

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第 36 号

日本大気化学会

Japan Society of Atmospheric Chemistry

総説

ートピックス:シミュレーションで探る大気の化学-

成層圏化学モデルの進展とオゾン層の研究	036A01
植生起源 VOC の広域推定モデル伊藤昭彦	036A02
化学気候モデルで探る大気微量成分の全球変動須藤健悟	036A03
大気化学データ同化	036A04
水表面の不均一化学の分子シミュレーション	036A05

第12回日本大気化学会奨励賞受賞記念論文

大気エアロゾルに対する水蒸気の作用	036A06
全球大気輸送モデル NICAM-TM を用いた二酸化炭素のフラックス解析に関する研究	
	036A07

会員からのお知らせ

AOGS 2016(第13 回アジアオセアニア地球科学会年会)参加報告梅澤拓	036N01
QOS 2016 参加報告長濱智生	036N02
IGAC 2016 の参加報告藤田遼	036N03
東アジア大気環境の航空機観測を考える意見交換会からの報告	
林田佐智子,金谷有剛	036N04
2nd International Workshop on Heterogeneous Kinetics	
Related to Atmospheric Aerosols 開催報告」廣川淳, 森田明弘, 猪俣敏	036N05

学会からのお知らせ

JpGU-AGU Joint Meeting 2017 での大気化学セッション開催のお知らせ			
	036N06		
第 22 回大気化学討論会開催報告			
	036N07		
日本大気化学会役員選挙の公示日本大気化学会 選挙管理委員会	036N08		
第12回日本大気化学会奨励賞の選考結果について 日本大気化学会 運営委員会	036N09		
第 37 回日本大気化学会運営委員会議事録 日本大気化学会 運営委員会	036N10		
日本大気化学会会員集会プログラム 日本大気化学会 運営委員会	036N11		

記事のご投稿について

論文や記事のご投稿をご検討されている方は,事前に本誌編集委員または日本大気化学会運営委員まで ご相談下さい。

日本大気化学会第九期運営委員:

今村隆史(国立環境研究所),入江仁士(千葉大学),岩本洋子(東京理科大),○江波進一(国立環境研 究所),梶井克純(京都大学),○澤庸介(気象研究所),○高橋けんし(京都大学),竹川暢之(首都大学 東京),谷本浩志(国立環境研究所),松見豊(名古屋大学),町田敏暢(国立環境研究所),村山昌平(産 業技術総合研究所),持田陸宏(名古屋大学)

〇印は本誌編集委員

成層圏化学モデルの進展とオゾン層の研究

Progress in stratospheric chemistry model and ozone layer research

秋吉英治1*

1980年代から1990年代頃の,成層圏化学モデルが緯度-高度の2次元モデルから3次元モデル へ移りつつある時代のグローバルな大気微量成分分布の研究を,国立環境研究所で行った化学気 候モデルの開発・研究との関連において概観する。化学気候モデルを利用したナッジングモデルに ついて,その開発経緯と有用性を示す。このモデルによって,極渦に関連した大気力学プロセスが微 量成分分布にどのように反映されるかについて解説する。国際共同研究 Chemistry Climate Model Validation (CCMVal)や Chemistry Climate Model Initiative (CCMI)で行われたオゾン層関連研究 についても簡単に触れる。

1. はじめに

3次元化学気候モデル,化学輸送モデルがオゾン 層の将来予測や気候予測,観測された分布・変動の 再現・解析に頻繁に使われる時代となった。3 次元モ デルによって、地球上のいろいろな場所、高度のオ ゾンや気温の変化のみならず, それに関わる物理 量・大気微量成分濃度の変動も同時に見ることが可 能である。筆者はオゾン層を取り扱う化学モデルが 2 次元モデル(緯度-高度断面で経度平均された量を 取り扱うモデル)の時代から3次元モデルに移りつつ ある時代に、オゾンホールの発見 [Chubachi, 1984; Farman, 1985] をきっかけにオゾン層の研究に関わ るようになった。本稿では国立環境研究所で行った3 次元化学気候モデル,ナッジング化学気候モデルを 用いた研究を中心に紹介すると共に,3 次元モデル でなければわからないありがたみのようなものを伝え ることができればと思っている。

2. 緯度-高度2次元モデル

オゾンなどの大気微量成分に係わる化学計算を行 う数値モデルとして,空間次元の低い方から並べると 0次元ボックスモデルがあり(化学反応計算のみ),次 に鉛直1次元モデルがあり(化学反応計算と鉛直渦 拡散係数による鉛直分布の計算)[Shimazaki and Ogawa, 1974; Ogawa and Shimazaki, 1975],その次 に緯度-高度分布を再現するための2次元モデル がある(化学反応+南北移流・鉛直移流+水平渦拡 散・鉛直渦拡散)。その先は3次元モデルなのだが, 3次元モデルで大気微量成分の1年~数十年間の グローバル分布の計算を行うことは, 1980年代の計



図 - 程度中均にオフラ王重の時間変化 と緯度分布。TOMS 観測の 1995-2004 年 の平均値を示す。

算機の能力に見合うものではなかった。一方で,す でに TOMS によるオゾン全量観測によって経度平均 オゾン全量の時間-緯度分布が作られていたが [Dütsch, 1971], 2 次元モデルであればそれに対応す る結果を出すことができる。2次元モデルによって、 図1に示されるような, 南極域を除く中高緯度域にオ ゾン量が多い理由や渦拡散の影響の大きさなど、大 気力学に基づく輸送の影響が定量的に議論できるよ うになった [Pyle and Rodgers, 1980; Garcia and Solomon, 1983]。オゾンホールやこういった論文に刺 激されてオゾン量を計算できる簡単な 2 次元モデル を作ってみた。まず,緯度方向の輸送を全く考えず, 化学オゾン生成/消滅と時間的に一定の鉛直渦拡 散係数だけで計算してみた。これは,鉛直1次元の 計算を各緯度で行ったことと同じになり、当然のこと ながら赤道付近の夏にオゾン全量の最大値, 両極の 冬に最小値ができる。次に,オゾン加熱の季節変動 だけで駆動される中層大気の大循環を加えると、季 節変化するオゾン輸送(成層圏で夏半球側から冬半 球側へ向かう流れ)と光化学(夏にオゾン生成最大) との兼ね合いで最大値は中緯度に移り、その季節も 夏から春へ移る。また,最小値は冬から秋に移る。こ れで季節変動のパターンは観測データにだいぶ近く なった。しかしながら、オゾン全量の絶対値も、季節 変動の振幅も, 観測値を説明するにはまだ不十分で あったし、最大値を示す緯度帯も観測に比べるとや や赤道よりに存在した。残りの部分は赤道対流圏か らの上昇流や対流圏から伝搬してきた大気波動の減 衰によって駆動される流れで説明される。2 次元モデ ルではその渦拡散の担い手の大気波動を陽には表 せないので,この部分はアメリカの地球流体力学研 究所(Geophysical Fluid Dynamics Laboratory: GFDL) の3次元大気大循環モデルで計算された流れ [Plumb and Mahlman, 1987] と渦拡散係数のデータ を使って季節変動の再現を試みた[Akiyoshi and Uryu, 1992] 。

そのうち衛星観測データが充実してきて短期間で

地球の多くをカバーする大気微量成分の3次元分布 が得られるようになると、観測された分布を説明する ものとして2次元モデルでは用をなさなくなってきた。 もちろん今日でも、2次元モデルもその計算負荷に 対する軽さから需要はあり、 例えばフロンや様々な温 室効果ガスによるオゾン量への影響の計算に使われ ている [Fleming et al., 2011]。 3 次元化学モデルが 開発されて1年~数十年の計算が可能になったのは 1980 年代の終わりから 1990 年代に入った頃である [Rose and Brasseur, 1989; Austin and Butchart, 1992]. 東京大学気候システム研究センター(Center for Climate System Research: CCSR, 現在は東京大学大 気海洋研究所気候システム研究系)との共同で CCSR/NIES 化学気候モデルの開発を行い(National Institute for Environmental Studies, 国立環境研究所 の略称),世界的に見ても早い時期に2050年までの オゾン層の将来予測を行った [Nagashima et al., 2002].

