

# 化学気候モデルで探る大気微量成分の全球変動

## Investigating Global Changes in Atmospheric Trace Constituents with a Chemistry Climate Model

須藤健悟<sup>1,2\*</sup>

本稿では、化学気候モデリングの概略・現状、各種環境問題における役割や課題・展望を整理したうえで、著者らが開発にあたっている化学気候モデル CHASER を用いた大気微量成分の全球分布の経年変動とその要因の推定について、最新の研究結果を紹介する。CHASER の最新版では、気候モデル MIROC を土台として、対流圏・成層圏の化学反応が考慮され、各種エアロゾル(硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム、黒色炭素、有機エアロゾルなど)と化学過程との相互作用も考慮されている。本モデルを用い、過去数十年間の大気微量成分の全球変動の再現計算を実施したところ、最近 30 年間で地表のオゾンやエアロゾルの濃度は北米・欧州で減少、アジア域(中国・インド)で増加し、大気汚染の重心がアジア域・低緯度域にシフトしたことが確認された。大気微量成分の年々の短期変動については、地表ではバイオマス燃焼起源のエミッションの年々変動が支配的な要因であり、自由対流圏では、ENSO(エルニーニョ南方振動)や AO(北極振動)などの気候振動にともなう気象場変動が大きく寄与していることが示された。また、対流圏オゾン量については、2000 年～現在で長期的な増加傾向が確認された。これにはエミッション変動に加え、成層圏・対流圏間交換によるオゾン流入量が気候変動によって増加傾向にあることが寄与している可能性がある。このような気候変動にともなう近年の大気化学的変動は対流圏の OH 濃度にも顕著に影響しており、メタン等の全球収支にも大きな影響を及ぼしている可能性が示唆される。

### 1. 緒言

大気化学という学問分野は、成層圏オゾン(オゾン層)、温室効果気体・対流圏オゾン、そして PM<sub>2.5</sub> 等の粒子状物質(エアロゾル)など、研究の主たる力点・焦点を年代ごとにシフトさせながら発展してきているように思われる。研究の手法としては、化学分析等の複雑な測定を含む直接観測(地上・航空機・船舶)、衛星観測を始めとするリモートセンシングによる観測、各種プロセスの実験室レベルでの提唱・評価・検証など、多岐に渡るが、アジア域や全球など、ある程度広い領域を対象として、各種プロセスの検証や定量評価を行い、その全体像・平均像を得るには、数値

モデルの援用が効果的である場合が多い。地球温暖化の研究で、数値モデル(気候モデル)が多用されることと似ているが、これは、ある現象について各種要因・原因を分離するというモデル特有の強力な利点からくるものである(大気化学分野では、この利点は大気中の輸送プロセスと化学プロセスの分離にあたることも多い)。モデルによるこのような分離作業は、もちろん計算機上の仮想的なものではあるが、そのモデルについて、十分な検証が行われ、再現性が十分に担保されている状況であれば、その結果は一定以上の科学的有意性を有するといえよう。この考え方は、気候モデルによる温暖化研究にも適用可能と

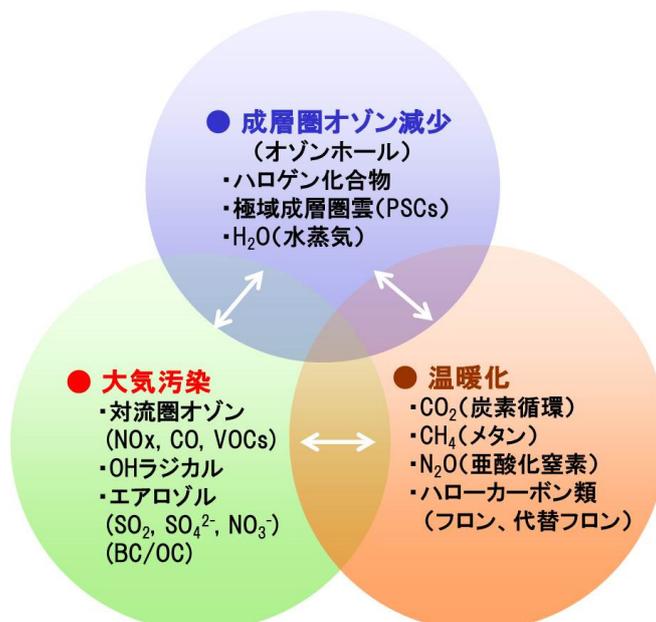


図 1 グローバルな環境問題と大気化学の関わり。

たとえば、大気汚染物質としてのオゾンやエアロゾルは同時に温暖化への影響も大きく、各環境問題は独立ではなく相互作用する。

思われるが、気候モデルの検証材料は、実質的には全球平均気温のみであり、温室効果気体増加による加熱、エアロゾル増加による冷却、それに自然変動からくる気温変化について、真の意味での再現性の判断については、依然として今後の研究に期待される部分が大であると言わざるをえない。

大気化学における数値モデルには、上で述べた要因の分離という目的のみならず、室内実験や観測から提唱されたプロセスの実証という大きな役割がある。たとえば、実験室や観測の場から示唆される化学反応の存在について、モデルに導入して観測と比較することで初めてその妥当性が確認できるということになる。その意味では、冒頭に挙げた成層圏オゾンなどの研究ターゲットは、数値モデルで一通り現象を再現できた時点で一段落つき、新たな研究対象へと力点をシフト・拡大させていったという側面もある。

本稿では、大気化学における数値モデルの関わり の例として、大気中、とくに対流圏の微量成分の近年の経年変動を対象として、気候モデルに大気中の化学やエアロゾルが導入された「化学気候モデル」によるシミュレーションでどのようなことがわかるか？ということについて概説する。

次節では、まず化学気候モデルの目的・役割をグローバルな環境問題との関係性から述べ、3節で、化学気候モデルの概略を紹介する。4、5 節では、化学気候モデル CHASER による大気微量成分の全球変動の推定を紹介・議論し、6 節で化学気候モデリングにおける課題を整理する。

## 2. 3つの環境問題と化学気候モデルの役割

ここでは、グローバルな環境問題において大気化学と関連物質がどのように影響・関連しているかについて整理しておく。現状の地球環境問題は、グローバルなスケールとしては、成層圏オゾンの変動、大気汚染、そして地球温暖化(気候変動)の3つの問題に大別される(図 1)。

