

地球表層における物質循環モデルの開発研究

課題責任者

滝川 雅之 海洋研究開発機構 地球環境部門 北極環境変動総合研究センター

著者

宮崎 和幸^{*1,2}, 関谷 高志^{*1}, 大越智 幸司^{*3}, 滝川 雅之^{*4}

^{*1} 海洋研究開発機構 地球環境部門 地球環境観測研究開発センター

^{*2} 米国ジェット研究所

^{*3} 海洋研究開発機構 地球環境部門 環境変動予測研究センター

^{*4} 海洋研究開発機構 地球環境部門 北極環境変動総合研究センター

窒素酸化物(NO_x)は主に工場や火力発電所、燃料自動車等から排出される、対流圏において大気汚染および地球温暖化に重要なオゾンの前駆物質である。ロックダウンなどの感染症対策は人間活動を大きく抑制し、主に大都市において大気汚染物質の排出量を急速に削減させていることについてはこれまでも報告がなされているが、地球全体でどれほど減少したか、さらにはその気候システムへの影響は詳細に評価されていなかった。このため、地球観測衛星からの大気組成の観測データとデータ同化システムを使用してロックダウンによる影響を定量的に評価した。その結果、2020年4月と5月には、人為起源の窒素酸化物(NO_x)総排出量は世界で少なくとも15%、欧州や北米などの地域では18-25%減少していることがわかった。また、対流圏上空のオゾン濃度は最大で5ppb減少したと推定されたが、これは衛星観測による測定値と整合的だった。2020年5月から6月にかけて対流圏オゾンは 6TgO_3 程度減少していたと推定された。またこのオゾン量の減少が地球の放射バランスに顕著な影響を及ぼすことも併せて示された。さらに、排出量の減少が地球全体のオゾンにおよぼす影響には地域差と季節変化があることを調査し、このような地球全体のオゾン量および気候システムへの大きな影響は主にアジアと南北アメリカでの排出削減によることが分かった。これらの知見は、これまで検証が難しかった大気汚染物質と気候システムとの相関関係について定量的に評価できるものであり、今後の大気汚染物質削減と気候変動への適切な対応の両立を目指す環境政策に重要な情報となることが期待される。

キーワード: 大気化学, データ同化, 地球温暖化, ロックダウン, エミッション

1. はじめに

大気汚染は深刻な健康被害をおよぼす。大気汚染物質の排出量を制御し、大気汚染による健康リスクを減らすために、これまでに世界の多くの国で環境政策が実施されてきた。しかし、大気汚染状況は中～長期的な気候の変化の影響など様々な要因により複雑に変化するため、人間活動と大気汚染の関係は必ずしも明らかではなかった。そのため、施された環境政策の量的影響には不明な部分が多く、政策が効果的であったか否かの判断を困難にしている。COVID-19のパンデミック中には、ウイルスの拡散を抑制する目的でロックダウンが多くの国で実施されており、人間活動に急激な変化をもたらした。パンデミック中に多くの国で報告された大気汚染の短期間での急速な変化では、気候変動などの複雑な要因を考慮する必要がないため、人間活動と大気汚染を結びつけるメカニズムを理解する上で貴重な情報となることが期待できる。本研究チームでは、COVID-19の感染を遅らせるために施された世界的なロックダウンが、地球全体の大気汚染物質の排出削減と大気汚染、さらには気候システムへおよぼす影響を調査した。本研究成果の詳細は Miyazaki et al. 2021 [1]にまとめられている。

2. 手法

予報モデルMIROC-CHASER V4([2], [3])では、トレーサーの輸送、湿性および乾性沈着、および放出を計算する。対流圏と成層圏の詳細な光化学反応を含み、92の化学種と262の化学反応(58の光分解、183の反応、21の不均一反応)の濃度を計算する。予報計算に際し、気象場はモデル内部で計算されるが、現実大気との整合性のため大気再解析データERA-interimを用いたナッジング計算を行なった。データ同化にはEnKFアプローチを採用した([4], [5])。またその際の地表放出量の先験情報として人為起源エミッション、森林火災および土壌起源の各種インベントリを与えた([6]-[8])。複数の衛星データを用いて複数化学種の濃度と放出場を同時に最適化することにより、対流圏化学システム全体に包括的な拘束を及ぼす。この手法により、観測情報は様々な物質の間で伝搬され、多くの化学物質の寿命を修正することにも役立つ。