3. 化学輸送モデルとしてのナッジング化学気候モデル

3 次元化学気候モデルは、フロン・ハロン等のオゾ ン層破壊物質や、二酸化炭素(CO₂)、メタン(CH₄)、 亜酸化窒素(N₂O)等の温室効果ガス濃度の過去の 観測データ,または将来シナリオの下に計算を行い, 過去に観測されたオゾン層変化の計算やオゾン層の 将来予測ができる有用なモデルである。境界条件と して外部からモデルに与えるのは,太陽フラックスや 海水面温度,オゾン層破壊物質や温室効果ガスの 濃度またはフラックスのみであり、これらの季節変動 や年々変動でモデルの気温や風が変化し、それによ ってグローバルなオゾン分布が変化する。しかしなが ら,計算された過去の日々のオゾン分布の変化を直 接,毎日の観測されたデータと比較することはできな い。なぜなら、モデルの毎日の風や気温の分布は実 際の毎日の風や気温とは異なるためである。そのた め, 化学気候モデルでは, 例えば 10 年くらいの長期

間で平均したオゾン分布を月ごとに観測データと比 較してその妥当性を確認するというようなことを行う。 また,例えば極渦が強すぎる等,モデルの中で計算 された気象場に問題がある場合,それによって気温 やオゾンの輸送量が影響を受け,オゾン分布が悪影 響を受ける。

より現実的なオゾン分布の再現のために,気温や 風速などの気象場だけ観測データを取り込んだ客観 解析データを使い、このデータを使ってオゾンの化 学生成/消滅と輸送をモデルの中で計算し、観測され た毎日の3次元オゾン分布の再現を行うモデル(化 学輸送モデル)の開発も 1990 年代に行われた [Chipperfield et al., 1993; Lefevre et al., 1994]。当時 日本でも開発を行おうとしていたが, 化学輸送モデ ルに客観解析データの気温や水平風を取り入れるこ とには問題はなかったが、同時にその鉛直風データ をそのまま取り入れると計算されたオゾン分布がおか しくなるという問題があったようである。Chipperfield et al. [1993] のモデルは,客観解析データで初期化し た General Circulation Model (GCM)を使って計算さ れた気温や風を使って短期間の計算を行っていた。 その少し後の Chipperfield et al. [1996] では,客観解 析データを使って,いくつかの温位面上で鉛直方向 の輸送は無視した3ヶ月程度の計算を,冬の北極に ついて行っていた。Lefevre et al. [1994] は, 3 次元化 学輸送モデルに客観解析データを直接使っていたよ うだ。観測データとの直接比較やモデルの化学過程 を検証する上で,化学輸送モデルはどうしても必要 な道具だった。

そこで筆者らは、開発した水平解像度 T42(経度 2.8°×緯度 2.8°)の化学気候モデルに、ナッジングと いう手法で気温と水平風速の客観解析場を同化する ことにより化学輸送モデルとすることにした。この方法 では、問題だった鉛直流はモデルの中で与えた気温 と水平風速によって計算されるので、鉛直流を外から 与えることの悪影響の心配は無い。

ナッジングの方法は,気温,水平風速,南北風速

の予測式の右辺にナッジング項という, モデルの計 算値と観測値との差に比例する強制項を付加するだ けである。

$$\frac{(x-x_{obs})}{\tau}$$

ここで x は, 気温または水平風速または南北風速 を表し, xobs はそれらの観測値, τ はナッジングのタイ ムスケールである。例えば,モデルの値 x が観測値 xobs に比べて大きすぎた時には、その差に比例して 負の強制がかかり, 観測値に近づけるように働く。観 測値と同じならば強制はかからない。この簡便な同化 手法は,国立環境研究所の菅田誠治氏に当時教え てもらったのだが, 元々ナッジングは, メソスケール現 象(空間スケールが 10~2000km 程度の現象, 例え ば、台風、積乱雲、海陸風などの現象)を含む予報 の精度向上のために、予報に使う初期値を良くする ために使われていたようである [Anthes, 1974; Hoke and Anthes, 1976; Brill et al., 1991]。これらの研究で は, nudging または Newtonian relaxation と呼ばれて いる。その後 1990 年代の半ば頃に、 グローバルな気 候モデルにナッジングの手法を取り込んで, 観測デ ータとの比較を行うような研究が見られる(例えば, *Jeuken et al.*, [1996]).

ナッジングは、式から明らかなようにその緩和時間 の与え方に任意性がある。いろいろ試してみたが、6 時間毎の客観解析データを使う場合、気温と水平風 速に対して緩和時間を1日程度にしておくと、オゾン やN2O等のグローバル分布に対して再現性のよい結 果が得られることがわかった。5日程度まで長くすると、 観測値による修正が効きにくくなり、気温やオゾンの 分布の空間パターンが観測データと異なってくるし (したがって空間パターンの移動によって起こる時間 変化も異なってくる)、短くしすぎるとナッジング項が 極端に大きくなってモデルで与えられている時間分 解能では計算が不安定になり、濃度の等値線が凸凹 するような非現実的な分布が得られた。太陽高度の 日変動に伴う大気微量成分の化学生成/消滅項の



20 60 100 140 180

図 2 北極を中心とした北半球の 600K 温位面上の N₂O 濃度分布のナッジング化学気候モデルによる 計算結果。赤丸は ILAS の観測点を表す。カラースケールの単位は ppbv。北極以外の白い部分は、濃 度がスケール外であることを示す。上が経度 0°,右が東経 90°の配置となっている。(左)1997 年 5 月 1 日,(中)5 月 13 日,(右)5 月 22 日の分布。周りに比べて N₂O 濃度の低い極渦起源の空気塊は その後 7 月下旬まで存在した。

変化はモデルで計算されるので、時間スケールが数 時間程度以上の大気微量成分濃度の変化を見る場 合には、1日くらいの緩和時間でほぼ問題ないと思わ れる。

4. 下部成層圏の N₂O 分布の解析

最初にこのナッジング化学気候モデル(化学輸送 モデル)で、下部成層圏の N₂O の北極渦崩壊に伴う 分布の変化の解析を行った。極渦崩壊によって,成 層圏では冬の西風が卓越している状態から夏の東風 が卓越している状態に変わる。このとき、大規模な南 北方向および上下方向の移流と気温の急変が起こり 極域の下部成層圏では下降流が強まり気温が急激 に上昇する[Labitzke, 1972, 1981; Matsuno and Nakamura, 1979]。この極渦崩壊は最終昇温(final warming)とも言われる。北半球高緯度の冬の成層圏 では、この最終昇温に似た気温の急変とそれに伴う 移流が度々起こるが,それらはこの最終昇温も含め て突然昇温と呼ばれる。N2Oは下部成層圏では化学 反応の影響がほとんど無く,極渦内では低濃度を示 すので極渦気塊のトレーサーとして扱える。過去に大 気大循環モデルの北極渦崩壊前後の時期の気象場

を使って N2O の分布を解析した研究例がある [Hess and Holton, 1985; Hess, 1990; Hess, 1991]。 これらの 研究では, Ehhalt et al. [1983] によって示された北極 渦崩壊後の夏の成層圏で見られる N₂O, CH₄, CFC の濃度分布の大きな変動は、極渦崩壊前に極渦内 部にあったこれらの物質の濃度の低い空気塊が一部, 極渦崩壊後の穏やかな夏の成層圏にそのまま残り, それが孤立した状態で夏の成層圏の東風に流され て観測点上空にやってきた時に異常に低い濃度を 示すために起こることを示した。この極渦起源の空気 塊の,混合がほとんどない孤立した状態は,空気塊 の氷結(frozen-in)と表現される。1997 年の北極渦崩 壊時には当時の環境庁の改良型大気周縁赤外分光 計 (Improved Limb Atmospheric Spectrometer: ILAS) が作動しており,国立環境研究所の中島英彰氏がつ くばの気象学会で NO₂(N₂O ではありません)の 1997 年4月~6月の北緯57度~67度の観測データの時 間-経度断面図を示した。その図中,極渦崩壊後の 期間に, NO2 の低い濃度を示す紫色の細長い筋が 斜め下方向にずっと伸びて,経度を変えながら長い 間存続していたのが気になり、実際はどういうことが 起こっているのかが知りたくて,学会から研究室に戻

ってきてすぐに、化学反応の影響をあまり受けない N2Oの分布の, 1997年のナッジング化学気候モデル の計算結果を作図してみた。するとやはり Hess らの 研究のとおり、極渦崩壊時に極渦内の低いN2O濃度 を示す空気塊は極渦崩壊後もしばらく残り,対流圏 からのプラネタリー波の伝搬が抑制された穏やかな 夏の成層圏で2ヶ月以上北極の周りを少しずつ薄ま りながら周回しているのが確認された(図 2)。そして 夏の成層圏の渦拡散係数の小ささを実感した。また、 後に行った解析により、この空気塊がだんだん薄まっ ていくのは水平方向の混合のみならず, 鉛直方向に 水平風速のシアー(勾配)が存在するのでそれによっ て最初,円柱状にほぼ垂直に立って存在していた低 い濃度の N₂O 空気塊がだんだん傾いてきてついに は引きちぎられる感じで混合が起こるためだということ も確認できた。ナッジング化学気候モデルによって、 極渦起源空気塊の3次元的な動きを追うことができ た。また、ILAS 観測の時刻・場所と同じ時刻・場所の モデルの N2O 濃度を抽出して図を作ってみたがよく 一致していた [Akiyoshi et al., 2002]。 我ながら感心 して、ナッジング化学輸送モデルを使って3次元の 力学場が微量成分分布にどう反映されるかについて いろいろ研究できるかもしれないという期待を持った。