それぞれの問題について、大気中の物質と化学は中心的な役割を果たしている。まず、オゾン層破壊やオゾンホール現象に象徴される成層圏オゾンの変動については、CFCs(クロロフルオロオロカーボン類、通称フロンガス)などのハロカーボン類が成層圏で光解離反応や酸化反応を起こすことにより生成されるハロゲンラジカルが成層圏オゾンの化学的破壊に実質的に関与している [McElroy et al., 1992; WMO, 1999]。

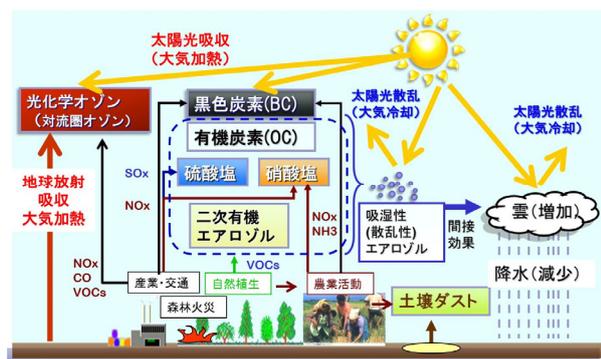


図 2 短寿命成分(主に大気汚染物質)の発生と気候への影響(須藤, 2014)。これらに加え、メタン(CH<sub>4</sub>)も短寿命成分に含める場合もある。

大気中の全オゾン量のうち、約 90%が高度 10~15 km 以上の成層圏に存在し、成層圏のオゾンは地上や海洋表層の生物にとって有害な紫外線を遮断する重要な役割を持っていることから、成層圏のオゾン変動は我々生物の生存環境にとって決定的な重要度を持つ。一方、地表から高度 10~15 km の対流圏に存在するオゾンは、全オゾン量の約 10%と、成層圏に比較すると比較的少量であるが、オゾンは酸化力が高いため、地表付近では、光化学スモッグ(オキシダント)の主要成分として健康被害を引き起こし、植物・農作物にもダメージを与えることが懸念されている。オゾンは成層圏においては、酸素分子の光解離反応から生成されるが、対流圏においては、主に汚染起源の窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)と、メタン(CH<sub>4</sub>)およびその他の炭化水素類(NMHCs, Non-Methane Hydro Carbons または、NMVOCs, Volatile Organic Carbons)を前駆体とした光化学スモッグ反応により生成されるため、重要な大気汚染物質であり、とくに 20 世紀後半から継続的な増加が確認されている [Cooper et al., 2012; Young et al., 2013, etc.]。

ここで、注目すべきは、図 1 が示す通り、成層圏オゾン、大気汚染、地球温暖化の 3 つの環境問題は、それぞれ独立ではなく、相互作用しながら影響を及ぼしていることである。たとえば、CO<sub>2</sub>・CH<sub>4</sub> 等の主要な温室効果気体に加え、大気汚染物質(オゾンやエアロゾル)の濃度変動が全球規模の気候変動・地球

温暖化に対して重要な影響力を持つことが挙げられる [IPCC, 2013; Yu et al., 2013a]。図 2 は、大気汚染物質等の大気中で寿命の短い成分(短寿命成分)について、大気中での発生と気候影響の概略を示す。オゾンは波長 9.6 μm 付近の赤外(地球)放射を吸収するため、対流圏のオゾン増加は大気(地表)加熱に寄与する。一方、黒色炭素(BC)は大気中で太陽光を吸収し、これも温暖化に寄与するとされているが [IPCC, 2013; Bond et al., 2013], 大気中の BC による太陽光吸収は同時に地表の冷却を伴うため、地表気温の変化という観点では、BC の影響はそれほど大きくないという見方も出始めている [Samset et al., 2016]。BC 以外のエアロゾル(硫酸塩、硝酸塩、有機エアロゾル)は基本的に吸湿性を有し、太陽光の散乱・反射、および雲凝結核(CCN)として雲量増加等に寄与するため、地表面に対して冷却効果を及ぼしている可能性が強い [IPCC, 2013]。また、CH<sub>4</sub> については、現状でも長寿命物質としてみられることも多いが、CH<sub>4</sub>の大気中寿命は約 10 年と比較的短く、その寿命も対流圏オゾンから生成される OH ラジカルの存在量に支配されること、また上述のとおり CH<sub>4</sub> は対流圏オゾンの生成過程に深く関与していることから、短寿命成分の一部として扱う向きもある [UNEP, 2011]。

このようにオゾンやエアロゾルによる大気汚染は、

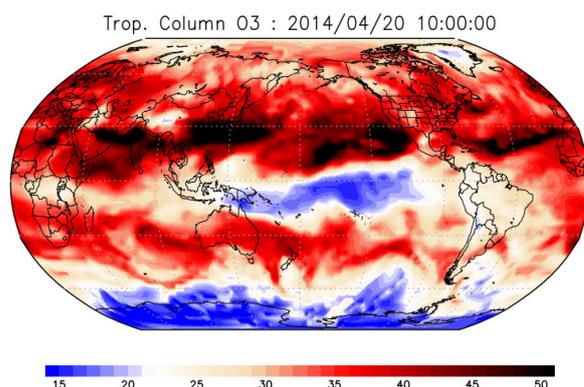


図 3 対流圏のオゾン分布(カラム積算量: DU)のモデル計算例。成層圏オゾンの沈降と大気汚染が寄与。化学気候モデル CHASER 公式 YouTube チャンネル <https://www.youtube.com/channel/UCpd0cl8kEBCtElm8zRTt8Xw/>より。