オゾン、 NO_2 、 CO 、 HNO_3 、および SO_2 の観測値をOMI、SCIAMACHY、GOME-2、TES、MLS、およびMOPITT衛星搭載センサから取得しデータ同化に利用した。 NO_x 、 CO 、 SO_2 の地表排出量分布と稲妻による NO_x 発生、および様々な化学物質の大気中濃度について、EnKFデータ同化を使用して同時に最適化した。

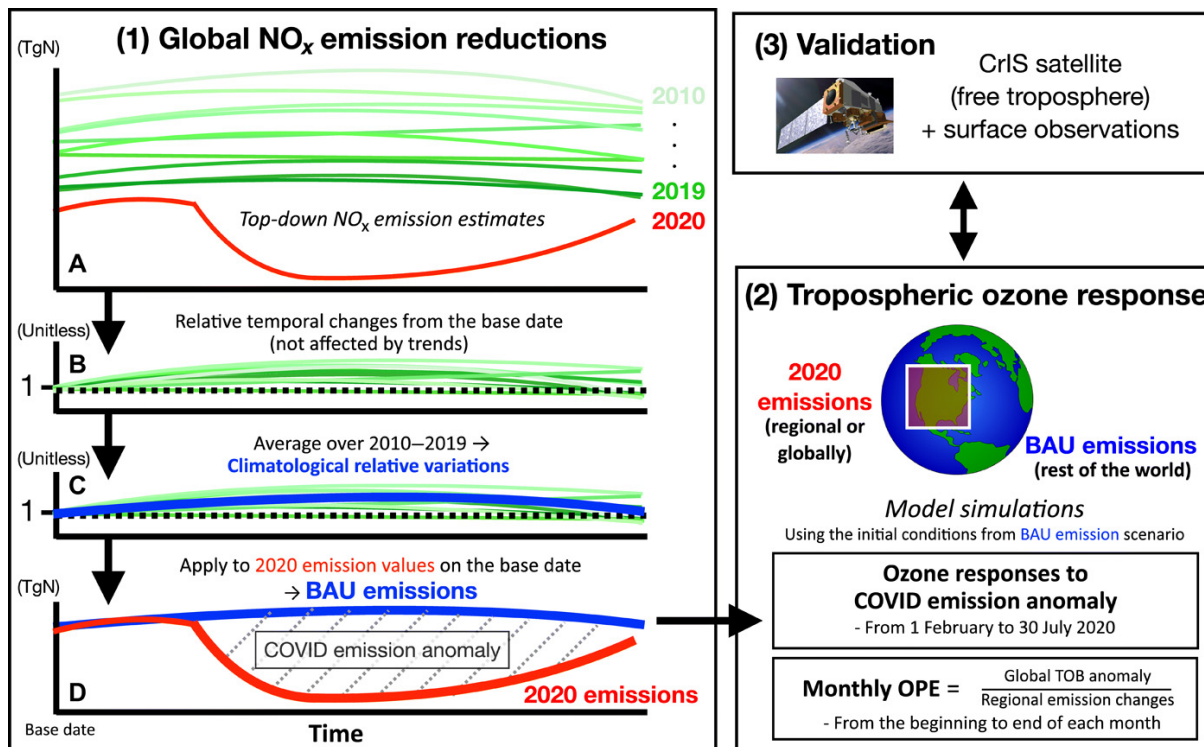


図 1: 本研究での解析手法の概要図。(1) (A) 本同化システムを用い、2010–2020 年の排出量推定を行う (緑線および赤線)。(B) 長期変化の影響を取り除くため、ロックダウン開始日よりじゅうぶん前に設定した基準日からの相対的な時間変化を求める。(C) 気象場の年々変動の影響を取り除くため、2010–2019 年の平均的な時間変化を求める。(D) 2020 年の基準日における排出量に対して(C)で得られた相対的な時間変化を掛け合わせ、ロックダウンが生じなかった場合の排出量(青線)と実際の観測データを用いた同化計算で得られた排出量推定(赤線)との差異を求める。(2)、(3) (1)で得られた排出量推定値について衛星データを用いて検証するとともに、当該排出量変動が大気中オゾン濃度に与える影響を評価する。