その後,その他の年についても N₂O や渦位の,北 極渦崩壊前後の毎日の分布図を描いてムービーで 動かして眺めてみたが,1997 年ほど,しっかりした北 極渦が短期間で劇的に分解してしまう事例はあまり 見つからなかった。それだけにこの年は極渦崩壊後 の極渦空気の残骸を見るには適していたと言える。

また, 1997年の北極渦は南極渦並に安定していた とも言われるが, 空気塊のトラジェクトリーに基づいた 時間閾値解析法 [Sugata, 2000] とナッジング化学 気候モデルを使って調べると, 1997年の北極渦でさ え, 時々極渦内から外への大きな空気の流出イベン トがあり, 南極渦に比べると極渦内外の空気の交換 は大きいことがわかった [Akiyoshi et al., 2006]。

5. オゾン層の研究

トレーサー的な振る舞いを示す下部成層圏の N2O の分布の解析で3次元ナッジング化学気候モデルの 有用性を確認しつつ, 化学反応の影響も多大に受け るオゾン分布の解析も行った。2節に述べた緯度-高度の2次元モデルの世界では、成層圏突然昇温 によって下部成層圏では下降流が強まりそれによっ て上層からオゾンが輸送されてオゾン量が増加する という説明になっている。春季にオゾン破壊が起こっ ている現在の大気で3次元的に見ると、同じ緯度で もオゾン量の多い極渦外の場所と、化学的なオゾン 破壊が進んでオゾン量の少なくなっている極渦内と では同じようには説明できないのではないかと考えて いた。そこで Akiyoshi et al. [2016] では, 2009/2010 年の北極の冬に突然昇温が起こる前後の期間で, Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder (SMILES, Kikuchi et al. [2010]) 🗢 Microwave Limb Sounder (MLS)よって観測された オゾン分布データと比較を行いながら極渦内下部成 層圏のオゾン量収支の解析を行った。その結果,突 然昇温が起こっているときには,極渦内では,化学的 なオゾン破壊(オゾン量の減少を起こす),下降流に よるオゾン輸送(オゾン量の増加を起こす),水平流 による極渦外から内へのオゾン輸送(オゾン量の増 加を起こす)の3つのプロセスがほぼ同程度の大きさ になっていて、結果的に少しだけオゾン量が増加し ている状況となっていた。これは、先に述べた2次元 的モデルで説明されるオゾン変化とは少し異なって いる。一方極渦外では、下降流によるオゾン量増加 の影響が圧倒的に大きく、これによってオゾン量は急 激に増加していく。こちらは2次元的な説明と整合す る。中・高緯度帯では経度平均すると面積の大きい 極渦外の影響が主に反映されるので,2 次元的な説 明と整合的となる。

オゾン層の研究では、ナッジングを行わない化学 気候モデルによる研究も進めた。フロン・ハロン等の オゾン層破壊物質や CO₂, CH₄, N₂O 等の温室効果

ガスの濃度変化を与えて,過去のオゾン層や気候の 再現と将来予測も行った。国際的には 2003 年に Stratospheric Processes And their Role in Climate (SPARC)の下に Chemistry Climate Model Validation (CCMVal) というプロジェクトが発足し,3次元化学気 候モデルによる過去のオゾン層・気候の再現と将来 予測およびその機構解明のための推奨実験を提案 し,実験に必要なデータを提供し,世界の化学気候 モデルによる計算結果を解析し、とりまとめている。結 果は, WMO Scientific Assessment of ozone depletion 2006, 2010 や SPARC Report [2010] にまとめられて いる。国立環境研究所もこのプロジェクトに参加し計 算結果を提出した。国立環境研究所のモデルのアウ トプットを使ってオゾンホールが南極渦崩壊時期を遅 らせる可能性についての解析 [Akiyoshi et al., 2009] や,太陽 11 年周期変動がオゾン層に及ぼす影響に 関する研究を行った [Yamashita et al., 2010]。

この成層圏を中心とした国際共同研究で興味深い 結果がいくつか得られた。例えば、予測されるオゾン 層の回復時期は地球大気の特性を反映して緯度毎 に異なる様相を示したこと [Austin et al., 2010; Eyring et al., 2010a], 緯度帯によっては温室効果ガスの影 響をかなり受けること [Eyring et al., 2010b; Akiyoshi et al., 2010], 南極オゾンホールのように顕著にオゾン 量が変化すると下層大気へも何らかの影響を及ぼし 得ること [Son et al., 2008, 2010], 成層圏が対流圏の 気象に及ぼす影響の道筋が明確になってきたこと [Scaife et al., 2012], 宇宙や太陽からやってくる放射 線が大気微量成分や気候に及ぼす影響に関して、3 次元化学気候モデルを使った研究の可能性を示し たこと [Rozanov et al., 2012], 等々である。Chemistry Climate Model Initiative (CCMI)では、太陽プロトン による大気中でのイオン生成とそれによる HOx や NOx の生成効果を入れることが推奨されている [Eyring et al., 2013]。これらの知見は, 大気大循環 に多大な影響を及ぼす大気波動が陽に表せる3次 元モデルが発展したからこそ,ある程度の信頼性を 持ったものとして受け入れることができる。また、多く のモデルの結果を見ていると、中にはずいぶん他と 外れた結果があり、何処をどう間違うとこのような結果 になってしまうのかといった考察ができたのもよかった と思う。自分は間違わなくても他人の失敗から学ぶこ とができた。もちろん, 自分たちのモデルがハズレに なることもあって, ずいぶんと恥ずかしい思いもした。 CCMVal はその後 CCMVal-2, CCMI として受け継が れ、CCMI では対流圏化学のコミュニティも加わって、 WMO Scientific Assessment of Ozone Depletion 2018 を念頭に活動が続いている。太陽活動から中間圏, 成層圏,対流圏,地表,海洋までを広く取り扱うように なり,温暖化研究との連携も意図され,第6期結合モ デル相互比較プロジェクト(Coupled Model Intercomparison Project Phase 6: CMIP6)と連携した 推奨実験なども提唱されている。

CCMI の推奨実験には, 気象場をナッジングした 過去再現実験が新しく加わった [Eyring et al., 2013]。 将来予測などに使う化学気候モデルをそのまま使う ため, 化学気候モデルの検証という意味でも, 観測 データに対応した日々の大気微量成分分布変動に 関わる力学場・化学場の解析データの提供という意 味でも, その有用性は高いと思う。国立環境研究所 では早い時期からナッジング化学気候モデルを開発 し, 研究に利用できたと思っている。

6. おわりに

2次元モデルの計算によって、オゾンが化学反応、 輸送、大気放射のいずれにも関わっていることを実 感し、そこに興味を持ってオゾン層の研究を続けてき た。オゾンに限らず大気微量成分の多くは化学反応 と輸送の両方のプロセスを受けて濃度が決まってい るが、例えば、その微量成分が輸送される間にどこか で非常に強い化学反応を受けると、それまで遙々輸 送される間ずっと保持していた微量成分の濃度の情 報があっけなくそこで書き換えられてしまい消失して しまうことも、当初、移流・拡散しか頭になかった身と しては,新鮮で面白く感じられた。朝永振一郎著「物 理学とは何だろうか」の終わりの方に,地球物理学者 は実験ができないので、観測によってベールに包ま れた世界を少しずつめくっては全体像を描いている のが素晴らしい、といったようなくだりがあったと思う。 1次元や2次元モデルの時代にも実験はできたのだ が、3 次元的にはおそらくこういう構造になっていて、 それを、次元を落として焼き直すとこの結果になって いる、みたいなことは多くの人が考えていたと思う。3 次元モデルによる数値実験で現実の場との直接比 較が可能となった今,このベールを少しずつめくって は、ああでもない、こうでもない、と全体像を描く作業 は何に当たるのだろうかと時々考えてしまう。今後化 学気候モデルや化学輸送モデルはますます複雑に なっていくと思うが, 化学反応と輸送, それに大気放 射にも絡んでいるオゾンの多面的な性質が反映され た事実の観察と説明,そしてその外挿としての将来 予測を, 微力ながら, もうしばらくの間続けていきたい と思う。

国立環境研究所における化学気候モデルの開発 と研究には、国立環境研究所の中根英昭氏(現所 属:高知工科大学)と今村隆史氏に多大なる援助と 助言をいただいた。また、環境省環境研究総合推進 費(2-1303)、環境省地球環境研究総合推進費(A-071, A-1, A-10)や科研費(25281006, 19340138)等 の研究費の援助を受けた。モデルの開発と計算は国 立環境研究所のスーパーコンピュータを用いて行わ れた。ここに謝意を表したい。

- Akiyoshi, H. and M. Uryu (1992), Diagnostic model study of the seasonal variation of global ozone and the Antarctic ozone hole, J. Geophys. Res., 97, 20837-20853.
- Akiyoshi, H. et al. (2002), Low-N2O air masses after breakdown of the Arctic polar vortex in 1997 simulated by the CCSR/NIES nudging CTM, J. Meteorol. Soc. Jpn., 80, 451-463.
- Akiyoshi, H., S. Sugata, M. Yoshiki, and T. Sugita (2006), Ozone

decrease outside Arctic polar vortex due to polar vortex processing in 1997, *J. Geophys. Res.*, *111*, D22311, doi:10.1029/2005JD006450.