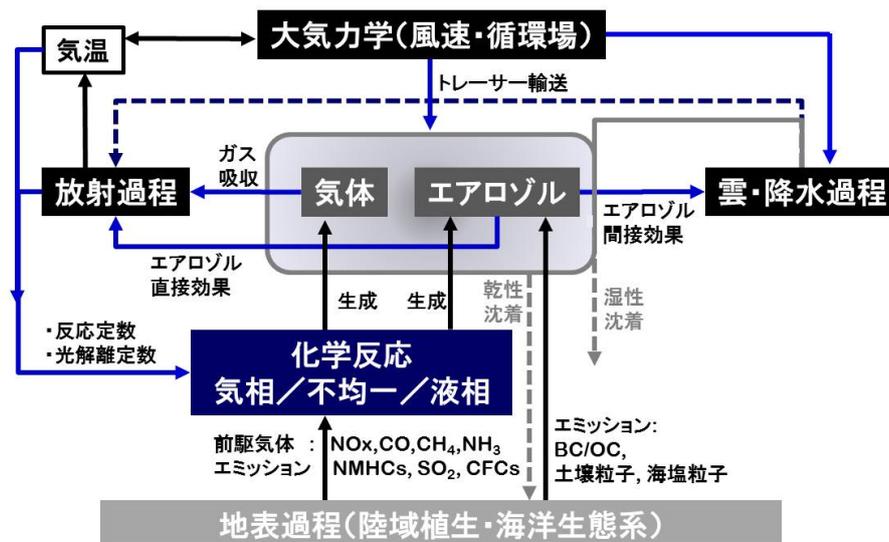


図 4 大気化学過程を含む気候モデルのシミュレーション構造。

気候変動との関連性が強いが、どちらかという光化学スモッグや PM<sub>2.5</sub> 汚染の問題として、都市～領域（東アジアなど）スケールなど、比較的ローカルな問題と考えられがちであり、最近の人工衛星によって観測された汚染物質の分布をみても、汚染物質は北米、欧州、アジアなど、主要な汚染域のみに限定されているかのように見える。しかし、実際には、大気汚染物質は大気の流れによって広域に輸送される [Sudo and Akimoto, 2007; HTAP, 2010]。このため、大気汚染物質による気候影響は、都市～領域規模のみならず全球規模で検討する必要がある。図 3 は、化学気候モデルで再現された対流圏オゾンの全球分布のスナップショットであるが、アジアや北米等の陸域汚染域からの流出が長距離に及んでいることが確認できる（ただし、とくに中緯度では、成層圏から輸送されたオゾンの寄与も含まれる）。

大気汚染物質が全球の気候変動に関与する一方で、気候変動・地球温暖化は大気循環や水蒸気量などの変動を通じて、大気汚染物質の濃度分布に影響する [Doherty et al., 2013, etc.]。また、CH<sub>4</sub>の大気中寿命が OH ラジカルの濃度に支配されることは既に述べたが、この OH ラジカルは大気中の様々な物

質の酸化・除去に関与しており、大気の酸化能 (Oxidizing Capacity) を実質的に決定している。この OH の主な生成源は対流圏のオゾンや水蒸気であるので、温暖化等による気象場変動と連動して OH 変動が起こり、これによって CH<sub>4</sub> 等の寿命・濃度が変化するというフィードバック機構 [Naik et al., 2013] も、大気汚染問題 (大気化学) と温暖化問題の相互作用として重要である。

成層圏オゾンについても、対流圏への紫外線量や成層圏・対流圏交換過程 (STE、Stratosphere-Troposphere Exchange とよぶ) に伴う対流圏へのオゾン輸送を通じて、対流圏化学や地球温暖化・大気汚染の諸問題と相互作用する。ハロカーボン類による成層圏オゾンの減少で、対流圏へのオゾン流入量が減少したり、一方で、現在～今後の温暖化傾向に伴い、成層圏の大循環 (ブリューワー・ドブソン循環) が強まり、対流圏へのオゾン流入が増加する可能性があることが示唆されている [Sudo et al., 2003; Zeng and Pyle, 2003; Kawase et al., 2011]。

以上のように、オゾンや OH ラジカル、およびエアロゾルを中心とする大気中の化学過程は3つのグローバルな環境問題の間の橋渡しをしており、各環境

問題の実態の解明や、将来予測を目的とする数値モデルには、このような相互作用をできるだけ忠実に表現することが求められる。

### 3. 化学気候モデル

以上のような背景の下、3 つの環境問題(図 1)に纏わる物理化学過程を表現・再現可能な数値モデルが各研究機関で構築され、これを用いた研究が展開されている [Shindell *et al.*, 2013; Morgenstern *et al.*, 2016]。このような数値モデルのなかには、気候計算を含まず、風速、温度、水蒸気量などの気象変数を外部からの入力として、大気中の輸送と化学過程のみを計算する化学輸送モデル CTM (Chemical Transport Model)もあるが、上述のように気候変動との相互作用を表現するには、気候モデルと結合して「オンライン」で大気中の輸送・化学を計算する必要がある。このようなモデルは化学気候モデル (Chemistry Climate Model)と呼ばれ、各種大気成分の全球分布・変動、および各種大気成分の気候影響を定量的に計算することを主なタスクとしている [Morgenstern *et al.*, 2016]。

近年の化学気候モデルでは、以下のようなプロセスをできるだけ忠実に再現することが求められる。

- ① 地表から大気への気体・エアロゾル(1次粒子)の排出
- ② 大気中の化学反応による各種物質の酸化(分解)や2次物質(オゾン、2次粒子)の生成
- ③ 大気中の物質輸送過程および地表・降水による沈着除去過程
- ④ 排出・生成された気体・エアロゾルの大気放射過程への影響(放射の吸収・散乱)
- ⑤ エアロゾルの雲・降水過程への影響(エアロゾル-雲・降水の相互作用)

著者らは気候モデル MIROC [K-1 Model Developers, 2004]を土台とした化学気候モデル

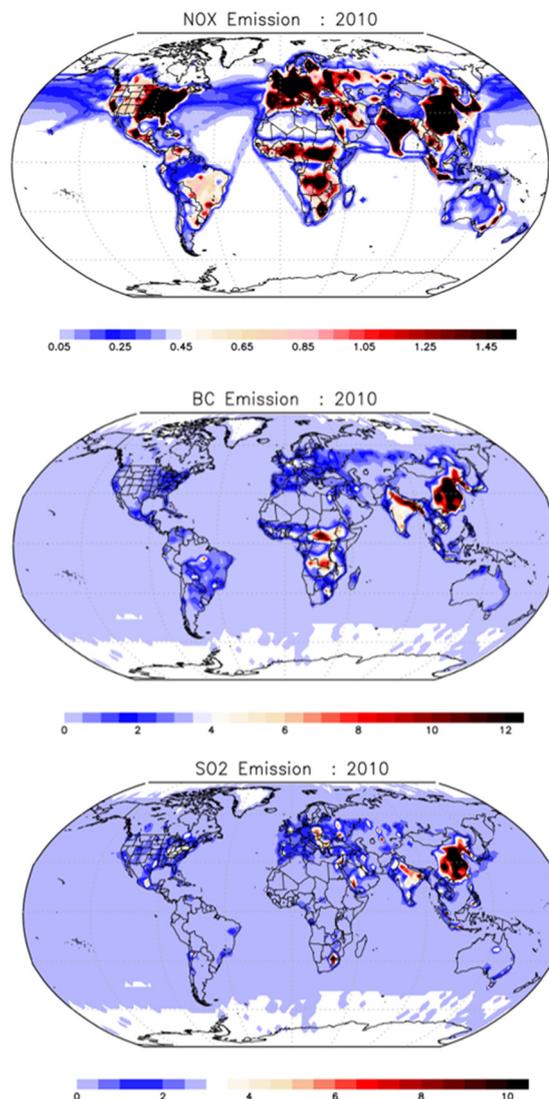


図 5 各種前駆気体(NO<sub>x</sub>, BC, SO<sub>2</sub>)のエミッション(排出強度)分布(EDGAR/HTAP ver2)。2010年平均。