ロックダウン期間中のエミッション変動を評価するに際しては、2010 年から 2019 年までのデータ同化計算を行なった上で気候値的な季節変化および年々変動を取り除いた上で、ロックダウンが生じなかった場合 (BAU: Business as usual シナリオ) からの変化量を評価した (図 1)。

3. 成果

NASA による衛星観測などを組み合わせた推定から、2010–2019 年の 10 年間と 2020 年の窒素酸化物の排出量の推移を世界の各地点について詳細に比較することで、ウイルス拡散防止のために世界的に実施されたロックダウンによる影響を定量的に評価した。その結果、ロックダウンを適用し始めたわずか数か月の後に、窒素酸化物(NO_x)の排出量が世界全体で 15%減少したことを示した(図 2)。また、排出削減の範囲とタイミングを詳しく追跡し、封鎖条件が厳しくなるほど、排出量の削減が大きくなることを実証した。たとえば、2 月初旬の中国の極端な封鎖措置により、数週間以内に中国の一部の都市で NO_x 排出量が 50%減少した。米国、イタリア、フランスなどでは、2020 年の春後半には排出量の低下は 25%に達した。

さらに本研究では、パンデミック中の窒素酸化物の減少が地球全体のオゾン濃度を短期的に急激に減少させることを明らかにした。地球シミュレータを用いた化学気候モデル MIROC-CHASER による計算から、窒素酸化物の排出量の減少により

2020 年 6 月までに、対流圏上空のオゾン濃度は最大で 5ppb、大気下層(対流圏)全体のオゾン量は 2%減少すると推定し、これは NASA の衛星観測とよく一致することを示した(図 3)。衛星観測を用いて地球システム変動を評価する際には、得られた観測情報の特性や不確定性を注意深く考慮することが必要である。プロセスの理解に基づく算出と最新の衛星観測との高いレベルでの良い一致が得られた本結果は、近年ますます高精度化を遂げる衛星観測の多様な応用への有用性を実証するもので、今後の衛星観測ミッション推進にも役立つことが期待される。

この短期間での変化は、大気汚染レベルが低い対流圏の最上部まで急速に広がり、通常の大気汚染を抑制する政策を続けた場合(RCP2.6 シナリオ)の 15 倍にもおよぶ急激なオゾン濃度の減少であることを示した。また、この減少は温室効果気体でもある対流圏オゾンの大気放射の働きを通して、地球の熱のバランスにも大きな変化をもたらすことを定量的に示した。さらに、排出削減量の変動だけでなく大気化学プロセスの特性を反映して、各地域における排出量削減が地球全体のオゾン総量に与える影響は時間とともに大きく変化することが明らかとなった。ある一定の排出削減があった場合にどの程度オゾン濃度が減少するのかが目安であるオゾン生成効率、太陽光の到達や気温などの気象条件によって大きく変化する。オゾン生成効率は、北半球の多くの地域よりも熱帯や南半球亜熱帯で大きく、北半球中緯度では 2