- Akiyoshi, H. et al. (2009), A CCM simulation of the breakup of the Antarctic polar vortex in the years 1980–2004 under the CCMVal scenarios, J. Geophys. Res., 114, D03103(1–28), doi:10.1029/2007JD009261.
- Akiyoshi, H., Y. Yamashita, K. Sakamoto, L. B. Zhou, and T. Imamura (2010), Recovery of stratospheric ozone in calculations by the Center for Climate System Research/National Institute for Environmental Studies chemistry–climate model under the CCMVal–REF2 scenario and a no–climate–change run, J. Geophys. Res., 115, D19301(1–22), doi:10.1029/2009JD012683.
- Akiyoshi, H., T. Nakamura, T. Miyasaka, M. Shiotani, and M. Suzuki (2016), A nudged chemistry-climate simulation of chemical constituent distribution at northern high-latitude stratosphere observed by SMILES and MLS during the 2009/2010 stratospheric sudden warming, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 1361-1380, doi:10.1002/2015JD023334.
- Anthes, R. A. (1974), Data assimilation and initialization of hurricane prediction models, J. Atmos. Sci., 31, 702-719.
- Austin, J. and N. Butchart (1992), A three-dimensional modeling study of the influence of planetary wave dynamics on polar ozone photochemistry, J. Geophys. Res., 97, 10165-10186.
- Austin, J. et al. (2010), Chemistry-climate model simulations of spring Antarctic ozone, J. Geophys. Res., 115, D00M11, doi:10.1029/2009JD013577.
- Brill, K. F., L. W. Uccellini, J. Manobianco, P. J. Kocin, and J.
 H. Homan (1991), The use of successive dynamic initialization by nudging to simulate cyclogenesis during GALE IOP 1, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 45, 15-40.
- Chipperfield. M. P., D. Cariolle, P. Simon, R. Ramaroson, and D. J. Lary (1993), A three-dimensional modeling study of trace species in the Arctic lower stratosphere during winter 1989-1990, J. Geophys. Res., 98, 7199-7218.
- Chipperfield, M. P., A. M. Lee, and J. A. Pyle (1996), Model

calculations of ozone depletion in the Arctic polar vortex for 1991/92 to 1994/95, *Geophys. Res. Lett.*, <u>23</u>, 559-562.

- Chubachi, S. (1984), Preliminary results of ozone observation at Syowa station from February 1982 to January 1983, *Mem. Natl. Inst. Polar Res.*, *34*, 13-19.
- Dütsch, H. U. (1971), Photochemistry of atmospheric ozone, Advances in Geophysics, 15, 219-322.
- Ehhalt, D. H., E. P. Röth, U. Schmidt (1983), On the temporal variance of stratospheric trace gas concentrations, *J. Atmos. Chem.*, *1*, 27-51.
- Eyring, V. et al. (2010a), Multi-model assessment of stratospheric ozone return dates and ozone recovery in CCMVal-2 models, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 9451-9472.
- Eyring, V. et al. (2010b), Sensitivity of 21st century stratospheric ozone to greenhouse gas scenarios, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L16807, doi:10.1029/2010GL044443.
- Eyring, V. et al. (2013), Oerview of IGAC/SPARC chemistryclimate model initiative (CCMI) community simulations in support of upcoming ozone and climate assessments (2013), *SPARC newsletter*, 40, 48-66.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner, and J. D. Shanklin (1985), Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClOx/NOx interaction, *Nature*, 315, 207-210.
- Fleming, E. L., C. H. Jackman, R. S. Stolarski, and A. R. Douglass (2011), A model study of the impact of source gas changes on the stratosphere for 1850-2100, *Atmos. Chem. Phys.*, *11*, 8515-8541.
- Garcia, R. R. and S. Solomon (1983), A numerical model of the zonally averaged dynamical and chemical structure of the middle atmosphere, J. Geophys. Res., 88, 1379-1400.
- Hess, G. P. and J. R. Holton (1985), The origin of temporal variance in long-lived trace constituents in the summer stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 42, 1455-1464.
- Hess, P., Variance in trace constituents following the final stratospheric warming, J. Geophys. Res., 95, 13765-13779.
- Hess, P. G., Mixing processes following the final stratospheric warming, J. Atmos. Sci, 48, 1625-1642.

- Hoke, J. E. and R. A. Anthes (1976), The initialization of numerical models by a dynamic-initialization technique, Mon. Wea. Rev., 104, 1551-1556.
- Jeuken, A. B., P. C. Siegmund, L C. Heijboer, J. Feichter, and L Bengtsson (1996), On the potential of assimilating meteorological analyses in a global climate model for the purpose of model validation, *J. Geophys. Res.*, 101, 16939-16950.
- Kikuchi, K. et al. (2010), Overview and early results of the Superconducting Submillimeter–Wave Limb–Emission Sounder (SMILES), J. Geophys. Res., 115, D23306, doi:10.1029/2010JD014379.
- Labitzke, K. (1972), Temperature changes in the mesosphere and stratosphere connected with circulation changes in winter, *J. Atmos. Sci.*, 29, 756–766.
- Labitzke, K. (1981), Stratospheric–mesospheric midwinter disturbances: A summary of observed characteristics, J. Geophys. Res., 86(C10), 9665–9678.
- Lefevre, F., G. P. Brasseur, I. Folkins, A. K. Smith, and P. Simon (1994), Chemistry of 1991-1992 stratospheric winter: Three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.*, 99, 8183-8195.
- Matsuno, T. and K. Nakamura (1979), The Eulerian- and Lagrangian-mean meridional circulations in the stratosphere at the time of a sudden warming, *J. Atmos. Sci.*, 36, 640-654.
- Nagashima, T., M. Takahashi, M, Takigawa, and H. Akiyoshi (2002), Future development of the ozone layer calculated by a general circulation model with fully interactive chemistry, *Geophys. Res. Lett.*, 29, doi:10.1029/2001GL014026.
- Ogawa, T. and T. Shimazaki (1975), Diurnal variations of odd nitrogen and ionic densities in the mesosphere and lower thermosphere: Simultaneous solution of photochemicaldiffusive equations, *J. Geophys. Res.*, *80*, 3945-3960.
- Plumb, R. A. and J. D. Mahlman (1987), the zonally averaged transport characteristics of the GFDL general

circulation/transport model, J. Atmos. Sci., 44, 298-327.

- Pyle, J. A. and C. F. Rogers (1980), A modified deabatic circulation model for stratospheric tracer transport, *Nature*, 287, 711-714.
- Rose, K. and G. Brasseur (1989), A three-dimensional model of chemically active trace species in the middle atmosphere during disturbed winter conditions, J. Geophys. Res., 94, 16387-16403.
- Rozanov, E., M. Calisto, T. Egorova, T. Peter, and W. Schmutz (2012), Influence of the precipitating energetic particles on atmospheric chemistry and climate, *Surv. Geophys.*, 33, 483-501.
- Scaife, A. A. et al. (2012), Climate change projections and stratosphere-troposphere interaction, *Clim. Dyn.*, 38, 2089-2097.
- Shimazaki, T. and T. Ogawa (1974), A theoretical model of minor constituent distributions in the stratosphere including diurnal variations, J. Geophys. Res., 79, 3411-3423.
- Son, S.-W. (2008), The impact of stratospheric ozone recovery on the southern hemisphere westerly jet, *Science*, *320*, 1486-1489.
- Son ,S.-W. (2010), Impact of stratospheric ozone on southern hemisphere circulation change: A multimodel assessment, J. Geophys. Res., 115, D00M07, doi:10.1029/2010JD014271.
- SPARC CCMVal (2010), SPARC Report on the Evaluation of Chemistry–Climate Models, V. Eyring, T. G. Shepherd, and D. W. Waugh (Eds.), SPARC Report No.5, WCRP–132, WMO/TD–No.1526.
- Sugata, S. (2000), Time threshold diagnostics: A mixed Lagrangian-Eulian method for describing global tracer transport, J. Metorol. Soc. Jpn., 78, 259-277.
- WMO (2007) Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006, Global Ozone Research and Monitoring Project—Report No. 50, 572 pp., Geneva, Switzerland.
- WMO (2011) Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2010,Global Ozone Research and Monitoring Project—Report

No. 52, 516 pp., Geneva, Switzerland.