CHASER [Sudo *et al.*, 2002; Sudo and Akimoto, 2007; Sekiya and Sudo, 2014]を構築してきている。このモデルでは、MIROC の気候計算の枠組み内で、対流圏・成層圏でのオゾンを中心とする化学反応(250 以上)、トレーサー輸送、沈着の各過程が計算され、放射・雲への影響が考慮されている。エアロゾルに関しては、硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)・硝酸塩(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)・二次有機エアロゾル(SOA)の生成について、化学反応とリンクしたシミュレーションが実装されている。また、黄砂などのダスト粒子表面上の不均一反応を考慮し、二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)がダスト表面上で硫酸(硫酸カルシウム

CaSO<sub>4</sub>)に変化する過程も含まれる。ダストについては、雲水中で、硫酸や硝酸等の陰イオンを、アンモニウム(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)とともに中和する過程も表現される。また、BC が大気中で硫酸などの凝縮により疎水性から親水性へと変化し吸湿性を獲得する変質過程も表現している。二次有機エアロゾル(SOA)については、イソプレンやテルペン類の酸化過程からの生成を化学反応計算とリンクさせながら計算している[須藤ら, 2012]。CHASER は、陸域・海洋の生態系を介した炭素循環・窒素循環も含めた地球システムモデル[Watanabe et al.,2011] としても、現在開発・研究が進められているところである。

化学輸送モデルや化学気候モデルによる実験には、エアロゾルやオゾン等について、一次物質・前駆気体の全球排出データが必要である。産業や交通など人為起源の排出源については、EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research)のデータベース(発電・燃料消費や交通など、各国の各種統計値から推計)が最も広く利用されており、バイオマス燃焼起源の排出については、GFED (Global Fire Emission Database) [van der Werf, et al., 2010] や MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate)プロジェクト [Kaiser et al., 2012] により、衛星観測の燃焼面積などから推定したデータが提供されている。また、イソプレン等の植物起源の VOCs (BVOCs) については、MEGAN [Guenther et al., 2012] モデルによる推定データが広く利用されている。

図 5 は、各種前駆気体のエミッション分布を示すが、2010 年については、アジア域(中国～インド)でとくに際立った排出量があることがみられるが、北米・欧州の寄与も依然として大きく、NO<sub>x</sub> については船舶からの排出を反映し、海洋・航路上でも比較的大きな排出が確認できる。エミッションデータは、化学輸送計算や化学気候計算の最重要入力データの一つであるが、最近のデータも含め、その不確実性は小さくない。このような不確実性低減のため、各物質の人工

衛星や各種観測による濃度データから、化学輸送モデルによる逆解析でエミッションを推定しようという研究も展開されつつあり、上述の CHASER によるデータ同化[Miyazaki et al., 2015]を用いた、エミッション逆推定例もある[Miyazaki et al., 2016]。ただし、この場合のエミッション推定結果には、濃度観測の誤差に加え、化学輸送計算における誤差・不確実性が含まれていることに注意が必要である。

#### 4. 微量気体・エアロゾルの経年変動

次に、上で概説した化学気候モデルのうち、著者らの開発している CHASER による過去再現計算の結果について述べる。この再現計算は、化学気候モデルの相互比較プロジェクトである CCMI (Chemistry Climate Model Initiative) [Eyring et al., 2013;