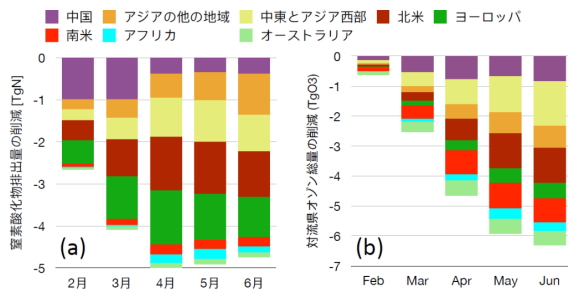


図 2: ロックダウンに伴う(a)窒素酸化物排出量の削減量、(b)全球対流圏オゾン総量の削減量。単位はそれぞれ、TgN、TgO₃ で、月平均値をそれぞれの領域について示す。(a)には、NASA による衛星観測などを組み合わせた推定から、ロックダウンによる排出量への影響を定量的に評価した結果を示す。(b)には、推定された排出量削減情報を用いた化学気候モデル MIROC-CHASER による計算から、各地域での排出削減の影響を個別に評価した結果を示す。2月から6月にかけて2~3倍に増加した。その結果、地球全体のオゾン総量の減少に対して、3月には中国を含むアジアや南米による寄与が大きかったが、5月から6月には中国以外のアジアや南北アメリカによる寄与が大きくなった。これらの結果は、地球システムに対する世界的なロックダウンの影響を理解する上で、各政府の行動がいつどこで発生したかを考慮することが非常に重要であることを示唆している。

4. 今後の展望

これまでの研究では、ロックダウンが地表の大気汚染におよぼす影響が多く調査されてきた。本研究は、複雑な大気プロセスを通して世界各地での排出量減少の効果が複雑に重なり合い、地球規模で気候システムに甚大な影響を及ぼ

(a) モデル計算 (b) CrISによる衛星観測

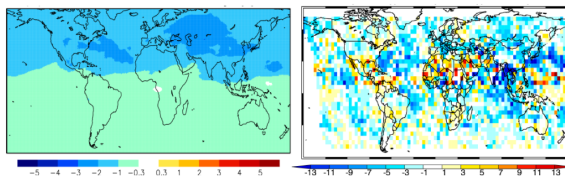


図 3: 自由対流圏(およそ高度 5km)における全球オゾン分布のロックダウンによる変化量。(a)数値モデルを用いて、2020年の気象条件を与え、NO_x 排出削減がおよぼした影響を評価した結果。赤色は増加、青色は減少を示す。全球に渡ってオゾン濃度は減少しており、特に北半球の中緯度で大きな減少がある。(b) 衛星観測 CrIS によるオゾン濃度の 2019 年から 2020 年の変化量を示す。赤色は増加、青色は減少。2020年に森林火災の影響を受けて濃度が増加した一部の熱帯域を除いて、地球上のほとんどの領域でオゾンは減少しており、数値モデルによる計算(a)と大まかに一致する。これは、ロックダウンによる上空におけるオゾン変動が衛星観測により測定可能であることを示す初めての結果である。

していることを初めて詳細に実証するものである。本研究による知見は、窒素酸化物の排出量とオゾンの生成を引き起こすメカニズムを理解する上で貴重な情報を提供し、さらに、大気汚染物質は温室効果気体とも強く関連するため、複雑な気候システムの将来の予測改善にもつながることが期待できる。大気汚染を効果的に改善しつつ、急激な気候変動を緩和するためには、本研究で示されたような排出量と大気組成の間の複雑な関係を慎重に考慮する必要があることを示しており、コベネフィットを目指す政策立案への貴重な情報を提供することが期待できる。

謝辞

本研究を遂行するにあたり NASA Atmospheric Composition: Aura Science Team Program (19-AURAST19-0044) および TROPES プロジェクトの支援を受けた。