Yamashita, Y. et al. (2010), Ozone and temperature response of a chemistry climate model to the solar cycle and sea surface temperature, J. Geophys. Res., 115, D00M05, doi:10.1029/2009JD013436.

> 原稿受領日: 2016 年 11 月 22 日 掲載受理日: 2016 年 12 月 2 日

著者所属:

1. 国立環境研究所 地球環境研究センター

*責任著者:

Hideharu Akiyoshi <hakiyosi@nies.go.jp>

植生起源 VOC の広域推定モデル

Large-scale Modeling of Phytogenic Volatile Organic Compounds

伊藤昭彦 1,2*

陸域植生は多様な揮発性有機物質(Volatile Organic Compound: VOC)を大気に放出している。植生 起源 VOC は大気-陸域間の相互作用によって気候変動にも影響を与えると考えられ、その総量・内 訳と時空間分布を知ることは、大気化学だけでなく、生態学や物質循環の観点からも重要な課題であ る。植生起源の VOC 発生量を広域的に観測することは簡単ではなく、将来予測の必要性もあり、 VOC 発生推定モデルが開発利用されている。本稿では、最初に大気化学、生態学、生理学の各側 面から植生起源 VOC の意義・機能、発生に関与する環境要因を概説する。次に、広域スケールの推 定モデルについて、開発の経過と代表的なモデルでの推定方法の概要を述べる。これまでの推定例 を挙げ、筆者の全球スケール生態系モデルに植生起源 VOC 発生ルーチンを組み込んだ計算例も示 す。最後に問題点と今後の課題について議論を行う。

1. はじめに

植物などが放出する揮発性有機物質(VOC, 生物 起源全般は BVOC と表す)は、大気中での反応性に 富み、大気の組成・質・分布に影響を与えている [Atkinson and Arey, 2003; Monks et al., 2009; 谷・望 月, 2016]。また、大気中の温室効果ガスやエアロゾ ルの変動を介して、気候変動にも影響を与えることか ら、温暖化問題の観点からも注目を集めている [Kanakidou et al., 2005; Peñuelas and Staudt, 2009]。

植生起源 VOC は二次代謝の産物であるが,植物 学研究においては光合成や呼吸,成長や繁殖とい った植物の生死に関わるテーマと比べると注目が集 まりにくい分野であった。近年,大気科学分野で注目 度が高まったことが,植物科学の VOC 研究を促して きた面があるように感じられる。もちろん,分子生物学 的手法や計測機器の進化により,メタボローム解析な ど代謝研究が進んでいる面はある[*Iijima*, 2014]。し かし,こと植生起源の VOC 研究に関しては,大気科 学からの触発が重要だったと思われる。

大気科学では、微気象分野でも数百 m² 程度から、

気候分野では全球までを扱うため, VOC 放出におい ても広域の情報が必要となる。一方, 地球環境問題 への関心を背景に, 植生や生態系扱う分野でも, 全 球スケールの研究領域が確立されつつある。そこで は, 植生の機能や動態をモデル化し, 全球スケール のシミュレーションを行っている。これまでは量的に大 きい水や炭素(特に CO₂)の循環に比重が置かれて いたが, 近年では VOC を扱うスキームを組み込んだ モデルも増えている。

本稿では,植生起源 VOC のうち大気化学的に重 要な物質を中心に,発生に関する要因(図1参照)と, それを広域推定するモデル研究について概括する。 そして大気-陸域間の相互作用の観点から今後の課 題について議論を行う。

2. 植生起源 VOC の意義

植物が大気に放出する VOC は数千種類に及ぶと され,多くは微量とはいえその総量は物質収支の面 でも無視できない。植物は,葉面の気孔を介したガス 交換で光合成によりCO2を固定するが,代償として相



図1 植生起源 VOC 放出に関与する要因と大気との相互作用の概要。

当の水を蒸散で消費している。獲得した炭素を VOC として放出し、また生合成に相当のエネルギーを費 やすのには、何らかの適応的意義があるはずである。 現在までにいくつかの説が提唱されている。

- 1. 高温耐性:水を蒸発させる代わりに VOC を揮発さ せることで植物体を冷却し,高温障害を防ぐ。乾燥 地では脱水は死に直結し,直射光に曝されて高温 になりがちのため VOC を放出することで高温耐 性・生存率を高める[Sharkey et al., 2008]。
- 2. 誘引または防御物質:香りを持つ物質を放出する ことで植物に利益(花粉媒介など)をもたらす動物 を誘引する。逆に病原体や害虫・動物が嫌う化学 物質を放出することで,疾病や食害から植物体を 守る[Yuan et al., 2009; Pierik et al., 2014]。
- 3. オキシダント耐性: VOC (イソプレンなど)を放出す ることで、オゾンや活性酸素種への耐性を高めて いる可能性がある[Affek and Yakir, 2002]。
- 4. コミュニケーション:植物間の情報伝達に VOC を 利用している可能性がある。害虫などの被害を受 けた個体が特定の VOC を放出し, 周囲の個体に 警報を発する場合などがあるといわれる[Heil and Karban, 2009; Shiojiri et al., 2012]。
- 5. 楽観主義者(opportunist)仮説:植物自身に必要

だが貯蔵できないイソプレノイドを確保するため, わざと多めに前駆物質を合成しておき,余分を VOC として放出しているとする仮説[Owen and Peñuelas, 2005]。

一般的な傾向として植物に強いストレスがかかるほ ど VOC 発生量が増えるが、上記の仮説で全て説明 できるわけではない。むしろ外的要因よりも植物の系 統(属や種)の影響が明瞭な場合もある。

生態系の物質収支・循環の上でも、VOCは一定の 重要性を持つと考えられる。植物が光合成で獲得し た炭素のうち、どの程度の割合を VOC に投資してい るかは正確な値は得られていない。後述するように、 陸域植生からの年間 VOC 放出は合計 1 Pg C (10^{15} g 炭素換算)の規模と考えられている。これは、 全陸域の年間正味光合成生産(純一次生産、約 56 Pg C yr⁻¹)の約 1.8%に相当する[*Harrison et al.*, 2013]。さらに、陸域の年間正味炭素吸収量($3.0 \pm$ 0.8 Pg C yr⁻¹)に対しては約 30%に相当する [*Kesselmeier et al.*, 2002;*Le Quéré et al.*, 2015]。野 外で植生の VOC 発生量を測定し、CO₂ 固定量と比 較した研究でも VOC の重要性が示されている。例え ば *Bouvier-Brown et al.* [2012]がポンデローサ松林で 行った計測によると、総光合成のうち約 0.6%、正味 CO2 固定量のうち約 4%が VOC として大気に放出さ れていた。この割合は植生タイプや環境条件によっ て大きく変動すると考えられるが, 観測例はまだ十分 とは言えないのが現状である。

3. 広域推定モデル

3.1. 環境応答の植物生理

植生起源 VOC の種類は多く、その生合成過程も 複雑であり全容が解明されている訳ではない。大別 するとセスキテルペン類は細胞質で行われるメバロン 酸経路に由来し、イソプレン類・モノテルペン類は葉 緑体で行われるメチルエリストール (MEP) 経路に由 来する。メタノールやホルムアルデヒドなどの分子量 が小さいものは、別の経路でも合成されている可能 性が指摘されている[Loreto and Schnitzler, 2010]。本 稿では、生理的部分は広域モデルに関連する部分と 近年注目される知見に絞って解説するので、詳細に ついては Niinemets and Monson [2013]の書籍や Laothawornkitkul et al. [2009], Harrison et al. [2013] などの総説を参照されたい。

VOC 放出は温度に応答し,高温条件で放出量は 増加する。多くの生化学反応,例えば呼吸による CO₂ 放出と同様に温度変化に対する応答は指数関 数的であることが知られている。一方,その他の環境 条件に対する応答は複雑で,モデル化を困難にする 一因となっている。生合成が葉緑体内で行われるイソ プレン類の放出は光条件に応答するが,モノテルペ ン類の放出は一般に光への応答が比較的小さい [*Tingley et al.*, 1980; *Yokouchi and Ambe*, 1984]。また, 土壌の乾燥といった地下部のストレスも, VOC 放出を 増加させる因子になる [Loreto and Schmitzler, 2010]。