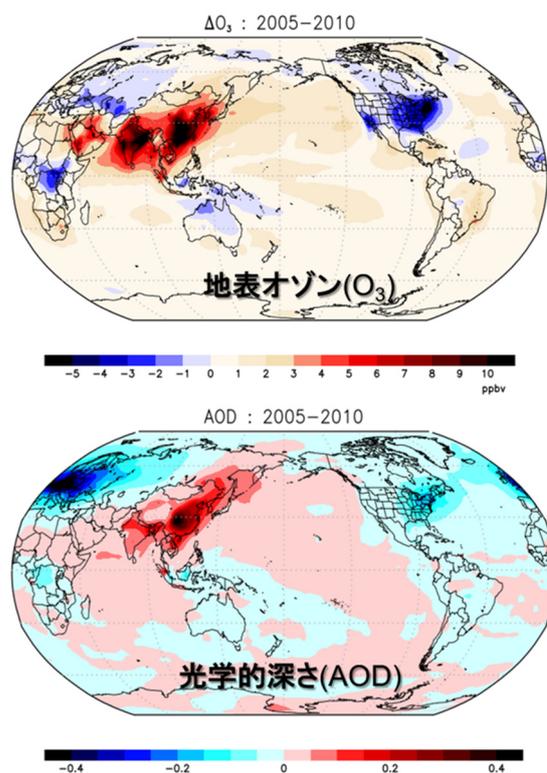


図 6 化学気候モデル CHASER により再現された 1980～2010 年(30 年間)の地表オゾン濃度(上)とエアロゾル光学的深さ(下)の変化。

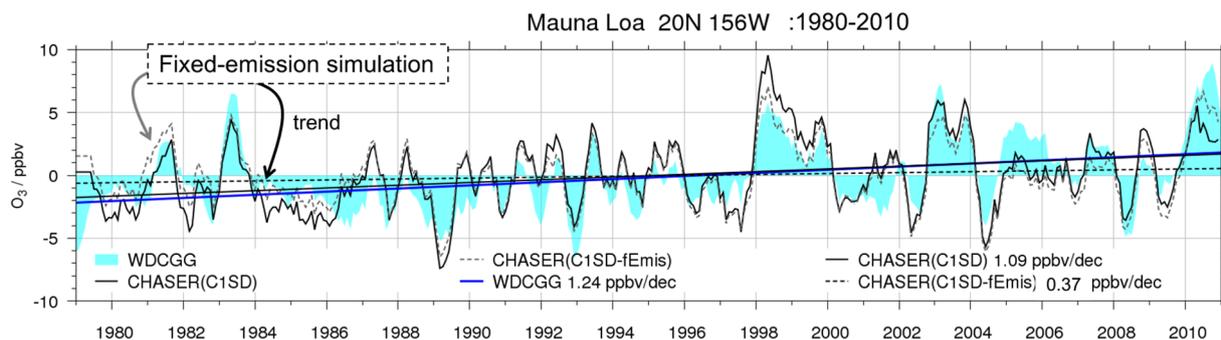


図 7 マウナ・ロアにおけるオゾンの年変動アノマリ。

水色部・青実線は WDCGG(World Data Centre for Greenhouse Gases)による観測値, 黒実線は CHASER による標準実験, 破線は, 前駆気体エミッションを 1980 年値で一定とした実験。

Morgenstern et al., 2016] の枠組みとして実施したものである。CCMI では, エアロゾル・オゾンの前駆物質のエミッション, 温室効果気体濃度, オゾン破壊物質濃度, 成層圏エアロゾル(火山起源)量, および太陽変動についての複数の感度実験が設定され, 世界各国の 18 の化学気候モデルが参加し, 大気微量成分の全球分布についての過去再現および将来予測が行われた。

図 6 は CHASER で計算された過去 30 年間(1980-2010 年)の年平均の地表オゾンおよび波長 550 nm に関するエアロゾル光学的深さ(AOD)の変化量である。中国～インドのアジア域で 10 ppbv を超える大きなオゾン増加が計算されている一方で, 北米・欧州では, オゾン減少となっており, とくに北米での減少が顕著(>5ppbv)である。エアロゾルについても中国域に大きな増加がみられるなど, オゾンとほぼ同様の傾向がみられるが, 減少については, 欧州でとくに大きい値が確認できる。したがって, ここ 30 年間で, 大気汚染の中心はヨーロッパ・北米からアジアへとシフトし, 緯度的には, 北半球の高緯度から低緯度に重心移動が起きている。高緯度よりも低緯度の方が化学反応に寄与する紫外線量や水蒸気量が豊富であり, 対流による鉛直輸送も活発で長距離輸送につながりやすいため[Yu et al., 2013b], 大気汚染の低緯度域へのシフトの影響は大きい。実際, 1980-2010 年の 30 年間の対流圏オゾンの増加のほとんどは, 上述の

ような大気汚染源の緯度的なシフトによる寄与に支配されているというモデル研究例がある [Zhang et al., 2016]。

以上のように大気微量成分の長期変動は大気汚染物質の排出量変化に同期して起きていると考えられるが, 短期・年々変動はどのようにして起きているのであろうか? CHASER による感度実験結果では, 地表のオゾンやエアロゾルの濃度の年々のバラツキの大きさ(1 $\sigma$ )は, 一酸化炭素(CO)の年々変動と相関が高く( $r=0.84$ ), とくに陸域では地表オゾン・エアロゾルの短期変動はバイオマス燃焼の年々変動によって支配されていることが示唆されている。ただし, 日本を含めた太平洋西部や, 北米東部では, ENSO(エルニーニョ・南方振動)などによる気象場の年々変動の寄与も大きいことが確認されている。気象場の年々変動は, とくに自由対流圏での物質分布に支配的な影響を及ぼしており, 対流圏のカラムオゾン量が, 領域により, ENSO に加えてモンスーン循環・ハドレー循環の年変動や北極振動(AO)に強く支配されていることが CHASER による解析から明らかになっている [Sekiya and Sudo, 2014]。

次に, 再び大気微量成分の長期変動に着目する。図 7 は, マウナ・ロア(ハワイ)の観測サイト(高度~3,400 m)における, オゾンの長期変動傾向(アノマリ)について, CHASER モデルによる再現計算と観測を比較したものである。モデルは観測にみられるオゾン

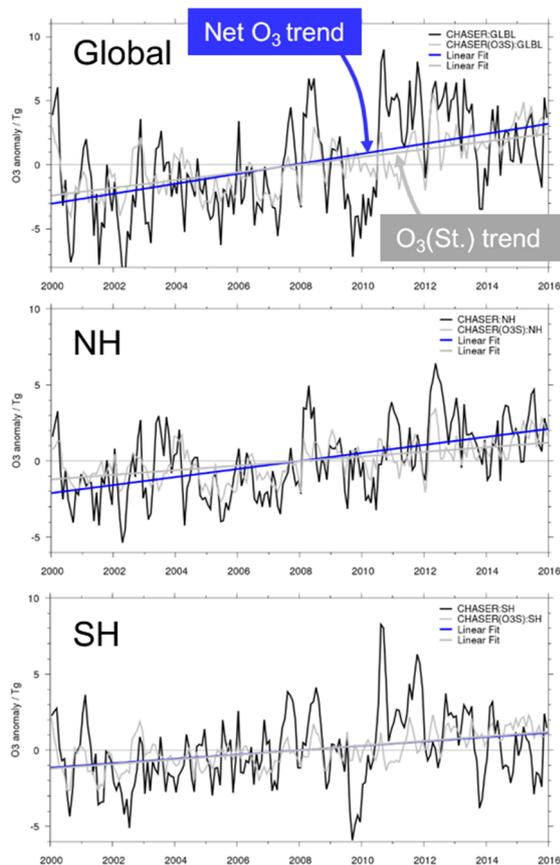


図 8 化学気候モデル CHASER により計算された 2000 年～2015 年の全球・半球の対流圏オゾン量(Tg)のアノマリ。黒実線はネット(合計)オゾン量(O<sub>3</sub>), 灰実線は成層圏起源の寄与 O<sub>3</sub>(St.) を示す。

の経年変動を基本的によく捉えており、オゾンの長期トレンドは主に上述の前駆気体エミッションの長期変化の寄与 (1.09 ppbv dec<sup>-1</sup>) に支配されていることを示している(注:dec は 10 年間を表す)。ただし、エミッション以外の要因(主に気象場・気候変動)も顕著な正のオゾントレンド(0.37 ppbv dec<sup>-1</sup>)を及ぼしていることが計算されている。このエミッション以外の要因の影響は、とくに 2000 年以降、インド洋・インドネシア・太平洋等の広域にわたって、強い正の対流圏オゾントレンドを生んでいることをモデル計算は示唆している。上に挙げたマウナ・ロアの場合、この正のオゾントレンドは、2000-2015 年について、1.50 ppbv dec<sup>-1</sup> と計算され、これは同期間の観測にみられるトレンド(1.37 ppbv dec<sup>-1</sup>)とも合致する傾向である。