文献

- [1] K. Miyazaki *et al.*, “Global tropospheric ozone responses to reduced NO_x emissions linked to the COVID-19 worldwide lockdowns,” *Sci Adv*, vol. 7, no. 24, Jun. 2021.
- [2] S. Watanabe *et al.*, “MIROC-ESM 2010: model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments,” *Geosci. Model Dev.*, vol. 4, no. 4, pp. 845-872, Oct. 2011.
- [3] T. Sekiya, K. Miyazaki, K. Ogochi, K. Sudo, and M. Takigawa, “Global high-resolution simulations of tropospheric nitrogen dioxide using CHASER V4.0,” *Geosci. Model Dev.*, vol. 11, no. 3, pp. 959-988, Mar. 2018.
- [4] K. Miyazaki, H. J. Eskes, and K. Sudo, “A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005-2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data,” *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 15, no. 14, pp. 8315-8348, Jul. 2015.
- [5] K. Miyazaki *et al.*, “Balance of emission and dynamical controls on ozone during the Korea - United States air quality campaign from multiconstituent satellite data assimilation,” *J. Geophys. Res.*, vol. 124, no. 1, pp. 387-413, Jan. 2019.
- [6] G. Janssens-Maenhout *et al.*, “HTAP_v2. 2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution,” *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 15, no. 19, pp. 11411-11432, 2015.
- [7] G. van der Werf, J. T. Randerson, L. Giglio, Y. Chen, B. M. Rogers, and T. T. Van Leeuwen, “Global Fire Emissions Database version 4 (GFED4),” 2014, vol. 2014, pp. GC33D-0545.
- [8] T. E. Graedel *et al.*, “A compilation of inventories of emissions to the atmosphere,” *Global Biogeochem. Cycles*, vol. 7, no. 1, pp. 1-26, Mar. 1993.

Environmental Geochemical Cycle Modelling Research

Project Representative

Masayuki Takigawa Institute of Arctic Climate and Environment Research,
Research Institute for Global Change, Agency for Marine-Earth Science and Technology

Authors

Kazuyuki Miyazaki^{*1,2}, Takashi Sekiya^{*1}, Koji Ogochi^{*3}, Masayuki Takigawa^{*4}

^{*1} Earth Surface System Research Center, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ^{*2} Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, ^{*3} Research Center for Environmental Modeling and Application, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ^{*4} Institute of Arctic Climate and Environment, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Efforts to stem the transmission of coronavirus disease 2019 (COVID-19) led to rapid, global ancillary reductions in air pollutant emissions. Here, we quantify the impact on tropospheric ozone using a multiconstituent chemical data assimilation system. Anthropogenic NO_x emissions dropped by at least 15% globally and 18 to 25% regionally in April and May 2020, which decreased free tropospheric ozone by up to 5 parts per billion, consistent with independent satellite observations. The global total tropospheric ozone burden declined by 6TgO₃ (~2%) in May and June 2020, largely due to emission reductions in Asia and the Americas that were amplified by regionally high ozone production efficiencies (up to 4 TgO₃/TgN). Our results show that COVID-19 mitigation left a global atmospheric imprint that altered atmospheric oxidative capacity and climate radiative forcing, providing a test of the efficacy of NO_x emissions controls for co-benefiting air quality and climate.

Keywords : atmospheric chemistry, data assimilation, global warming, lockdown, emission

1. Introduction

To slow the transmission of coronavirus disease 2019 (COVID-19), numerous countries worldwide have imposed lockdown measures that severely limit personal mobility, leading to reductions in overall economic activity. These restrictions on human activity were designed to alleviate the strain on the health care system from COVID-19 but also had the ancillary impact of rapid air pollutant emission reductions. Changes in greenhouse gas and pollutant emissions have been estimated using activity data such as mobility metrics, with global NO_x emissions estimated to have declined as much as 30% in April. However, these estimates are highly uncertain, as activity data are incomplete, and substantial assumptions are needed to relate these data to the partitioning and magnitude of emissions.

Substantial impacts on regional and global air quality during the COVID-19 period have also been demonstrated using various in situ and satellite measurements. A study using the spatially limited set of global surface in situ air quality measurement networks estimated declines in population-weighted concentration of 60% for surface nitrogen dioxide (NO₂) and 31% for particulate matter smaller than 2.5 μm (PM_{2.5}), and marginally notable increases of 4% in ozone between the beginning of the lockdowns and May 15. These estimates highlight the different responses of surface concentrations for different species and the strong regional dependence of the response, but because of the sparseness of the in situ network, they do not provide a truly global picture of the pandemic's impact on atmospheric composition.