近年,特に地球温暖化との関連から注目される環 境応答として,大気 CO2濃度上昇に伴うイソプレン類 放出の抑制がある[例えば Possell and Hewit, 2011]。 そのメカニズムは基質制限やイソプレン合成酵素の 活性変化にあるとされる[Monson et al., 2007]。さらに, 温度上昇条件下では、この CO₂による抑制効果は軽 減されることを示す実験結果もある[*Potosnak et al.*, 2014]。これは気候変動などの長期予測で重要な役 割を果たすと考えられ、実際に一部の植生モデル [*Arneth et al.*, 2007 など]では CO₂応答の組み込みが 行われている。

別の要因として, 生物が固有にもつ概日リズムが 植生からのイソプレン放出(そして大気組成)の変動 に影響を与えている可能性も示唆されている[Hewitt et al., 2011]が, それに対する反論[Keenan and Niinemets, 2012]もあるなど結論は出ていない。

直接の植生起源とは区別されるが、地下部からの 放出(吸収の場合もある)も近年注目されているテー マである。植生起源 VOC は主に緑葉からの放出が 扱われてきたが、土壌表面からの放出、例えば枯死 物(リター)や根系からの放出についても実測例が増 えている[例えば Greenberg et al., 2012; Peñuelas et al., 2014; 深山ら、2016]。また、火災(バイオマス燃焼) に伴って直接的にあるいは煙などの影響で間接的に VOC が放出されることも知られており[Ciccioli et al., 2014]、大気化学との関係でも注目される。

3.2. 代表的モデルの紹介

植生起源 VOC のモデル開発は,大気化学の分野 で先行して行われてきた。大気化学モデルの境界条 件を与える VOC 放出モデルとして 1990 年代から米 国大気研究センター(NCAR:当時)の Alex Guenther らにより観測ベースの経験的モデルが開発されてき た[Guether et al., 1991]。それを発展させパッケージ 化したものは MEGAN モデルと呼ばれている [Guether et al., 2012]。これは多くの大気化学研究に 利用され, NCAR で開発されている CLM などの植生 モデルに組み込まれた例も多く,代表的な VOC モデ ルとなっている。全球での放出量推定[例えば Lathière et al., 2006; Sindelarova et al., 2014]だけで なく, ヨーロッパ[Oderbolz et al., 2013], アジア [Stavrakou et al., 2014],日本の近畿地方[Bao et al., 2010]など様々なスケールでの適用例がある。他のモ デルとしては, Pierce et al. [1998]の BEIS モデルなど があるが,環境応答については MEGAN の評価法を 踏襲している。また欧州で開発されている植生モデ ルの1つである LPJ-GUESS には, Arneth et al. [2007]による生理プロセスを考慮した VOC 放出モデ ルが導入されている[Navarro et al., 2014]。

MEGAN に代表される広域推定モデルでは、できるだけ少ない入力データと簡便な計算で結果を得る方針をとっている。つまり放出フラックスFを:

$$F = \varepsilon \cdot \gamma_{\rm T} \cdot \gamma_{\rm L} \cdot \gamma_{\rm age} \cdot \dots \tag{1}$$

の基本式に基づいて計算する。ここでε はエミッショ ンファクターと呼ばれる基準条件下での単位時間・面 積あたりの放出量であり、VOC 種類, 植物のタイプな どで決定されるパラメータである。MEGAN2.1 では, エミッションファクターを与えることで, イソプレノイドだ けでなく, メタノール, アセトン, ストレスに伴って放出 されるエチレンなど100種類以上のVOC放出が推定 可能である。YT, YL, Yage は温度, 光, 葉の齢の影響を 表す係数であり、モデルによって他の影響係数を追 加する場合もある。MEGAN2.1 においては光,温度 (イソテルペンとモノテルペン類で異なる), 葉齢, 土 壤水分, CO2 の影響係数と葉面積指数(LAI, 単位 土地面積あたりの葉面積)が考慮されている。イソプ レン放出は光条件への感度が高いが、モノテルペン 類の放出は光依存性が弱いなどYLには VOC の種類 で異なる値が設定される。それぞれの係数は経験的 関数で表され,光に関しては飽和型の曲線,温度は 指数関数, 葉齢は成熟した葉を基準にして未成熟な ものと老化したもので放出量を低下する効果を加え ている(各関数については前出の論文などを参照さ れたい)。

一方,植物科学の分野でも植生起源 VOC モデル の開発が行われてきた。MEGAN などと対照的に,

		VOC 放出量	
出典	推定手法、データ等	$(Tg C yr^{-1})$	VOC 種類(期間)
Guenther et al. [2012]	MEGAN2.1	535	Isoprene (2000)
	MEGAN2.1	157	Monoterpene (2000)
	MEGAN2.1	1007	Total VOC (2000)
Sindelartova et al. [2014]	MEGAN-MACC	594	Isoprene (1980-2010)
	MEGAN-MACC	95	Monoterpene (1980-2010)
	MEGAN-MACC	760	BVOC (1980-2010)
Potter et al. [2001]	NASA-CASA	559	Isoprene (present)
Tao and Jain [2005]	ISAM+Guenther et al. (1995)	601	Isoprene (2000)
	ISAM+Guenther et al. (1995)	103	Monoterpene (2000)
Müller et al. [2008]	MEGAN+ECMWF	410	Isoprene (1995-2006)
Arneth et al. [2011]	LPJ-GUESS	463	Isoprene (1981-2002)
Tanaka et al. [2012]	MIROC5+MEGAN	540	Isoprene (2000s)
Navarro et al. [2014]	LPJ-GUESS	323	Isoprene (1970-1990)
Messina et al. [2016]	ORCHIDEE, MEGAN	465	Isoprene (2000-2009)
本稿 [伊藤,未発表]	VISIT+Guenther et al. (1995)	493	Isoprene (1990-2013)
Shim et al. [2005]	衛星:GOME	566	Isoprene (1996-1997)
Stavrakou et al. [2009]	衛星:SCIAMACHY+GFED2	442	Isoprene (2003-2006)

表1 全陸域植生の VOC 放出量に関する推定例.

植物内の生理的過程から出発し,ボトムアップ的に 広域推定につなげるアプローチをとっている。例えば Martin et al. [2000] & Zimmer et al. [2000] (SIM-BIM モデル)は、比較的シンプルな生化学反応ベースの イソプレン放出モデルを提示している。Niinemets and Reichstein [2002]は, 植物内の基質プールをベース としたモノテルペン放出モデルを提示しており,応答 が速いプールと遅いプールを分けることで放出量変 動の再現性を高めている。イソプレン合成は葉緑体 で行われることから, 光合成モデルにイソプレンの合 成過程を組み込む試みも行われてきた[Niinemets et al., 1999]. Morfopoulos et al. [2014] & Grote et al. [2014]は, 葉緑体内の電子伝達や酵素活性を考慮し た詳細なモデルを提示している。これらのモデルの 広域化にはまだ課題が多いが,将来の大気 CO2 濃 度上昇や温度上昇に対する植生起源 VOC 放出量 変化の推定精度向上に寄与することが期待される。

3.3. 推定例

全球など広域推定の多くは MEGAN もしくはその 系列モデルによって行われている。考慮する環境要 因,その係数関数の設定,使用する気象データ,土 地利用,植生条件(葉齢や葉面積など)によって VOC 放出の推定結果は異なる。表 1 に既存の代表 的な推定例を示しており,いくつかの代表的な植生 モデルに VOC 放出スキームを組み込んだ結果も含 まれている。また,比較のために衛星観測に基づく推 定結果も示した。最も量的に大きい植生起源 VOC は イソプレンであり,その年間総放出量は 500 Tg yr-1 前後とされる。ここで注目されるのは, 推定間の差が それほど大きくないことである。全球スケールの推定 では,植物の光合成のように量的に大きい主要なフ ローですら±50%程度のばらつきが見られているのと 対照的である。Arneth et al. [2008]は, このようにイソ プレン放出量の推定結果の散らばりが小さいのは, 同様な推定モデル(MEGAN)を採用していることに よる見かけ上の収束であると述べている。実際に,基 本構造が異なる LPJ-GUESS を用いた推定[Navarro et al., 2014]では、イソプレン放出量は大幅に低い。 また、次いで放出量が大きいモノテルペン放出量に 関しては、推定法やスケールアップ法の差による推 定結果の散らばりが明らかに大きい(95~157 Tg yr⁻¹) ことも指摘している。イソプレン・モノテルペン以外で は、メタノール 100 Tg yr⁻¹、アセトン 44 Tg yr⁻¹なども 量的寄与が大きいとされる[Guenther et al., 2012]。

図2に示したのは、筆者が開発している陸域生態 系モデル[VISIT: Ito and Inatomi, 2012]に Guenther et al. [1995]に基づく VOC 放出スキームを組み込ん で推定したイソプレン放出分布である。LAI が高く温 度が高い熱帯多雨林で放出量が大きいことが明らか である。過去または将来の VOC 放出量を推定する 場合,植生構造の変化を考慮することが必要になる が,その場合に植生モデルとの結合が効果を発揮す ることになる。植生モデルは LAI や葉齢の変化を推 定可能なため,気候変動や土地利用変化が植生構 造に与える影響を考慮することが可能である。例えば Kaplan et al. [2006]は最終氷期以降(過去 21000 年 間)の気候変動と土地利用を設定し,植生モデル BIOME4-TG で植生起源 VOC 放出量の変化を推定 している(約2倍に増加しCH4濃度上昇に寄与したと される)。また Navarro et al. [2014]は, 植生モデル LPJ-GUESSとMEGANを用い,過去1000年間の気



図 2 陸域生態系モデル(VISIT)に VOC 放出スキー ム[*Guenther et al.*, 1995]を組み込んで推定された植 生起源イソプレン放出分布. 2000 年の結果を示す [*伊藤*, 未発表].