2000 年以降の対流圏オゾン増加傾向については、アジア域近傍に関しては、中国域の前駆気体エミッション増加が大きく関与している可能性が強い[Miyazaki et al., 2015, 2016]。しかしながら、その他の領域においては、上述のように気象場の変動を主とする非エミッション要因の寄与が大きいようである。図 8 は、2000-2015 年を対象とした CHASER 再現計算で計算された対流圏オゾン量の時系列変動である。この再現実験では、NO<sub>x</sub> 等の前駆気体の人為起源エミッションは 2000 年値で一定としているため、ここにみられるオゾン変動は、気象場およびバイオマス燃焼の年々変動によるものであるが、別の感度実験により、そのほとんどは気象場変動によるものであることが確認されている。図 8 では、全球的にオゾン量の増加傾向がみられ、そのオゾントレンドのほとんどは成層圏起源のオゾンの増加で説明できることがわかる。実際、オゾン STE 量は、2000-2015 年で 15%程度増加していることが計算されている。2000 年以降は、成層圏オゾン量が弱い回復傾向にあるとされているが[WMO, 2014], 本再現計算の結果は、成層圏のオゾン量の変化ではなく、気象場変動による大気循環の変動が、成層圏から対流圏へのオゾン流入量を増加させていることを示唆している。

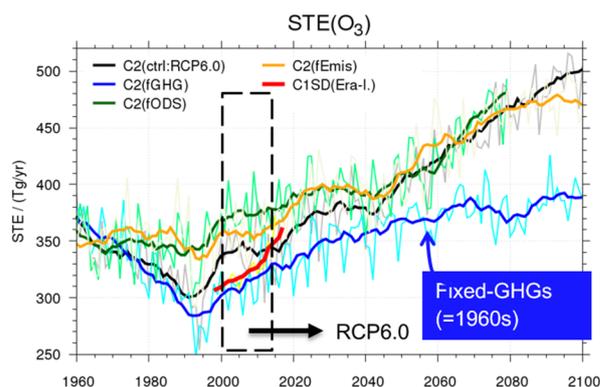


図 9 化学気候モデル CHASER により再現・予測されたオゾンの成層圏・対流圏間交換量(STE)。黒実線は全ての変動要因(強制)を含む標準実験、青実線は温室効果気体濃度を一定とし温暖化を考慮しない実験、緑実線はオゾン破壊化学種(ODSs)の濃度を 1960 年値に一定とした実験。2005 年以降の将来予測実験については、IPCC の RCP6.0 シナリオによる GHGs 濃度、エミッションが与えられている。

これまでのモデル予測研究 [Sudo and Takahashi, 2003; Zeng and Pyle, 2003; Kawase et al., 2011] からは、温暖化に伴う成層圏循環の強化がオゾン STE を増加させる可能性が指摘されている。本研究の CCM1 実験においても、将来に向けて、オゾン破壊物質 (ODSs) の減少によるオゾン層回復に加え、温暖化による大気循環強化がオゾン STE を顕著に増大させていくことが計算されている (図 9)。したがって、上で述べた近年の対流圏オゾン量の増加傾向は、温暖化による大気循環の強化とこれに伴う STE の増加が既に始まっていることを示している可能性が高い。

### 5. 大気酸化能(OH)変動

以上のように、対流圏中の微量気体や化学過程は気候変動に伴い長期変動している可能性が高い。この傾向は、大気酸化能を支配する OH ラジカルの濃度変動としても例外ではない。本研究の CHASER による再現計算では、上述のような気象場変動やこれに伴うオゾン変動等によって、OH ラジカル濃度が全球的に増加している可能性が示唆されている。OH 増加の分布としては、とくに熱帯域～低緯度域の OH 増加 (2-5% dec<sup>-1</sup>) が顕著であり、これには、対流圏オゾン、水蒸気、雷からの NO<sub>x</sub> 生成、紫外線(雲の散乱による)が大きく寄与していることが確認される。また、バイオマス燃焼起源の CO エミッション変動も OH 増加トレンドに顕著に影響している可能性も示唆された。このような OH 増加傾向によってメタンの大気中寿命は 2000-2015 年の 16 年間で 2%減少し、気温変動(温暖化)によるメタン破壊反応の強化も加味すると、3%程度の減少となっていることが計算されている (図 10)。より長い時間スケールでは、OH 変動はこれまでのメタンの変動傾向に重要な影響を及ぼしている可能性があり [e.g., Naik et al., 2013], 今後、OH 変動のメタン濃度変動への寄与が増大することも考えられる。OH はメタンに限らず、エアロゾル前駆気体の酸化やエアロゾルの変質の各過程を担っており、大気環境、気候に与える影響も大きい。このため、各種

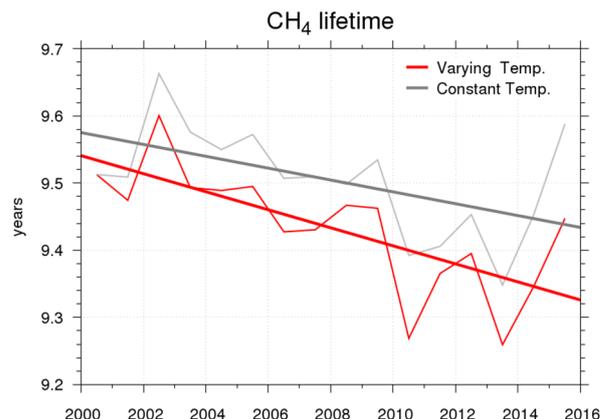


図 10 化学気候モデル CHASER による再現計算における、メタンの大気中寿命の長期変動。赤実線は、OH 変動と気温変動を考慮した例、灰実線は OH 変動のみを考慮して計算した例。

