 日では東北地方北西部や北朝鮮・平安北道、中国・遼寧省がそれに該当し、これらの地域では曇天であったと考えられる。

Fig.6 は 2020 年 4 月 24 日の NO₂-VCD の分布を示している。首都圏地域や大阪周辺において高いカラム濃度を示しており、産業活動が活発に行われたと考えられる。北朝鮮・東韓湾においてもカラム濃度が高くなっているが、これはセンサが雲を NO₂ だと誤認したことや海面の色が汚染などの影響を受けて変色している場合に反射光をセンサが吸光する際にエラーが生じたことが原因として考えられる。また、白色で示されている範囲はデータを取得できなかった地域であり、Fig.5 におけるデータ数が少ない地域の範囲とほぼ一致している。

Fig.7 は 2020 年 4 月 24 日の風速の分布、Fig.8 は同日の風速ベクトルの分布を示している。Fig.7 より、伊豆諸島周辺地域と隠岐諸島周辺地域を主とした日本大陸近海の数カ所において強い風が吹いている様子が読み取れる。Fig.8 では風速をベクトルの形で観察することができ、Fig.7 における風速が大きい地域を Fig.8 でも網羅している。さらに、ベクトル表記であるため風向も同時に読み取ることができる。また、Fig.6 と同様に、Fig.7 において白色で示されている範囲はデータを取得できなかった地域であり、Fig.8 の場合はベクトルが表記されていない。