象条件と土地利用変化を入力することでイソプレン, モノテルペン,セスキテルペンの放出量変化を推定 している(いずれも過去から現在までの放出量減少を 推定)。

4. 今後の課題:結語に代えて

植生起源 VOC 放出量の推定には、大きな不確実 性が残されているのが現状であろう。その原因は,メ カニズム解明の不十分さ,現地観測データの不足, 広域スケールアップに伴う誤差など,様々なものが考 えられる。評価に用いられるエミッションファクターは、 広域の平均的な放出強度を代表することが期待され るが,その値を正確に決めることは容易ではない。実 測データでは、同じ植物機能タイプ(例えば常緑針 葉樹や落葉広葉樹)だけでなく種が違うとエミッション ファクターが大きく異なることが示されている。例えば 植物のうち、イソプレンを放出するのは全体の約29% と推定されている[Fineschi et al., 2013]。私たちに身 近な種では, 雑草のクズ[Wiberley et al., 2005]や樹 木のコナラ[Tani and Kawawata, 2008; 谷, 2010]は, 多くのイソプレンを放出する種であることが知られて いる。また針葉樹では新葉において成熟した葉の数 十から数百倍の VOC 放出が観測されており [Aalto et al., 2014], 個体の中でも不均質性がある。このような 強い放出源が存在するかどうかで領域の総 VOC 放 出は大きく変わるが,近年は無人機(ドローン)による 測定と画像解析の技術が進んだとはいえ, 広域で植 物種や葉齢の分布を決めるのは未だ困難である。欧 州や日本のように植生調査やインベントリ(例えば JATOP-BVOC)が比較的整備されている地域に限れ ば、種の情報に基づいて VOC 放出量を推定した例 [Keenan et al., 2009; 松永ら, 2012]がある。

将来の温暖化の進行については,2015 年に国際 合意であるパリ協定が採択されたとはいえ,不確実 性が大きいのが現状である。植生起源 VOC 放出量 が増加するかどうかの予測も,昇温による促進,高 CO₂ による抑制,そして乾燥やオゾンなどストレス要

因の影響を同時に考慮する必要があるため,非常に 不確実性が大きい[Pacifico et al., 2009]。野外での 加温実験によると,温暖化の進行が顕著な北極域で は、ツンドラ植生からのイソプレン放出は数倍に増加 する可能性が示されている[Lindwall et al., 2016]。 Sharkey and Monson [2014]は, 現在までの知見を総 括し,将来的に植生起源のイソプレン放出量は増加 する可能性が高いと述べている。植生モデルによる 予測例は多くないが, Wiedinmyer et al. [2006]は植 生起源イソプレン放出量が現在の 522 Tg yr-1 から将 来(2070-2099年)は889 Tg yr⁻¹まで増加するという モデル計算結果を得ている。Keenan et al. [2009]は 英国ハドレーセンターの気候予測に基づき、欧州の 植生起源 VOC 放出が漸増する推定結果を得ている (ただしその程度は放出モデルによって異なる)。火 災などの影響を加味すると、VOC 放出量の増加幅は さらに大きくなる可能性もある。

気候変動を抑制する対策実施によって VOC 放出 量が変化する場合もある[Rosenkranz et al., 2015]。現 在,熱帯ではアブラヤシの栽培が増えており,将来 的にはバイオ燃料用作物の栽培面積が拡大すると 予想される。このような作物は,化石燃料を代替する 反面,栽培中に VOC を放出する[例えば Misztal et al., 2011]ことで対流圏オゾンを含む大気組成に影響 を与える可能性がある。例えば Warwick et al. [2013] は東南アジア(ボルネオ)におけるアブラヤシ栽培, また Ashworth et al. [2013]は欧州におけるバイオ燃 料栽培について,それらの面積拡大が大気組成(例 えばオゾン濃度)に与える影響を,大気化学輸送モ デルと土地利用シナリオを用いたシミュレーションに よって評価している。

植生起源 VOC 放出量を広域評価するモデルの信 頼性を向上させるためには,更なる研究が必要であ る。第1に, VOC 放出の生化学・生理学をより詳細に 解明し,環境応答メカニズムを理解する必要がある。 VOC には,刺激に伴う放出や,植物表面での吸収 [Tani and Hewitt, 2009; Niinemets et al., 2014]など未

解明のメカニズムもあり, 基礎的な理解が不十分であ る。解明されたメカニズムを、広域評価モデルに反映 させることで予測性を高めていく。第2に,野外での VOC フラックス観測データを蓄積し、タイプや環境条 件の異なる植生の VOC 放出に関する知見を統合化 していく。1990年代より発展した微気象学的フラック ス観測法は,野外データの拡充に寄与している [Baldocchi, 2014]。VOC は大気中濃度が低く,分析 にガスクロマトグラフィ等を用いるため時間分解能や 長期観測に制約が加わるが, 簡易渦集積(REA)法 による観測が試みられている[例えば Mochizuki et al., 2014; Geron et al., 2016]。温室効果ガスフラックスの 連続観測に不可欠となっている渦相関法についても, 質量分析器を用い測定上の工夫を行って VOC 測定 に適用した例がある[Karl et al., 2002]。観測データは, メタ分析・データ同化によるパラメータ推定やモデル 改良に有用なだけでなく、モデル推定結果の検証に も利用される。第3に,関連する研究領域の学際的 連携を進め, VOC 交換を介した大気-陸域相互作用 [例えば Kulmala et al., 2004; Arneth et al., 2010]を解 明する。植物生理・生態から気候まで,日内から数十 年(以上)の期間までの時空間スケールにわたる VOC の役割を明らかにする。大気化学モデルへの 植生起源 VOC スキーム導入例はあるが[例えば Wu et al., 2012], 気候変動など長期予測を行う地球シス テムモデルへの組み込み[例えば Unger et al., 2013] は今後の課題に挙げられる。

略語一覧

BEIS: Biogenic Emissions Inventory System ECMWF: European Centre for Medium-range Weather Forecasts (欧州中期予報センター) JATOP-BVOC: Japan Auto-Oil Program - Biogenic Volatile Organic Compound

- LAI: Leaf Area Index (葉面積指数)
- LPJ-GUESS: Lund-Potsdam-Jena General Ecosystem Simulator

- MEGAN: Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature
- MEGAN-MACC: MEGAN(上記参照) Monitoring Atmospheric Composition and Climate project
- MIROC: Model of Interdisciplinary Research on Climate
- NASA-CASA: National Aeronautics and Space Administration - Carnegie-Ames-Stanford Approach
- REA: Relaxed Eddy Accumulation method (簡易渦 集積法)
- VISIT: Vegetation Integrative SImulator for Trace gases

5. 参考文献

- Aalto, J., et al. (2014), New foliage growth is a significant, unaccounted source for volatiles in boreal evergreen forests, *Biogeosci.*, 11, 1331–1344, doi:10.5194/bg-11-1331-2014.
- Affek, H. P., and D. Yakir (2002), Protection by isoprene against singlet oxygen in leaves, *Plant Physiol.*, 129, 269– 277, doi:10.1104/pp.010909.
- Arneth, A., et al. (2007), Process-based estimates of terrestrial ecosystem isoprene emissions: incorporating the effects of a direct CO₂-isoprene interaction, *Atm. Chem. Phys.*, 7, 31–53.
- Arneth, A., R. K. Monson, G. Schurgers, Ü. Niinemets, and P. I. Palmer (2008), Why are estimates of global terrestrial isoprene emissions so similar (and why is this not so for monoternes)?, *Atm. Chem. Phys.*, 8, 4605–4620.
- Arneth, A., et al. (2010), Terrestrial biogeochemical feedbacks in the climate system, *Nature Geosci.*, 3, 525–532, doi: 10.1038/ngeo905.
- Arneth, A., G. Schurgers, J. Lathiere, T. Duhl, D. J. Beerling, C. N. Hewitt, M. Martin, and A. Guenther (2011), Global terrestrial isoprene emission models: sensitivity to variability in climate and vegetation, *Atm. Chem. Phys.*, 11,

8037-8052, doi:10.5194/acp-11-8037-2011.