エミッションの変動だけでなく、今後の OH 濃度変動にも注視が必要である。

### 6. 化学気候モデリングの課題

数値モデルに課される任務は、現実世界で起きている現象をできるだけ忠実に表現・再現することにつぎ。本稿で議論した化学気候モデルについては、現状では、大気中の物理化学過程が一通り網羅され、本稿冒頭で述べたように観測との比較を通じた検証プロセスを経て、ある程度成熟した状態にあるといえるかもしれない。しかしながら、気候モデルと同様に、計算コスト・資源の制約から、依然としてある種大胆な仮定・単純化が含まれることは否めない。例えば、化学気候モデルでは、エアロゾル計算において、各種エアロゾルの粒径分布があらかじめ仮定されることも多いが、実際には大気中で凝縮・併合などによる粒径変化や多種成分の混合、雲凝結核化のような粒子の時間発展・動力学 (aerosol dynamics) に関する微物理過程が適切に表現されるべきである。このような微物理を含む化学気候モデルも近年開発されつつあるが、トレーサー数の増加等で計算機コストが上昇するため、モデルの空間解像度とトレードオフの関係にあり、現時点では細かい微物理表現よりも、空間解像度の向上が優先される雰囲気があるように感じ

られる。また、エアロゾル表面上で起きる不均一反応や雲水中の液相反応にはまだ不確実性が大きく、とくに有機成分の不均一反応過程 [Molina *et al.*, 2004] には未解明な部分が多い。このような過程については、室内実験や観測によるデータを逐次的にモデル計算に導入し、適切な検証のうえ、モデル計算全体としての正確性の向上を常に図っていくべきであろう(必ずしも正確性につながらない場合もあるかもしれない)。

化学気候モデリングについてのもう一つの不確実性要因は、各種物質のエミッション(排出量)と思われる。近年は、微量成分の全球衛星観測が充実しており、これにデータ同化手法を組合せた逆推定によって、長期変化も含めたエミッション動態が把握され出している[e.g., Miyazaki *et al.*, 2016]。しかし、この逆推定では、化学輸送モデルや化学気候モデルが用いられるため、上述のような化学気候モデル自体の不確実性低減がやはり重要となる。エミッションについては、人為起源のみならず、自然起源、とくにイソプレン等の植物起源 BVOCs も大気化学・エアロゾル過程に与える全球的な影響が大きいと考えられ、重要度が高い。BVOCs のエミッションについては、陸域生態系モデルからの推定結果[Guenther *et al.*, 2012, *etc.*]に頼ることが多いが、推定エミッションの量・分布に加え、それを入力として計算されるイソプレンやその酸化生成物(アルデヒドやエアロゾル種)の大気中濃度の検証などは正に不完全な状態であり、今後、直接観測の充実や衛星観測データを用いた詳細な検証が進められていくことが期待される。また、陸域生態系とのやりとりという意味では、大気からの硝酸等の窒素成分の沈着を介した土壌への窒素供給 [Dentener *et al.*, 2006] も陸域生態系の重要な変動要因になる可能性があり、これの解明には、化学気候モデルと陸域生態系モデルの結合による大気・陸域相互作用の研究が期待される。

最後に、5 節でも述べた対流圏 OH ラジカルの全球分布・変動についてである。OH はその大気中の寿

命の短さから濃度測定が難しく、全球分布や平均濃度を直接的に観測することは不可能である。これまで、メチルクロロホルム(MCF)やメタンの全球平均濃度を代理指標として全球平均 OH 濃度を推定し、化学気候モデルによる OH 計算の検証に利用されてきた [Rigby *et al.*, 2013, *etc.*]。しかしながら、最新の MCF 観測を用いた研究 [Patra *et al.*, 2014] では、化学気候モデルの計算では、南半球に比べて北半球で OH 濃度を大幅に過大評価している可能性が指摘されており、現状の化学気候モデルによる大気化学計算の不完全性が顕在化した状態となっている。この「OH 問題」については、著者らの CHASER をはじめ、他のモデリンググループでも取り組んでいるところであり、この問題がもし解明・解決されたときには、上に挙げたモデリング上の不確実性の低減も併せて期待できるものと予想される。

## 7. 結言

本稿では、対流圏大気の微量成分の経年変動に焦点を当てながら、化学気候モデリングの役割・現状を整理した。冒頭で述べたように、数値モデルの利点は、各種プロセスや要因・起源を分離できることにあり、化学気候モデルとしては、大気環境・気候の変動に関する各種要因や各物質の寄与を定量的に示すことが大きな任務である。言い換えれば、大気化学のプロセスはオゾン・エアロゾルや OHなどを介し、温暖化・大気汚染・成層圏オゾンの諸問題を結びつけていると考えられるが、化学気候モデルにはその結びつきを紐解く役割が期待されているのであろう。しかしながら、その前提として、モデルが現実の物理化学プロセスを十分に再現していることが担保されていなければならない。そのためには蓄積されつつある各種観測データを利用した継続的なモデル検証と修正・改良が本質的に重要である。

化学気候モデルのもう一つの任務は、気候モデルがそうであるように、将来の大気環境・気候を予測することにある。このような予測計算のうち、数十年～

100 年後についてはすぐに検証することもできず、純粋科学とは言い難い代物かもしれないが、これに将来の地球環境変動に対する「備え・警戒」としての意味を持たせるのであれば、やはり年々蓄積される観測で常に検証・修正しながら、長期予測の不確定性の幅を狭めていくことが必須であろう。このため、温暖化にしても、オゾン層回復にしても、将来予測は、モデリングだけでなく、継続的なモニタリングとの両輪で初めて意味をなすと考えられる。

化学輸送モデルおよび化学気候モデルの利点は各種要因や起源の分離であることは先に述べたが、現状では、観測・実験とモデルとの融合・結合はまだ十分とは呼べない状況にあり、観測と協調したモデル研究、またはモデルと協調した観測研究について、今後の活性化の余地が大きい。また、化学気候モデルとしては、陸域・海洋の生態系プロセスと結合した地球システムモデルとしての発展が今後期待できることは 6 節で紹介したが、ここからは、温暖化や大気環境変動のメカニズムの理解に、これまでになく新しい考え方・方向性が生まれ出ることを著者は期待している。

## 謝辞

本研究の一部は、環境省の環境研究総合推進費 (S-12) および、科研費 (16H02937, 25241006) プロジェクトにより実施されたものです。また、モデル実験の一部は、海洋研究開発機構の地球シミュレータ、および国立環境研究所地球環境研究センターのスーパーコンピュータを用いて実施されています。