This study quantifies the response of global tropospheric ozone to the unprecedented NO_x emission reductions associated

with COVID-19. This analysis is made possible by a state-of-the-art multiconstituent satellite data assimilation system [1] that ingests multiple satellite observations to simultaneously optimize concentrations and emissions of various trace gas species, while taking their complex chemical interactions into account. This framework was already used to quantify the surface air quality response to Chinese COVID-19 lockdown measures.

2. Results

Anthropogenic NO_x emission reductions linked to the COVID-19 pandemic were estimated as the difference between baseline “business as usual” (BAU) emissions, obtained by aggregating 2010–2019 emissions from our decadal chemical reanalysis constrained by multiple satellite measurements [2], and 2020 emissions derived from the same system, using 2020 TROPOMI NO₂ observations. The BAU emissions were adjusted to 2020 values using the difference between the 2010–2019 baseline and 2020 emissions on February 1, when economic activity was not yet substantially affected by COVID-19 mitigation for most countries. For China, however, where the first government-imposed lockdown occurred earlier than in the rest of the world, the difference in emissions on January 10 is used to obtain the BAU emissions. Therefore, the 2020 COVID-19 emission anomaly, estimated as difference between the BAU and COVID-19 emissions, does not include the influence of climatological seasonal changes in anthropogenic emissions, such as use of winter heating, nor does it include interannual changes from years before 2020 (cf. Figure 1). Biomass burning and soil NO_x emissions, as well as areas that were heavily affected by clouds and at high latitudes (higher than 55°), were