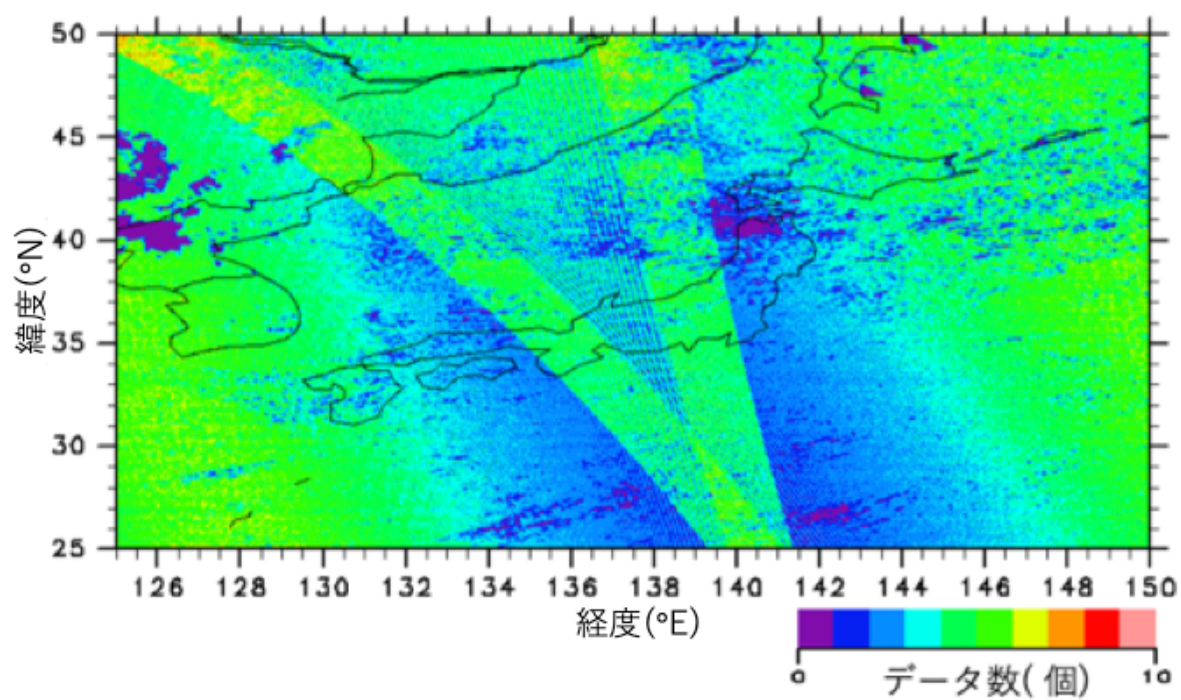


Fig.5 2020 年 4 月 24 日における観測データ数の分布

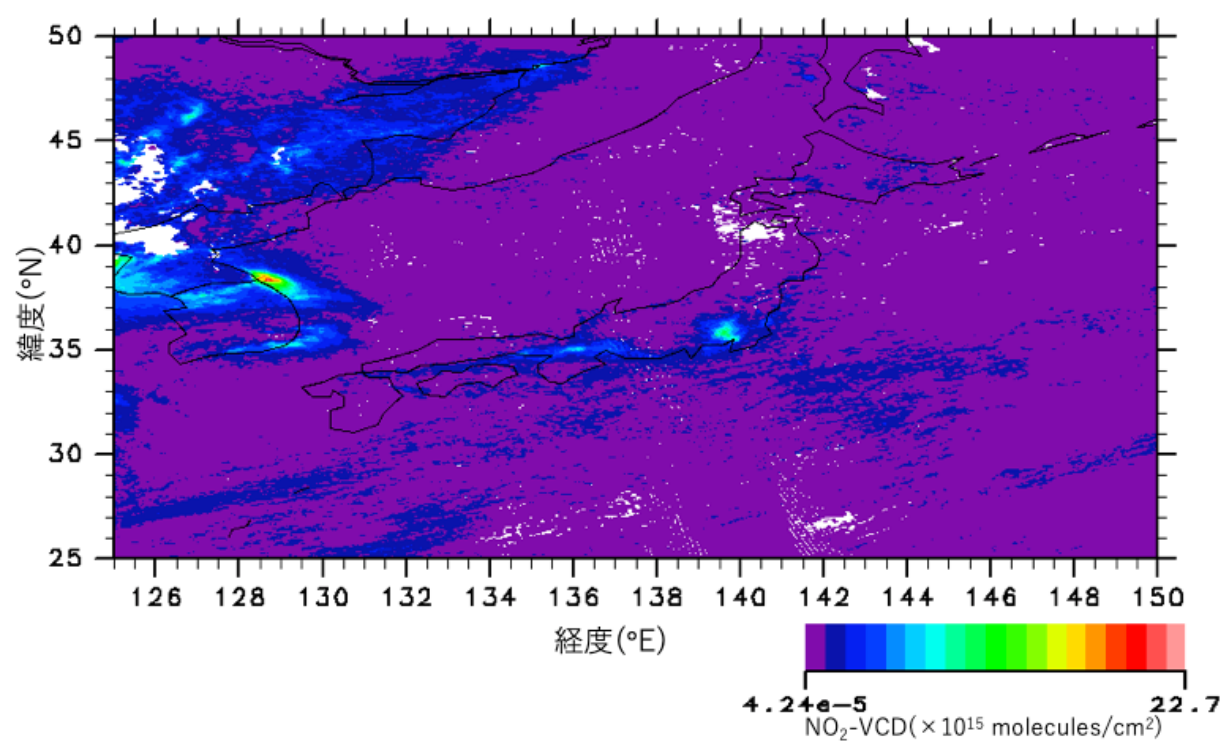


Fig.6 2020 年 4 月 24 日における NO_2 -VCD の分布

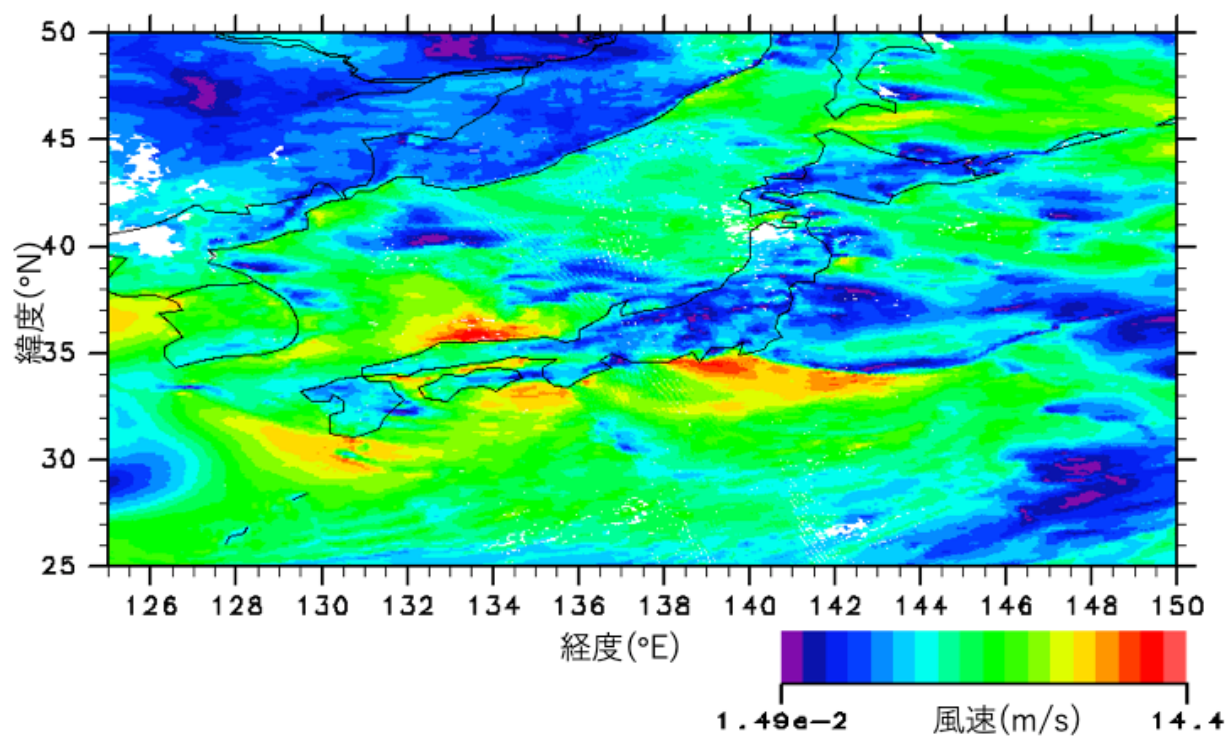


Fig.7 2020 年 4 月 24 日における風速の分布

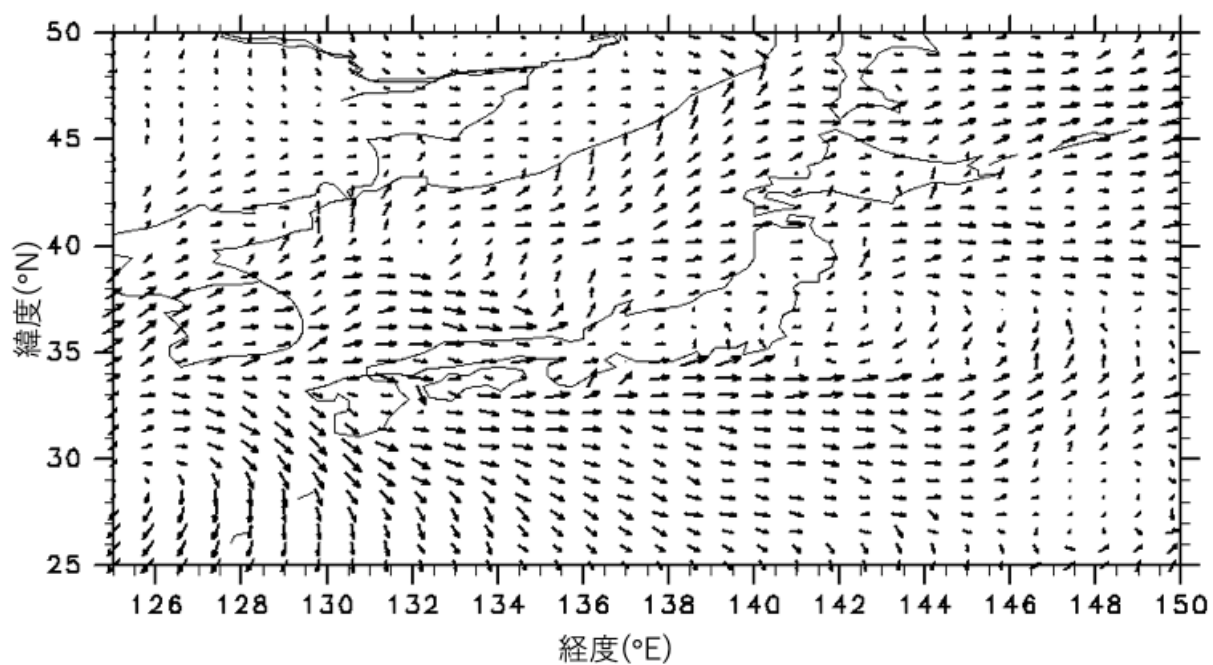


Fig.8 2020 年 4 月 24 日における風速ベクトルの分布

2.2 解析手法

2.2.1 衛星データ解析

本研究では、日本において最も NO_x 排出量が多いと考えられる首都圏地域を対象に逆推計を行った。日本では新型コロナウイルスの影響を受け 2020 年 4 月 7 日に緊急事態宣言が発令され、産業活動の自粛が求められた。これにより、緊急事態宣言の前後で社会の活動量が大きく変化し、その影響は NO_x 排出量にも表れると考えられる。また、同じ期間において緊急事態宣言が発令された 2020 年と発令されていない 2019 年の NO_x 排出量を比較することで、緊急事態宣言による産業活動への影響を直接的に考察することができると考えられる。従って、観測データの解析を 2019 年 12 月から 2020 年 2 月、2020 年 4 月から 2020 年 6 月、2019 年 4 月から 2019 年 6 月の各 3 ヶ月の期間について行った。以下にその手順を述べる。

はじめに、解析に使用する観測データの品質を確かめるために QA 値が 0.75 以上の各データの NO_2 -VCD の確認を行った。 NO_2 の排出は首都圏周辺に多いと考えられるため、雲などの影響を受けて首都圏周辺のデータを取得できていない日の観測データは使用しない。Fig.9 に解析に使用しなかった観測データの例を示す。神奈川県を中心にデータが欠損していることが読み取れる。神奈川県は工業地域があり交通量も多いため、首都圏地域の NO_2 排出量に大きな影響を与えると考えられる。従って、その地域のデータが抜けている 2020 年 4 月 20 日のデータは使用していない。