## 参考文献

- Bond, T. C., et al. (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171.
- Cooper, O. R., Gao, R.-S., Tarasick, D., Leblanc, T. & Sweeney, C. (2012), Long-term ozone trends at rural ozone monitoring sites across the United States, 1990-2010. *J. Geophys. Res.* 117, D22307.
- Dentener, F., et al. (2006), Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation, *Global Biogeochem. Cycles*, 20, GB4003, doi:10.1029/2005GB002672.
- Doherty, R. M., et al. (2013), Impacts of climate change on surface ozone and intercontinental ozone pollution: A multi-model study, *J. Geophys. Res.*, 118:3744–3763, doi:10.1002/jgrd.50266.
- Eyring, V., et al. (2013), Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Community Simulations in Support of Upcoming Ozone and Climate Assessments, *SPARC Newsletter* No. 40, p. 48-66.
- Guenther, A. B. Jiang, X. Heald, C. L., Sakulyanontvittaya, T. Duhl, T., Emmons, L. K., Wang, X. *Geosci* (2012), *Model Dev.*, 5, 1471–1492, doi:10.5194/gmd-5-1471-2012
- HTAP (2010), Hemispheric Transport of Air Pollution 2010 - Part A Ozone and Particulate Matter, United Nations Economic Commission for Europe.
- IPCC (2013), Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp, doi:10.1017/CBO9781107415324.
- K-1 Model Developers (2004), K-1 Coupled GCM(MIROC) Description, Teck. report 1, The Center for Climate System Research, University of Tokyo.
- Kaiser, J. W., et al. (2012), Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power, *Biogeosciences*, 9, 527-554, doi:10.5194/bg-9-527-2012.
- Kawase, H., T. Nagashima, K. Sudo, and T. Nozawa (2011), Future changes in tropospheric ozone under Representative Concentration Pathways (RCPs), *Geophys. Res. Lett.*, 38,

- L05801, doi:10.1029/2010GL046402.
- McElroy, M.B., et al. (1992), The changing stratosphere, *Planet. Space Sci.*, 40, 373-401.
- Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Boersma, K. F., Bowman, K., and Kanaya, Y. (2016), Decadal changes in global surface NO<sub>x</sub> emissions from multi-constituent satellite data assimilation, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, doi:10.5194/acp-2016-529.
- Miyazaki, K., H. J. Eskes, and K. Sudo (2015), A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES and MOPITT satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315-8348.
- Molina, M. J., Ivanov, A. V., Trakhtenberg, S., and Molina, L. T. (2004), Atmospheric evolution of organic aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L22104, doi:10.1029/2004GL020910.
- Morgenstern, O., et al. (2016), Review of the global models used within the Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI), *Geosci. Model Dev. Discuss.*, doi:10.5194/gmd-2016-199.
- Naik, V., et al. (2013), Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5277-5298, doi:10.5194/acp-13-5277-2013.
- Patra, P. K., et al. (2014), Observational evidence for interhemispheric hydroxyl-radical parity, *Nature*, 513, 219-223 DOI: 10.1038/nature13721.
- Rigby, M., et al. (2013), Re-evaluation of the lifetimes of the major CFCs and CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> using atmospheric trends, *Atmos. Chem. Phys.* 13(5): 2691-2702.
- Samset, B. H., et al. (2016), Fast and slow precipitation responses to individual climate forcings: A PDRMIP multimodel study, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 2782–2791, doi:10.1002/2016GL068064.
- Sekiya, T. and K. Sudo (2014), Roles of transport and chemistry processes in global ozone change on interannual and multidecadal time scales, *J. Geophys. Res.*, 119, 8, 4903-4921.
- Shindell, D. T., et al. (2013), Radiative forcing in the ACCMIP historical and future climate simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2939-2974, doi:10.5194/acp-13-2939-2013.
- Sudo, K., and H. Akimoto (2007), Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, *J. Geophys. Res.*, 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992.
- Sudo, K., M. Takahashi, and H. Akimoto (2003), Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations *Geophys. Res. Letters.*, 30, 2256 10.1029/2003GL018526.
- Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto (2002), CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD001113.
- 須藤健悟 (2014), 地球温暖化-第 4 講 大気汚染と地球温暖化-, *大気環境学会誌*, 49(2), A25-A35.
- 須藤健悟, 荻原由紀恵 (2012), 化学気候モデルにおける二次有機エアロゾルの全球モデリング, *エアロゾル研究*, 27 巻 1 号, 51-61.
- UNEP (United Nations Environment Programme) (2011), Opportunities to Limit Near-Term Climate Change: An Integrated Assessment of Black Carbon and Tropospheric Ozone and Its Precursors. Nairobi, Kenya: United Nations Environment Programme and World Meteorological Organization.
- WMO (2014), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014. Geneva: *World Meteorological Organization*.
- WMO (1999), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1998. Geneva: *World Meteorological Organization*.
- Young, P. J. et al (2013), Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP). *Atmos. Chem. Phys.* 13, 2063-2090.
- Yu, H., et al. (2013a), A multi-model assessment of the influence of regional anthropogenic emission reductions on aerosol

- direct radiative forcing and the role of intercontinental transport, *J. Geophys. Res.*, 118:700-720, doi:10.1029/2012JD018148.
- Yu, H., et al. (2013b), Satellite perspective of aerosol intercontinental transport: From qualitative tracking to quantitative characterization, *Atmos. Res.*, 124, 73-100.
- van der Werf, G. R., et al. (2010), Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11707-11735, doi:10.5194/acp-10-11707-2010.
- Watanabe, S., et al. (2011), MIROC-ESM 2010: model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments, *Geosci. Model Dev.*, 4, 845-872, doi:10.5194/gmd-4-845-2011..
- Zeng, G, and J. A. Pyle (2003), Changes in tropospheric ozone between 2000 and 2100 modeled in a chemistry-climate model, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 30, NO. 7, 1392, doi:10.1029/2002GL016708.
- Zhang, Y., O.R. Cooper, A., Gaudel, A.M. Thompson, P. Nedelec, S., Ogino, and J. West (2016), Tropospheric ozone change from 1980 to 2010 dominated by equatorward redistribution of emissions, *Nature Geoscience*, doi:10.1038/ngeo2827.

---

原稿受領日: 2016 年 11 月 21 日

掲載受理日: 2016 年 11 月 29 日

**著者所属:**

1. 名古屋大学・大学院環境学研究科
2. 海洋研究開発機構

**\*責任著者:**

Kengo Sudo <kengo@nagoya-u.jp >