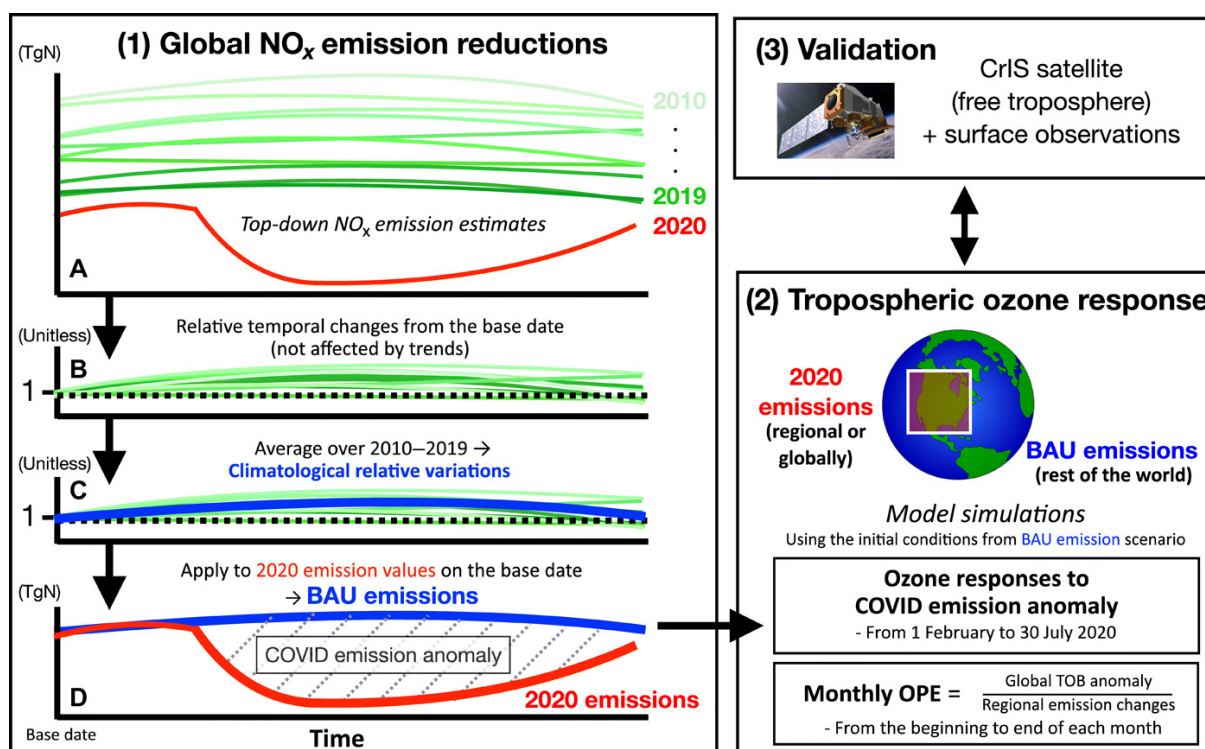


Fig. 1 Schematic diagram of the methodology used in this study. removed from the data assimilation analysis. The a priori emissions used in the data assimilation system have limited representation of actual ship tracks, which hinders evaluation of ship emission changes; NO_x emissions over oceans were thus removed as well. Although our analysis covers about 75% of the global total NO_x emissions, actual emission changes at country or global scales are likely larger than our estimates because of the unrepresented areas. Uncertainties on the COVID-19 emission anomalies were estimated from the interannual variability in the BAU emissions, model errors, and short-term variability of the emissions (see Materials and Methods for further information).

The NO₂ in the model simulation using the optimized emissions exhibits consistent variations with the assimilated satellite NO₂ column measurements globally (fig. S1) and surface NO₂ measurements over North America, Europe, the Middle East, and East Asia (table S1). The remaining model negative NO₂ bias against the surface measurements is likely a consequence of the reported negative bias in the assimilated TROPOMI NO₂ measurements. Meanwhile, the regional or country mean tropospheric NO₂ columns show notably different seasonal and spatial changes than the total NO_x emissions (fig. S1) due to varying influences of nonlinear chemical and meteorological conditions. For example, tropospheric NO₂ concentrations naturally decrease from winter through summer as a result of photochemical processes, even without any reduction in emissions.

We estimate that global total anthropogenic NO_x emissions in 2020 were reduced by $9.0 \pm 1.5\%$ relative to the global total anthropogenic emissions ($12.8 \pm 2.1\%$ relative to the analyzed

areas total anthropogenic emissions) in February, $12.7 \pm 1.5\%$ ($17.8 \pm 2.1\%$) in March, $14.8 \pm 2.3\%$ ($21.2 \pm 3.3\%$) in April, $15.0 \pm 1.8\%$ ($21.8 \pm 2.6\%$) in May, and $13.9 \pm 1.8\%$ ($20.8 \pm 2.6\%$) in June relative to the BAU emissions. In February, the reduction in emissions from China made the largest contribution (36%) to the global NO_x anomaly, whereas the contributions from other regions are larger from March to June, when China relaxed its restrictions. Regional total anthropogenic emissions dropped by 18 to 25% in April and May across Europe, North America, and the Middle East and West Asia. Africa and South America also show clear but moderate reductions in emissions (~5 to 10%) in April and May, with substantial spatial variations within the regions. The peak reduction in global total NO_x emissions of about 5 TgN/year is almost the same as the climatological annual anthropogenic emissions from Europe in our estimates. In many regions, the early emission reductions in February and March suggest that activity likely started decreasing even before actual implementation of lockdown measures.

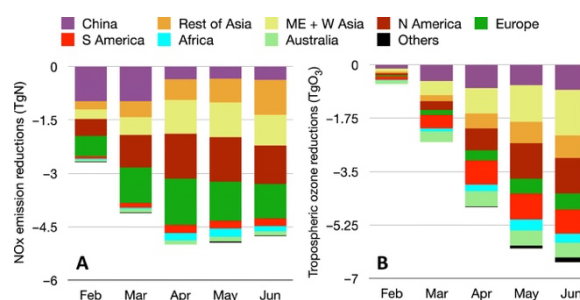


Fig.2 Reductions in anthropogenic NO_x emissions and global TOB.

3. Discussion

The worldwide actions taken to slow the transmission of COVID-19 had the effect of rapid emission reductions globally, which drove substantial changes in air pollutants and tropospheric chemistry. The pandemic took place against a backdrop in which many countries have implemented environmental policies to reduce human health risk from air pollution by controlling emissions, but the quantitative impacts of these policies have not always been clear. COVID-19 represents a well-observed “scenario-of-opportunity” that allows us to assess how atmospheric composition responds to reduced human activity and emissions, providing an important benchmark for identifying effective environmental policy-making. Here, we have evaluated global NO_x emission reductions and their impacts on global tropospheric ozone, using a state-of-the-art multiconstituent data assimilation system.