続いて首都圏周辺における各データの風速を調べ、風速が大きいデータと小さいデータに仕分けを行なった。それぞれのデータの母数に偏りが出ないようにするため、データを仕分けの際の風速の基準を本研究では 4m/s とした。風速でデータを区別した理由は、逆推計を行う際に、風速が小さい場合の NO_2 分布と風速が大きい場合の NO_2 分布に表れる差を用いて NO_x 排出量を計算するためのパラメータを決定するためである。具体的な逆推計手法は後述する。また、表 2 に各推計期間において NO_2 分布を求めるために用いた日数を示す。

最後に各推計期間において仕分けたデータのすべての和を取り、日数で除することで NO_2 分布を求めた。

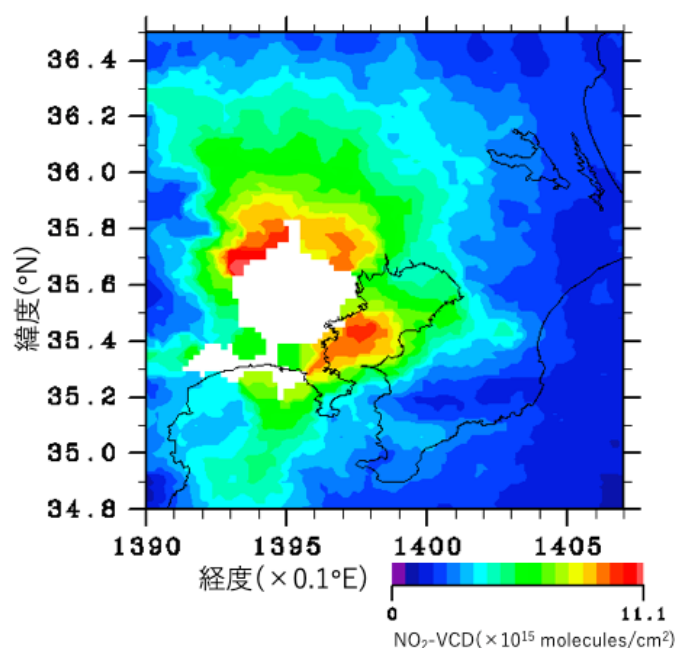


Fig.9 2020 年 4 月 20 日における NO₂-VCD の分布

表 2 各推計期間において NO₂ 分布を求めるために用いた日数

	2019年12月～2020年2月	2019年4月～2019年6月	2020年4月～2020年6月
風速4m/s以下	22	26	20
風速4m/s以上	18	15	20

2.2.2 既往の逆推計手法

本研究で用いる逆推計手法の参考とした Beirle, S. et al.(2011)と Goldberg, L et al.(2019)の手法について概説する.彼らは OMI 及び TROPOMI センサで得られた NO₂-VCD をガウス分布を基にした関数にフィッティングすることで NO₂ 排出量を推計している.

Fig.10 はニューヨーク周辺地域において 2018 年 5-9 月の NO₂-VCD を用いて NO_x 排出量を逆推計した結果を示している.左図は 2018 年 5-9 月の NO₂-VCD を全て足し合わせて日数で除したデータ,即ち 1 日あたりの平均 NO₂-VCD 分布を表している.しかし,NO₂ の分布は風速及び風向に大きく影響を受けるため,それを考慮していない左図の情報は逆推計に用いるのに不適切である.そこで,右上の図では,各日付の NO₂-VCD データを左図の NO₂-VCD が最大となる位置を中心に風向が東となるように回転させ,回転の中心の座標付近の風速が 3m/s 以上のデータのみを足し合わせてそのデータ数で除している.これにより NO₂ 分布に風による輸送の影響が表れることが想定され,かつ風向は一方向であり風向の影響を考慮せずに考察をすることが可能になった.右上の図において,y=0 における x 方向の NO₂ の線密度(NO₂ line density(kmol/km))を示した図が右下の図の青色の曲線に相当する.

Goldberg, L. et al.(2019)では, この曲線を近似する関数として(2.1)を用いた.

$$\text{NO}_2 \text{ line density} = \alpha \left[\frac{1}{x_0} \exp \left(\frac{\mu}{x_0} + \frac{\sigma^2}{2x_0^2} - \frac{x}{x_0} \right) \Phi \left(\frac{x-\mu}{\sigma} - \frac{\sigma}{x_0} \right) \right] + \beta \quad (2.1)$$

右下の図において水色の曲線が(2.1)に相当する.ここで, β は自然に存在する NO_2 の分子数 (background NO_2), α は NO_2 排出量のピーク位置付近の NO_2 の総分子数から β を引いた値, μ は都市の中心に対する見かけの中心,つまり NO_2 の線密度が最大となる x を表している. σ は標準偏差, x_0 は NO_2 の減衰の規模を示す距離, Φ は累積分布関数を表している.(2.1)より決定した各パラメータを用いて(2.2),(2.3)により NO_x 排出量を求めた.

$$\tau_{\text{effective}} = \frac{x_0}{w} \quad (2.2)$$

$$\text{NO}_x \text{ emissions} = 1.33 \left(\frac{\alpha}{\tau_{\text{effective}}} \right) \quad (2.3)$$

ここで, w は風速, $\tau_{\text{effective}}$ は NO_2 の寿命を表す.(2.3)に含まれる 1.33 は平均的な NO_x 量と NO_2 量の比である.

また, Beirle, S. et al.(2011)では風速が小さい場合の NO_2 -VCD 分布が正規分布の関数形に類似していることから NO_2 -VCD 分布を正規分布に近似することで表現し,風速が大きくなる場合の影響は正規分布の式に指数関数を畳み込み積分することで表現するという手法を用いている.本研究では NO_2 -VCD 分布を表現する手法として Beirle, S. et al.(2011)の手法を用いるため,次節で詳述する.

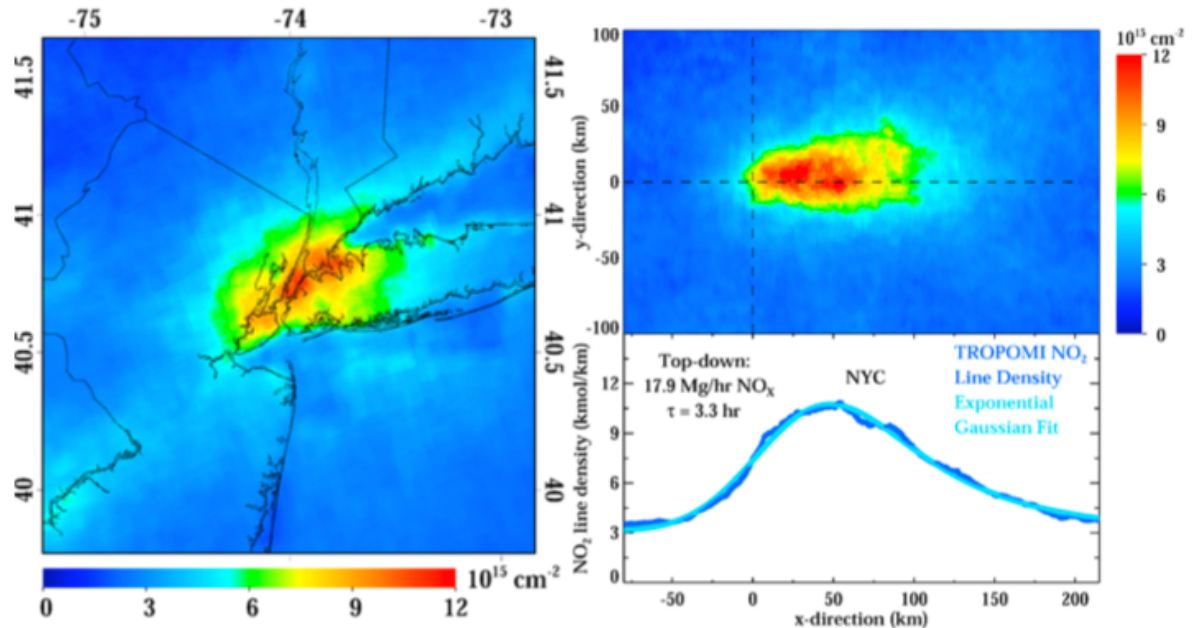


Fig.10 ニューヨーク周辺地域において 2018 年 5-9 月の NO_2 -VCD を用いて NO_x 排出量を逆推計した結果(Goldberg, L. et al.(2019))

2.2.3 本研究で用いる逆推計手法

本研究では 2.2.2 節で述べた Beirle, S. et al.(2011)と Goldberg, L. et al.(2019)の手法を参考に逆推計を行った.以下にその手順を述べる.

まず,2.2.1 節で述べた手法で衛星データ解析を行うことで得られた NO₂ 分布より,NO₂ の排出量が最も多い地点を排出源の中心と考えた.ここで,排出源の中心は風速が小さい日のデータのみを用いて作成した分布図を基準とした.風速が大きいと風の影響によって排出源の中心が移動する可能性が高いと考えられるため,風速が小さい場合を基準とし,風速の違いによる排出源の中心の位置のずれを風の影響として考える方が適している.

次に,2.2.1 節で述べた手法で作成した NO₂ 分布は風向の影響を考慮せずに作成しているため,逆推計に用いるのに不適切である.そこで,排出源の中心を基準にその周辺の各日のデータの風向を調べ,各データの排出源の中心付近の風向が東方向になるように,排出源の中心を基準に NO₂ 分布のみを回転させ,改めてそれらのデータを集計して 3 ヶ月平均の NO₂ 分布図を作成した.具体例を 2020 年 4 月 17 日のデータを例に述べる. Fig.11 は 2020 年 4 月 17 日の NO₂ 分布図, Fig.12 は同日の風速ベクトル分布図である.図中の赤丸は排出源の中心の位置であり,3.1 節で詳述する.これらより, 2020 年 4 月 17 日における排出源の中心の位置付近の風向は北西であり, NO₂ の分布は風の影響を受けて北西方向に移動していると考えられる.風は全て東方向に吹いているものとして逆推計を行うため,排出源の中心の位置を基準に Fig.11 の NO₂ 分布を時計回りに 135° 回転させた.その結果を Fig.13 に示す.同様の手順で他の日付のデータも風向が東方向になるように NO₂ 分布を回転させた.

続いて,上記の手法で作成した NO₂ 分布図を用いて,北緯 35.58° における経度方向の NO₂ の線密度を示す曲線を描画し,その曲線を関数に近似した.近似の手法は以下の通りである.

風速が小さい場合,排出源から排出された NO₂ は全方向に一樣に拡散し,濃度は排出源の位置から遠くなるにつれて一樣に減少すると考えることができる.Beirle, S. et al.(2011)では,その様子を正規分布に近似しており,本研究においても同様の近似を行なった.風速が小さい場合の NO₂ の線密度を近似する関数を(2.4)に示す.

$$\text{NO}_2 \text{ line density} = \alpha \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) \right] + \beta \quad (2.4)$$

変数の定義は 2.2.2 節と同様である.風速が大きくなると,風の影響を受けて NO₂ の分布は風速が小さい場合の分布から風下にずれると考えることができる. Beirle, S. et al.(2011)では,その様子を(2.4)に指数関数を畳み込み積分することで表現しており,本研究においても同様の表現を行った.畳み込み積分に用いた指数関数を(2.5),(2.6)に示す.

$$e(x) = \lambda \exp\left(-\lambda \frac{(x-\mu')}{x_0}\right) \quad (x \geq \mu') \quad (2.5)$$

$$e(x) = 0 \quad (x < \mu') \quad (2.6)$$

ここで, λ は母数, μ' は風速が大きい場合の NO₂ 分布における都市の中心に対する見かけの中心である.(2.4),(2.5),(2.6)より決定した各パラメータを用いて(2.2)及び(2.7)により NO_x 排出

量を求めた.

$$\tau_{effective} = \frac{x_0}{w} \quad (2.2)$$

$$NOx\ emissions = 1.33\left(\frac{\alpha\lambda}{\tau_{effective}}\right) \quad (2.7)$$