The COVID-19 restrictions on human activity in numerous countries led to substantial reductions in global total anthropogenic NO_x emissions of at least 15% in April and May 2020, with 19 to 25% reductions in the United States, Europe, and the Middle East and West Asia. Using the estimated emission reductions, we find that the tropospheric ozone response to the NO_x emission reductions exhibited strong spatial and temporal gradients as a consequence of differences in OPE, with larger values in the tropics and SH subtropics (1.9 to 2.9 TgO₃/TgN, February to June average) than in the NH mid and high latitudes (0.2 to 0.4 TgO₃/TgN). The OPE in the NH extratropics increased by a factor of 2 to 3 from February to June. The reduction in ozone associated with COVID-19 changes in NO_x is as large as 10 ppb and is seen both at the surface and in free tropospheric concentrations. The COVID-related ozone anomaly is widespread in the NH and is substantial even in the SH, especially downwind of megacities in South America. Overall, the pandemic led to a modeled 6-TgO₃ (~2%) decrease in TOB in May and June. Decreased concentrations of PAN and OH suggest highly nonlocal impacts of the lockdowns and substantial changes in the tropospheric chemistry system.

The results described here demonstrate the strong impacts of the worldwide restrictions on human activity on global tropospheric chemistry and radiative forcing. Our model indicates rapid reductions in free tropospheric ozone concentrations of up to 5 ppb in March to June 2020 over major polluted areas and is in broad agreement with the CrIS satellite observations. Our study thus benefits future predictions of the chemistry-climate system by providing validation of our understanding of the response of tropospheric ozone to changes in NO_x emissions.

Our results indicate that the designers of environmental policies to benefit both air quality and climate need to carefully

consider the complex relationships between emissions and atmospheric composition such as those demonstrated here to effectively improve air quality and reduce radiative forcing, especially for countries in the tropics that have a combination of high population density and large OPE. However, we focused here on regional and global ozone responses to NO_x emission changes and the potential impacts of VOC emission changes; urban-scale emission changes and subsequent ozone responses were not well resolved. Further investigation of NO_x/VOC impacts at finer (e.g., urban) scales is essential to assessing the implications of the COVID-19 lockdowns on air quality and human health. Last, our ozone response estimates for the COVID-19 pandemic provide insights into where and when the atmospheric composition effects of the pandemic may be measurable directly from observations.

Acknowledgement

We acknowledge the use of data products from the National Aeronautics and Space Administration (NASA) Aura and EOS Terra and Aqua satellite missions. We also acknowledge the free use of the tropospheric NO₂ column data from the SCIAMACHY, GOME-2, and OMI sensors from www.qa4ecv.eu and from TROPOMI. The OpenAQ surface ozone data were obtained through EPA and the World Air Quality Index Project. The TROPOMI NO₂ algorithm and data processors have been developed by KNMI under the NSO TROPOMI Science Contract, in cooperation with ESA. Sentinel-5 Precursor is an ESA mission on behalf of the European Commission (EC). The Earth Simulator was used for model simulations with support of the Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology. Part of this work was conducted at the Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, under contract with the NASA. **Funding:** K.M. and K.B. acknowledge the support of the NASA Atmospheric Composition: Aura Science Team Program (19-AURAST19-0044) and the TROPRESS project.

References

- [1] K. Miyazaki, H. J. Eskes, and K. Sudo, “A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data,” *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 15, no. 14, pp. 8315–8348, Jul. 2015.
- [2] K. Miyazaki et al., “Updated tropospheric chemistry reanalysis and emission estimates, TCR-2, for 2005–2018,” *Earth Syst. Sci. Data*, vol. 12, no. 3, pp. 2223–2259, Sep. 2020.