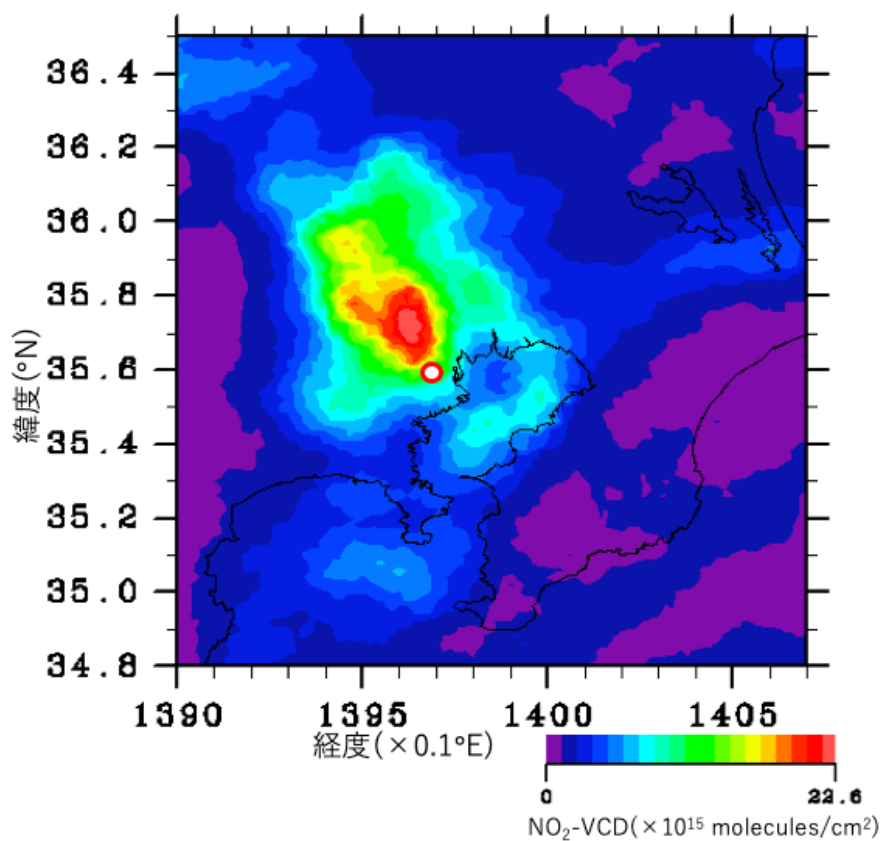


Fig.11 2020 年 4 月 17 日における NO₂-VCD の分布

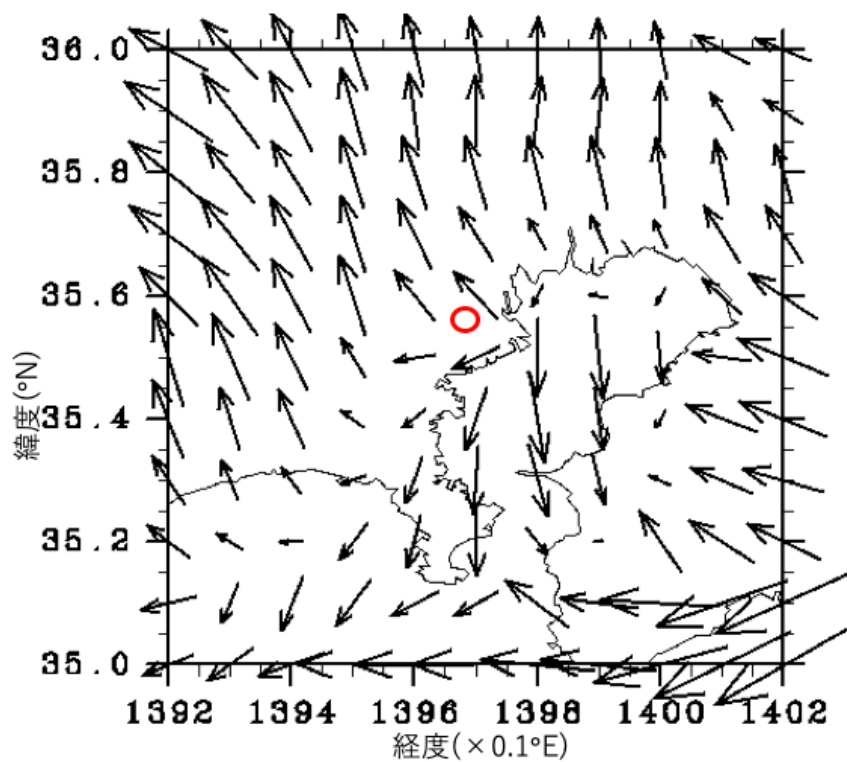


Fig.12 2020 年 4 月 17 日における風速ベクトルの分布

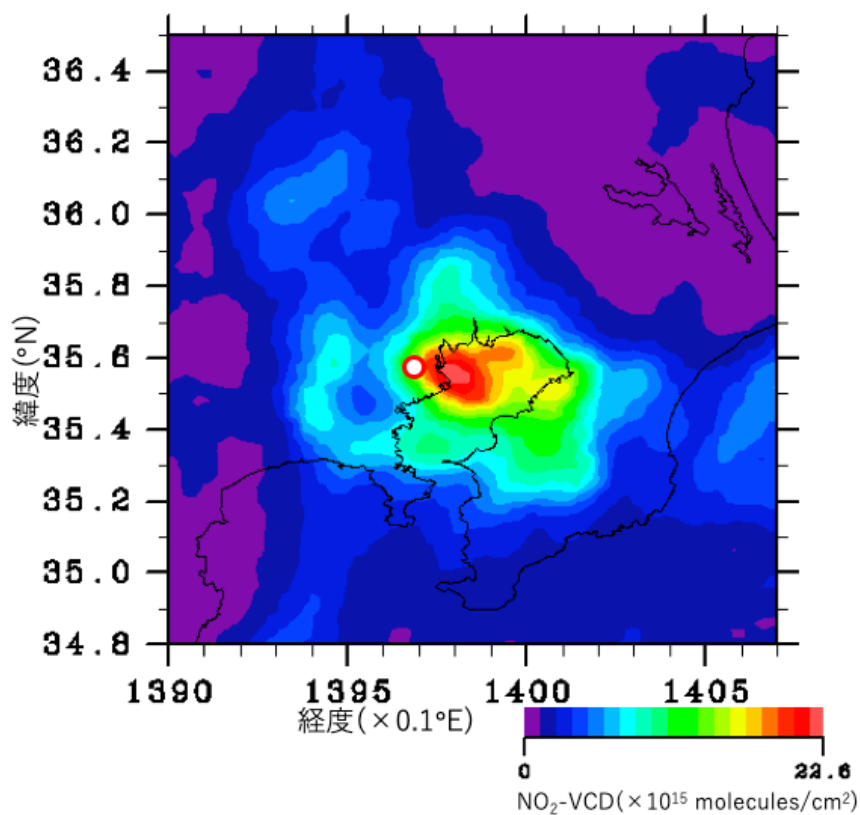


Fig.13 2020 年 4 月 17 日における NO_2 -VCD の分布を時計回りに 135° 回転させた結果

第3章 解析結果

3.1 衛星データ解析結果

2.1 節で述べた手法で衛星データ解析を行った結果を Fig.14 から Fig.19 に示す。風速 4m/s 以下における NO_2 分布を見ると、濃度のピークは神奈川県川崎市付近にあることが読み取れ、首都圏地域において NO_2 は全体として川崎市を中心に発生し周囲に拡散・輸送されることが考えられる。従って、本研究では川崎市を排出源の中心(北緯 35.58°, 東経 139.7°)として考える。いずれの期間においても風速が大きくなることで NO_2 分布が移動しており、風による輸送の影響が表れていると考えられる。また、風速が大きくなることで NO_2 のピーク濃度が低下しており、風による拡散の影響が表れていると考えられる。2019 年 4 月から 6 月と 2020 年 4 月から 6 月の NO_2 分布を比較すると、2020 年の方が NO_2 の濃度が低いことが読み取れる。2020 年 4 月 7 日に新型コロナウイルスの影響を受けて緊急事態宣言が発令されたことで、産業活動が鈍化し、 NO_2 の排出量が減少したと考えられる。2019 年 12 月から 2020 年 2 月と 2020 年 4 月から 6 月の NO_2 分布を比較しても同様に緊急事態宣言発令後の NO_2 濃度は発令前より低下している。

そして、川崎市周辺とは別に茨城県の海岸沿い(北緯 35.9°, 東経 140.65° 辺り)に NO_2 の排出が確認できるが、これは国内最大規模の火力発電所である鹿島火力発電所の活動により発生したものであると考えられる。

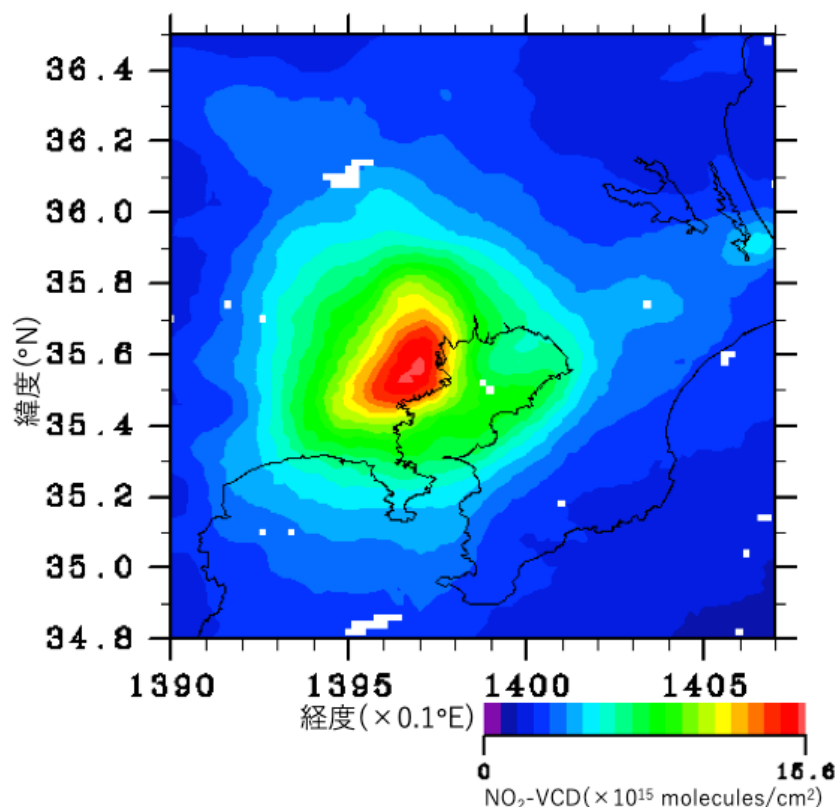


Fig.14 風速 4m/s 以下における 2019 年 12 月から 2020 年 2 月の平均 NO_2 -VCD 分布

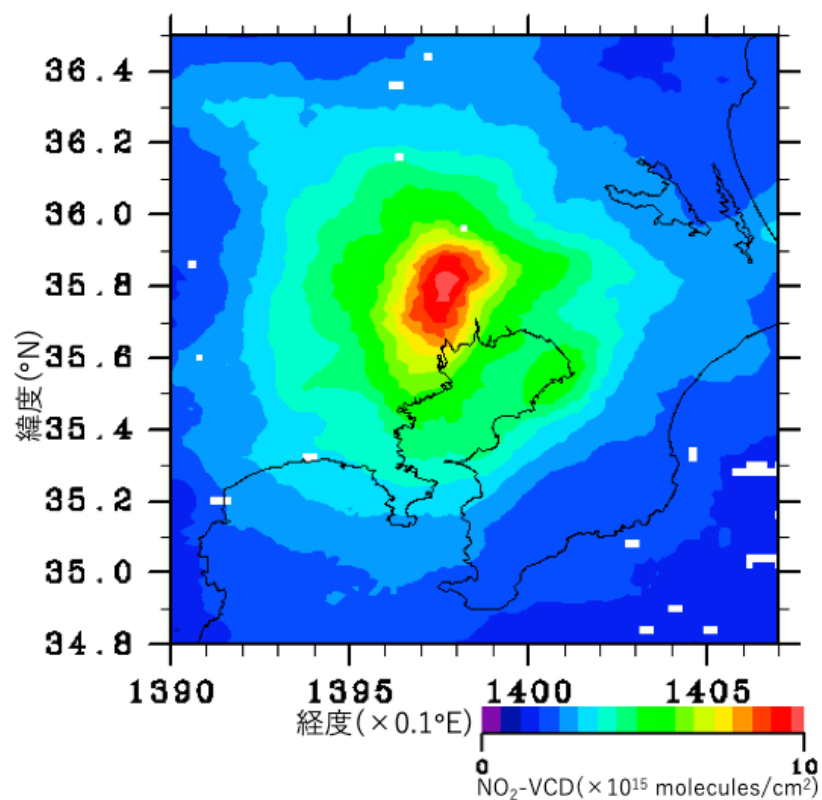


Fig.15 風速 4m/s 以上における 2019 年 12 月から 2020 年 2 月の平均 NO₂-VCD 分布

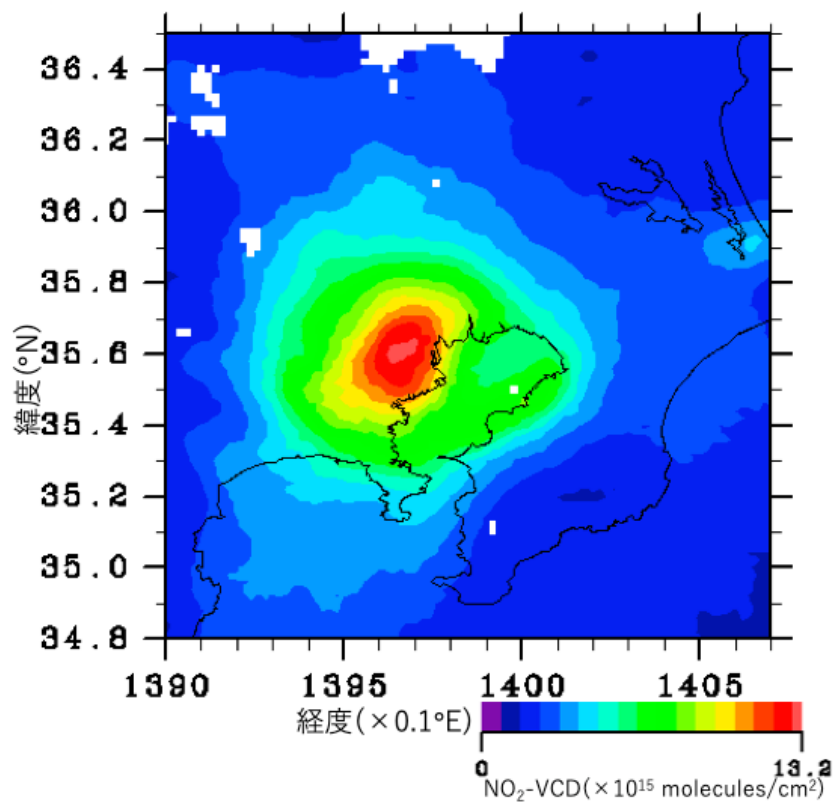


Fig.16 風速 4m/s 以下における 2020 年 4 月から 2020 年 6 月の平均 NO₂-VCD 分布

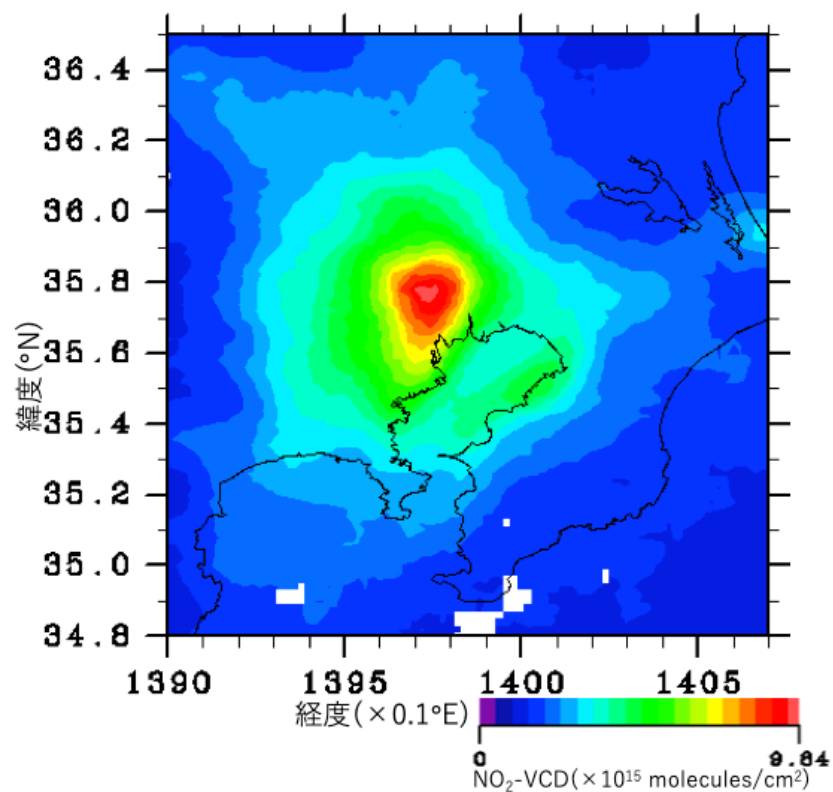


Fig.17 風速 4m/s 以上における 2020 年 4 月から 2020 年 6 月の平均 NO₂-VCD 分布

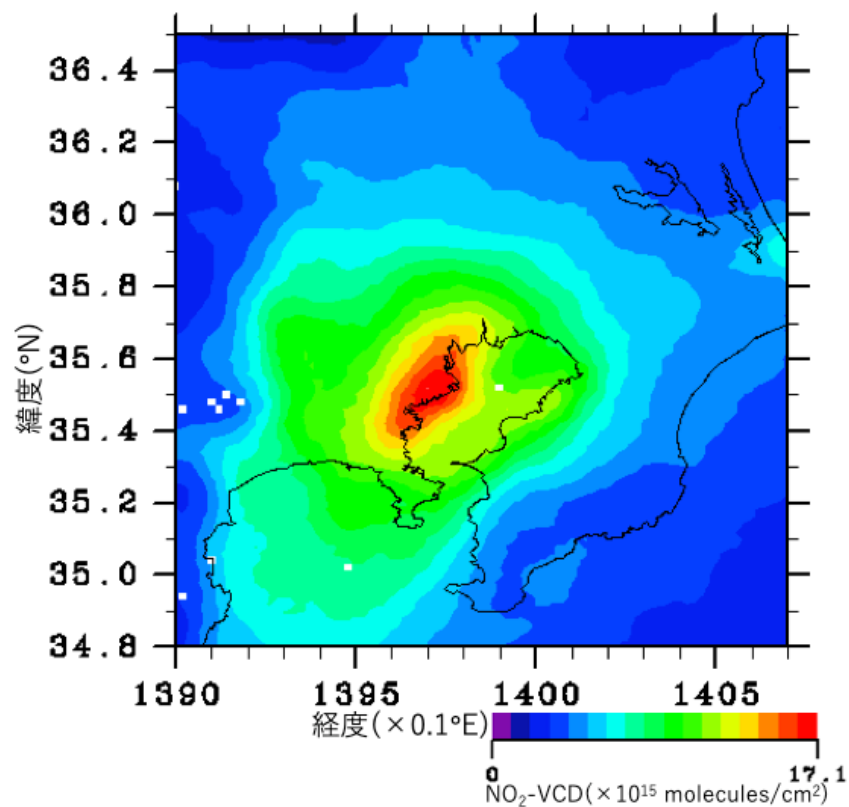


Fig.18 風速 4m/s 以下における 2019 年 4 月から 2019 年 6 月の平均 NO₂-VCD 分布

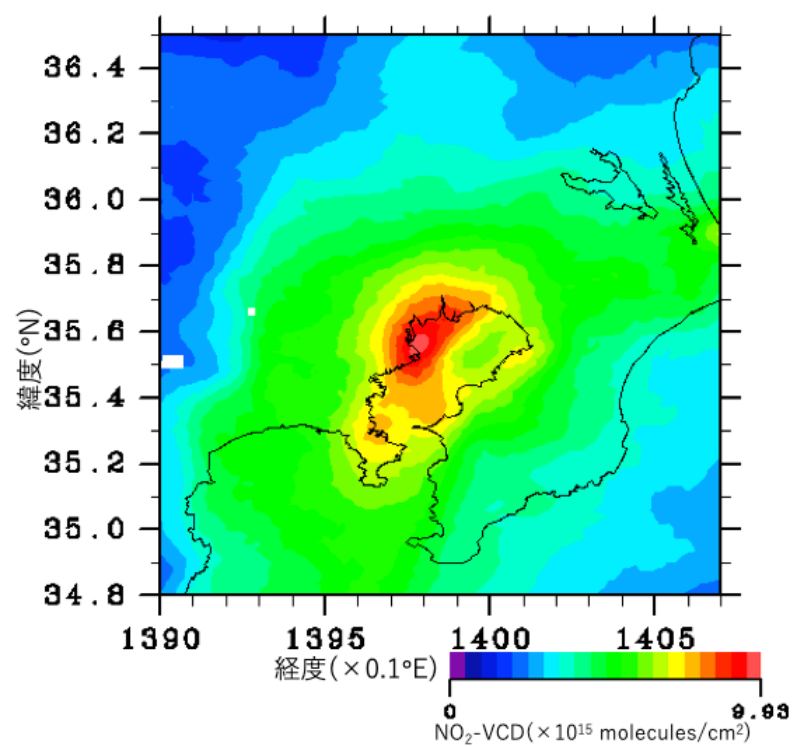


Fig.19 風速 4m/s 以上における 2019 年 4 月から 2019 年 6 月の平均 NO₂-VCD 分布

3.2 逆推計結果

本節では2.2.3節で述べた手法を用いて逆推計を行った結果を示す.まず Fig.20 から Fig.22 に風速 4m/s 以下における NO_2 の線密度の分布を,正規分布を基にした関数である(2.4)に近似した結果を示す.それぞれ上側の図は Fig.14, Fig.16, Fig.18 を構成する各日付のデータを風向が東方向になるように NO_2 分布を回転させ,改めてデータすべての和を取り,合計日数で除することで求めた NO_2 分布である.下側の図は排出源の中心とした緯度方向の座標である北緯 35.58° の位置における経度方向の NO_2 の線密度分布を示しており,橙色の曲線は NO_2 分布から切り出した線密度分布を表し,青色の曲線は橙色の曲線を関数近似した結果を表している.風速が小さい前提ではあるが,無風というわけではないため, NO_2 の線密度がピークとなる位置は排出源の中心とした東経 139.7° (図中では $x=0$ に相当する)からわずかに東方向にずれている.関数近似の結果は NO_2 の線密度の分布を概ね良好に表現できており,これによりパラメータを定めた(2.4)を用いて風速が大きい条件における NO_2 の線密度を指数関数(2.5),(2.6)の畳み込みによって表現し, NO_x 排出量の推計を行った.

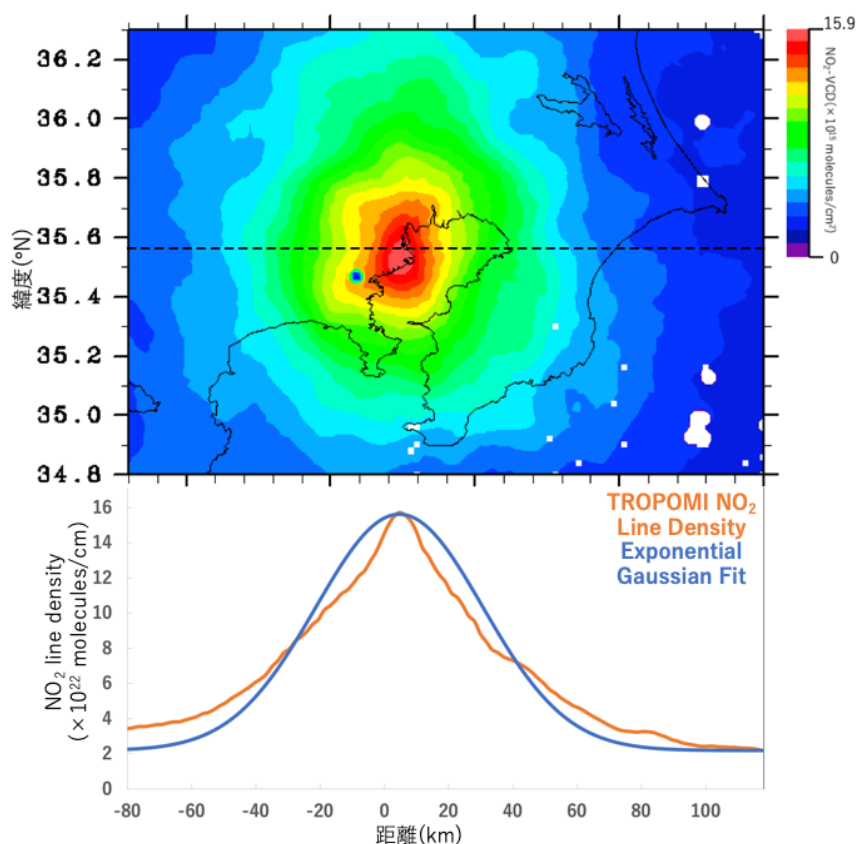


Fig.20 風速 4m/s 以下における 2019 年 12 月から 2020 年 2 月の逆推計結果

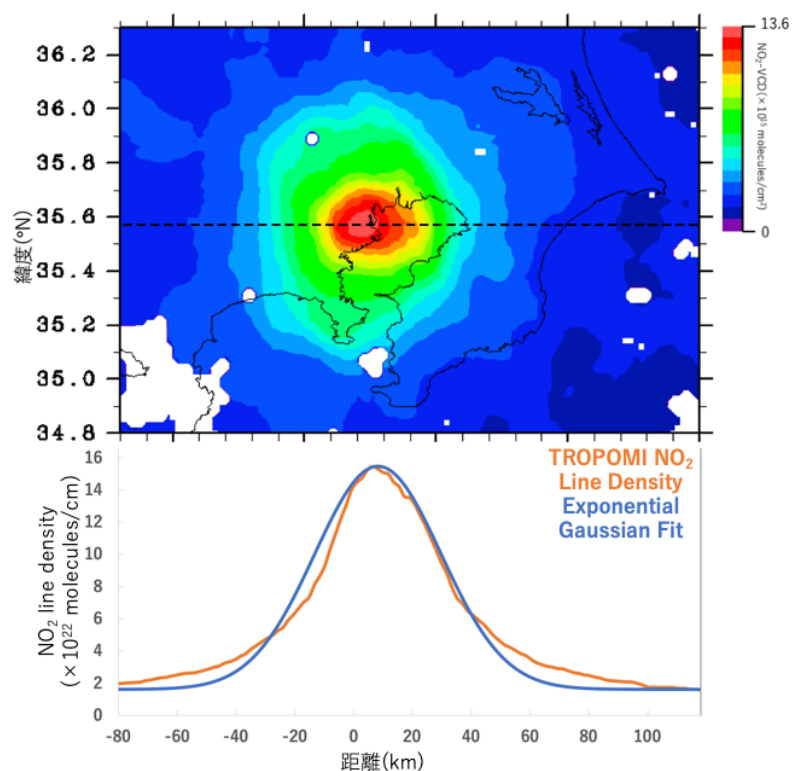


Fig.21 風速 4m/s 以下における 2020 年 4 月から 2020 年 6 月の逆推計結果

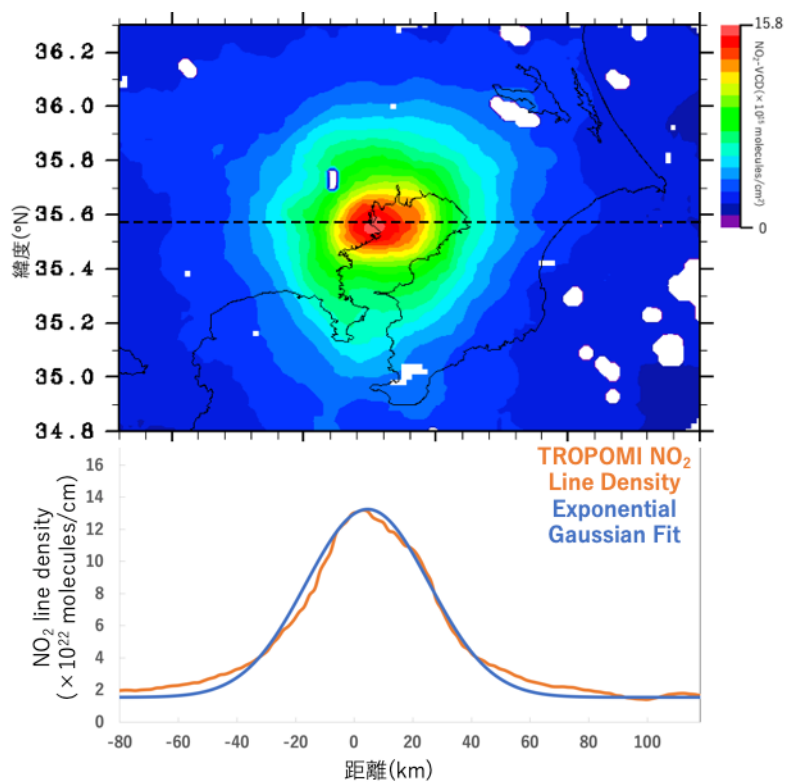


Fig.22 風速 4m/s 以下における 2019 年 4 月から 2019 年 6 月の逆推計結果

Fig.23 から Fig.25 に風速 4m/s 以上における線密度の分布を関数近似し,NO_x 排出量を推計した結果を示す.上側の図については Fig.20 から Fig.22 と同様に各データの NO₂ 分布を風向が東方向となるように回転させており, Fig.23 は Fig.15 に, Fig.24 は Fig.17 に, Fig.25 は Fig.19 に対応している.下側の図についても同様に, 橙色の曲線は北緯 35.58° の位置における経度方向の NO₂ の線密度分布を示し, 青色の曲線は橙色の曲線を風速が小さい条件でパラメータを決定した近似関数(2.4)に指数関数(2.5),(2.6)を畳み込みすることで関数として表現した結果を示す.風速が大きくなったことで NO₂ の線密度のピークは風速が小さい場合に比べて排出源の中心から東方向に大きくずれている.風速が小さい場合に比べて風上側の曲線の傾きは緩やかになっており, 風を受けることで NO₂ が風下側に輸送されている様子が表れていると考えられる.

また, 畳み込み積分による関数近似によって新たに決定したパラメータである λ と x_0 を用いて(2.2),(2.7)により算出した NO_x 排出量及び NO₂ の寿命 τ を各図中に示した.2020 年 4 月から 2020 年 6 月の NO_x 排出量は 2019 年 12 月から 2020 年 2 月における NO_x 排出量と比較して大きく減少している. また, 2019 年 4 月から 2019 年 6 月の NO_x 排出量と比較しても 2020 年では 2019 年の 3 分の 2 程度に減少しており, 2020 年 4 月 7 日に発令された緊急事態宣言によって産業活動が抑制された効果が NO_x 排出量の減少として表れていると考えられる.

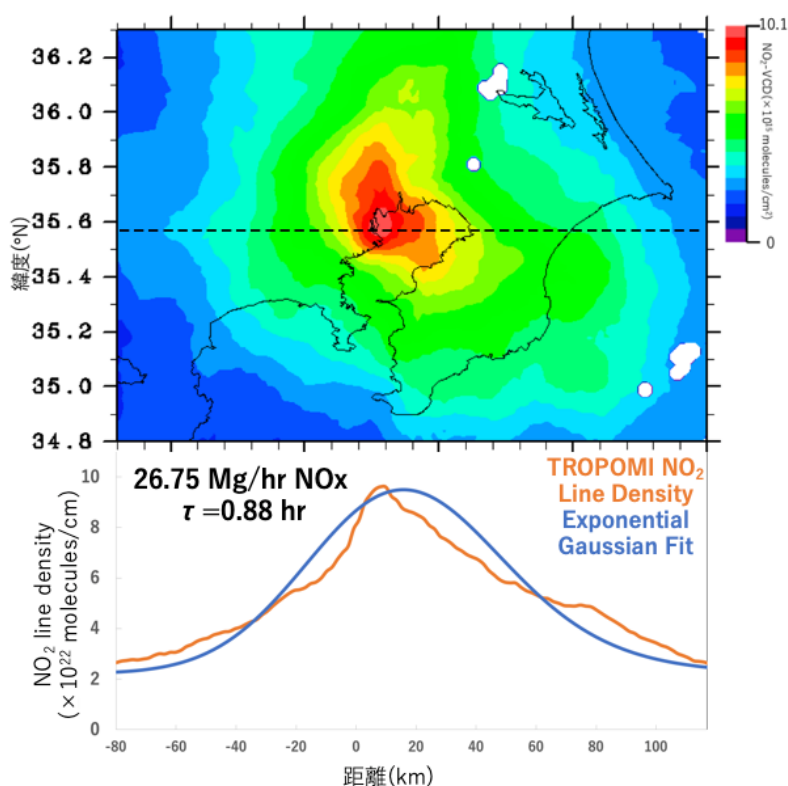


Fig.23 風速 4m/s 以上における 2019 年 12 月から 2020 年 2 月の逆推計結果

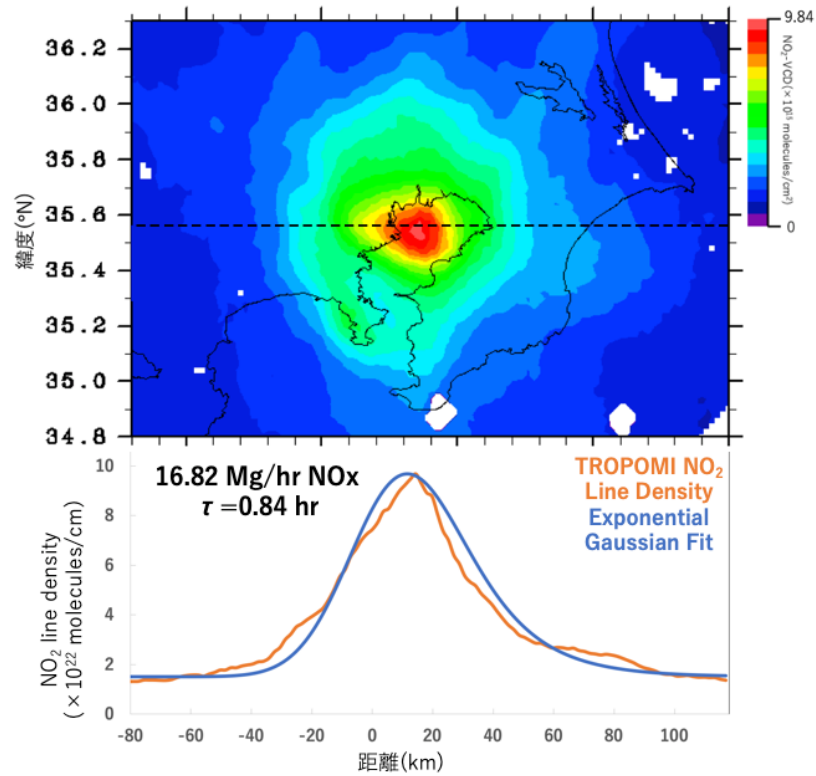


Fig.24 風速 4m/s 以上における 2020 年 4 月から 2020 年 6 月の逆推計結果

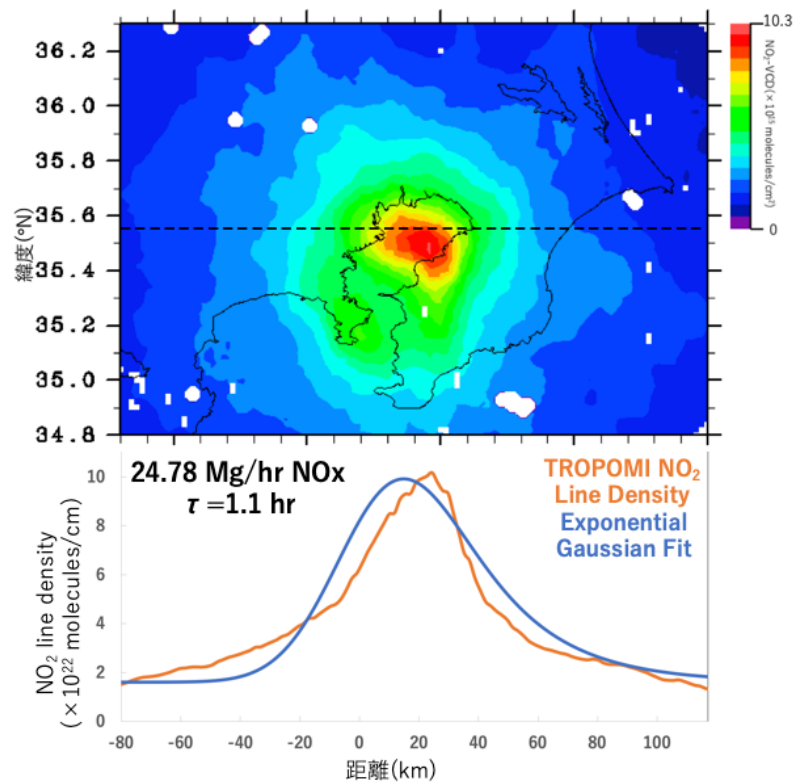


Fig.25 風速 4m/s 以上における 2019 年 4 月から 2019 年 6 月の逆推計結果

3.3 ボトムアップ法との比較

3.2 節では逆推計によって各期間における NO_x 排出量を推計したが,本節ではボトムアップ法によって算出した NO_x 排出量と逆推計によって算出した NO_x 排出量を比較し,本研究で用いた逆推計手法について考察を行う.

ボトムアップ法による NO_x 排出量の算出法を述べる.Fig.26 に 2015 年 4 月から 6 月においてボトムアップ法によって推計された NO_x 排出量の平均分布を示す. $0.05^\circ \times 0.05^\circ$ のグリッドに NO_x 排出量の情報が格納されており,それが緯度方向及び経度方向に並べられることでマップを形成している.Fig.26 は 3.2 節と同じ緯度・経度の範囲を示しており,この範囲における全グリッドの NO_x 排出量を平均化し,改めてグリッド数との積を取ることで,Fig.26 の範囲における NO_x 排出量の総量を算出した.

ボトムアップ法により算出した結果の NO_x 排出量は 28.72Mg/hr であった. 2019 年 4 月から 6 月において逆推計によって算出した NO_x 排出量は 24.78Mg/hr であり,ボトムアップ法による算出結果より約 4Mg/hr 低い結果となった.Fig.26 のボトムアップ法における NO_x 分布から神奈川県川崎市や千葉港や木更津港沿いの工業地域,そして茨城県の鹿島火力発電所からの主要な NO_x 排出が明確に確認でき,首都圏地域周辺において排出量が高いことが読み取れる.そして,Fig.18, Fig.19 の衛星観測データを解析した結果の NO_2 分布においても同様の特徴を捉えることが概ねできている.Fig.1 より,日本における NO_2 濃度は年々減少する傾向にあり, NO_x 排出量も同様に減少していると考えられる.従って,本研究において推計した 2019 年から 2020 年における NO_x 排出量は,2015 年以降も NO_x 排出量が減少し続けているというを示すことができる値となっており,本研究で行った NO_x 排出量の逆推計は妥当な推計手法の一つであると考えられる.

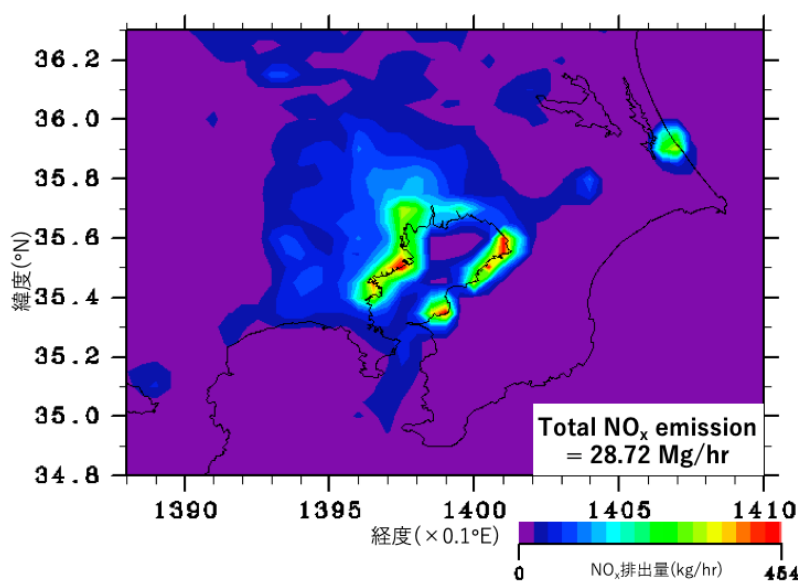


Fig.26 2015 年 4 月から 6 月においてボトムアップ法により推計された NO_x 排出量の平均分布

第4章 結言

本研究では TROPOMI の観測データを用いて都市スケールで NO_2 濃度を観測し、逆推計手法を確立することを目的として、まず衛星データの解析を行った。風速を基準としてデータの仕分けを行い、それぞれの NO_2 濃度分布を求めた。解析の結果、首都圏周辺地域において NO_2 の排出源の中心は神奈川県川崎市であることがわかり、2020 年 4 月 7 日に緊急事態宣言が発令された後の期間において NO_2 濃度の減少が確認できた。

次に、 NO_2 濃度分布を逆推計に用いるために各データの風向が単一の方角になるように回転させ、改めて NO_2 濃度分布を求めた。

続いて風速が小さい場合における NO_2 濃度分布を正規分布の関数形と見なし、近似関数を求めた。近似関数は実際の NO_2 濃度分布を示す曲線を良好に表現できており、2020 年 4 月から 6 月における NO_2 濃度が緊急事態宣言前より減少している様子も明確に表現されていた。

そして風速が大きい場合における NO_2 濃度分布を、風速が小さい場合における NO_2 濃度分布の近似関数に指数関数を畳み込みすることで表現し、実際の NO_2 濃度分布へのフィッティングを行った。指数関数の畳み込みを行うことで風によって NO_2 が風下へ輸送される様子を表現した。

それぞれの NO_2 濃度分布を求める際に決定したパラメータを用いて 2019 年 12 月から 2020 年 2 月と 2020 年 4 月から 2020 年 6 月と 2019 年 4 月から 2019 年 6 月の各 3 ヶ月間の NO_x 排出量を算出した。緊急事態宣言後である 2020 年 4 月から 2020 年 6 月において NO_x 排出量が大きく減少しており、産業活動が抑制されたことによる影響として NO_x 排出量が減少したことを確認することができた。

最後に逆推計によって求めた NO_x 排出量とボトムアップ法によって算出した NO_x 排出量の比較を行った。2019 年 4 月から 2019 年 6 月の期間において逆推計によって求めた NO_x 排出量は、2015 年 4 月から 2015 年 6 月の期間においてボトムアップ法により算出した NO_x 排出量より約 4Mg/hr 低い値を示した。これは日本における NO_x 排出量は年々減少しているという傾向に一致した値であると言えることができ、本研究で用いた逆推計手法は NO_x 排出量を推計するための妥当な手法の一つであると考えられる。

謝辞

本論文は弓本 桂也准教授の惜しめない御指導によって完成させることができました。研究のことについて丁寧に分かるまで教授していただいただけでなく、進路や日常生活の話も気さくに持ちかけてくださり、楽しく研究生生活を送ることができました。ありがとうございました。

鶴野 伊津志教授と原 由香里助教と王 哲助教にはゼミを中心に研究に必要な知識・助言をいただきました。ありがとうございました。

樫原 典子秘書には研究活動を行うにあたって必要な書類事務等を行っていただき、円滑な研究生生活を送ることができました。ありがとうございました。

大気海洋環境システム学専攻の教授・准教授・並びに職員の方々には流体力学をはじめとして研究に関連する内容以外にも知見を幅広く御教授いただきました。ありがとうございました。

藤田 瞭紀さんと高橋 卓己さんには研究室の同級生として互いにわからないことを教え合ったりするだけでなく日常生活の中でも友人として接していただき、楽しい大学院生活を送ることができました。ありがとうございました。

最後に、2年間の大学院生活を不自由なく過ごすために特に金銭面で支えてくれた家族に感謝いたします。ありがとうございました。

令和3年2月
修士2年生 居倉 慎太郎

参考文献

- 【1】 環境省 大気環境、水環境、土壌環境等の現状 (閲覧日 2021/02/06)
URL: <https://www.env.go.jp/policy/hakusyo/h30/html/hj18020401.html>
- 【2】 Yumimoto, K. et al.(2015): 逆推計手法を利用した NO_x 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 第 50 巻 第 5 号 (2015)
- 【3】 一般財団法人 リモート・センシング技術センター Sentinel-5P (閲覧日 2021/02/06)
URL: <https://www.restec.or.jp/satellite/sentinel-5p.html>
- 【4】 Goldberg, L. et al.(2019) : Enhanced Capabilities of TROPOMI NO₂: Estimating NO_x from North American Cities and Power Plants
Environmental Science and Technology,53,12594-12601
- 【5】 Beirle, S. et al.(2011) : Megacity Emissions and Lifetimes of Nitrogen Oxides Probed from Space
URL : <http://science.sciencemag.org> VOL333
- 【6】 環境省 そらまめ君 説明のページ 大気汚染物質(常時監視測定項目)について (閲覧日 2021/02/06)
URL : <http://soramame.taiki.go.jp/index/setsumei/koumoku.html>
- 【7】 Griffin, D. et al.(2018) : High-Resolution Mapping of Nitrogen Dioxide With TROPOMI : First Results and Validation Over the Canadian Oil Sands
URL : <https://doi.org/10.1029/2018GL081095>
- 【8】 Uno, I. et al.(2021) : 大気環境モデリング 衛星観測との連携の重要性 排出インベントリと発生モデリング