- Ashworth, K., O. Wild, and C. N. Hewitt (2013), Impacts of biofuel cultivation on mortality and crop yields, *Nat. Clim. Change*, 3, 492–496, doi:10.1038/NCLIMATE1788.
- Baldocchi, D. (2014), Measuring fluxes of trace gases and energy between ecosystems and the atmosphere – the state and future of the eddy covariance method, *Global Change Biol.*, 20, 3600–3609, doi:10.1111/gcb.12649.
- Bao, H., K. L. Shrestha, A. Kondo, A. Kaga, and Y. Inoue (2010), Modeling the influence of biogenic volatile organic compound emissions on ozone concentration during summer season in the Kinki region of Japan, *Atm. Env.*, 44, 421–431, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.10.021.
- Bouvier-Brown, N. C., et al. (2012), Contributions of biogenic volatile organic compounds to net ecosystem carbon flux in a ponderosa pine plantation, *Atm. Env.*, 60, 527–533, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.06.070.
- Ciccioli, P., M. Centritto, and F. Loreto (2014), Biogenic volatile organic compound emissions from vegetation fires, *Plant Cell Env.*, 37, 1810–1825, doi:10.1111/pce.12336.
- Fineschi, S., F. Loreto, M. Staudt, and J. Peñuelas (2013), Diversification of volatile isoprenoid emissions from trees: Evolutionary and ecological perspectives, in *Biology, Controls and Models of Tree Volatile Organic Compound Emissions*, edited by Ü. Niinemets and R. K. Monson, pp. 1–20, Springer, doi:10.1007/978-94-007-6606-8 1.
- Geron, C. D., R. W. Daly, R. R. Arnts, A. B. Guenther, and F. L. Mowry (2016), Canopy level emissions of 2-methyl-3-buten-2-ol, monoterpenes, and sesquiterpenes from an experimental *Pinus taeda* plantation, *Sci. Total Env.*, 565, 730–741, doi:10.1016/j.scitotenv.2016.05.034.
- Greenberg, J. P., et al. (2012), Contribution of leaf and needle litter to whole ecosystem BVOC fluxes, Atm. Env., 59, 302–311, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.04.038.
- Grote, R., et al. (2014), A fully integrated isoprenoid emissions model coupling emissions to photosynthetic characteristics, *Plant Cell Env.*, 37, 1965–1980, doi:10.1111/pce.12326.

- Guenther, A. B., R. K. Monson, and R. Fall (1991), Isoprene and monoterpene emission rate variability: observations with *Eucalyptus* and emission rate algorithm development, *J. Geophys. Res.*, 96, 10799–10808.
- Guenther, A., et al. (1995), A global model of natural volatile organic compound emissions, J. Geophys. Res., 100, 8873–8892.
- Guenther, A. B., et al. (2012), The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions, *Geosci. Model Dev.*, 5, 1471–1492, doi:10.5194/gmd-5-1471-2012.
- Harrison, S. P., et al. (2013), Volatile isoprenoid emissions from plastid to planet, *New Phytol.*, 197, 49–57, doi:10.1111/nph.12021.
- Heil, M., and R. Karban (2009), Explaining evolution of plant communication by airborne signals, *Trends Ecol. Evol.*, 25, 137–144, doi:10.1016/j.tree.2009.09.010.
- Hewitt, C. N., et al. (2011), Ground-level ozone influenced by circadian control of isoprene emissions, *Nat. Geosci.*, *4*, 671–674, doi:10.1038/NGEO1271.
- Iijima, Y. (2014), Recent advances in the application of metabolomics to studies of biogenic volatile organic compounds (BVOC) produced by plants, *Metabolites*, 4, 699–721, doi:10.3390/metabo4030699.
- Ito, A., and M. Inatomi (2012), Water-use efficiency of the terrestrial biosphere: a model analysis on interactions between the global carbon and water cycles, *J. Hydromet.*, *13*, 681–694, doi:10.1175/JHM-D-10-05034.1.
- Kanakidou, M., et al. (2005), Organic aerosol and global climate modelling: a review, Atm. Chem. Phys., 5, 1053– 1123.
- Kaplan, J. O., G. Folberth, and D. A. Hauglustaine (2006), Role of methane and biogenic volatile organic compound sources in late glacial and Holocene fluctuations of atmospheric methane concentrations, *Global Biogeochem. Cycles*, 20, GB2016, doi:10.1029/2005GB002560.

- Karl, T. G., C. Spirig, J. Rinne, C. Stroud, P. Prevost, J. Greenberg, R. Fall, and A. Guenther (2002), Virtual disjunct eddy covariance measurements of organic compound fluxes from a subalpine forest using proton transfer reaction mass spectrometry, *Atm. Chem. Phys.*, 2, 279–291.
- Keenan, T. F., and Ü. Niinemets (2012), Circadian control of global isoprene emissions, *Nat. Geosci.*, 5, 435.
- Keenan, T., Ü. Niinemets, S. Sabate, C. Gracia, and J. Peñuelas (2009), Process based inventory of isoprenoid emissions from European forests: model comparisons, current knowledge and uncertainties, *Atm. Chem. Phys.*, 9, 4053– 4076.
- Kesselmeier, J., et al. (2002), Volatile organic compound emissions in relation to plant carbon fixation and the terrestrial carbon budget, *Global Biogeochem. Cycles*, 16, 1126. doi:10.1029/2001GB001813.
- Kulmala, M., et al. (2004), A new feedback mechanism linking forests, aerosols, and climate, *Atm. Chem. Phys.*, *4*, 557-562.
- Laothawornkitkul, J., J. E. Taylor, N. D. Paul, and C. N. Hewitt (2009), Biogenic volatile organic compounds in the Earth system, *New Phytol.*, 183, 27–51, doi:10.1111/j.1469-8137.2009.02859.x.
- Lathiére, J., et al. (2006), Impact of climate variability and land use changes on global biogenic volatile organic compound emissions, *Atm. Chem. Phys.*, *6*, 2129–2146.
- Le Quéré, C., et al. (2015), Global carbon budget 2015, *Earth* Sys. Sci. Data, 7, 349–396, doi:10.5194/ essd-7-349-2015.
- Lindwall, F., M. Schollert, A. Michelsen, D. Blok, and R. Rinnan (2016), Fourfold higher tundra volatile emissions due to arctic summer warming, J. Geophys. Res. Biogeosci., 121, 895–902, doi:10.1002/2015JG003295.
- Loreto, F., and J.-P. Schnitzler (2010), Abiotic stresses and induced BVOCs, *Trends Plant Sci.*, 15, 153–166, doi:10.1016/j.tplants.2009.12.006.
- Martin, M. J., C. M. Stirling, S. W. Humphries, and S. P. Long

(2000), A process-based model to predict the effects of climatic change on leaf isoprene emission rates, *Ecol. Model.*, *131*, 161–174.

- 松永壮,中塚誠次,茶谷聡,望月智貴,谷晃 (2012),高分子 量生物起源揮発性有機化合物の放出と国内インベントリ, 大気環境学会誌,47,A6-A8.
- Messina, P., et al. (2016), Global biogenic volatile organic compound emissions in the ORCHIDEE and MEGAN models and sensitivity to key parameters, *Atm. Chem. Phys.*, *16*, 14169–14202, doi:10.5194/acp-16-14169-2016.
- Misztal, P. K., et al. (2011), Direct ecosystem fluxes of volatile organic compounds from oil palms in South-East Asia, *Atm. Chem. Phys.*, 11, 8995–9017, doi:10.5194/acp-11-8995-2011.
- 深山貴文ら (2016), アカマツ林における α-ピネン放出量の空間分布特性, *日本森林学会誌*, 98, 59-64.
- Mochizuki, T., A. Tani, Y. Takahashi, N. Saigusa, and M. Ueyama (2014), Long-term measurement of terpenoid flux above a *Larix kaempferi* forest using a relaxed eddy accumulation method, *Atm. Env.*, 83, 53–61, doi:10.1016/j.atmosenv.2013.10.054.
- Monks, P. S., et al. (2009), Atmospheric composition change global and regional air quality, *Atm. Env.*, 43, 5268–5350, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.08.021.
- Monson, R. K., et al. (2007), Isoprene emission from terrestrial ecosystems in response to global change: minding the gap between models and observations, *Phil. Trans. Roy. Soc. L.*, *A365*, 1677–1695, doi:10.1098/rsta.2007.2038.
- Monson, R. K., R. Grote, Ü. Niinemets, and J.-P. Schnitzer (2012), Modeling the isoprene emission rate from leaves, *New Phytol.*, 195, 541–559, doi:10.1111/j.1469-8137. 2012.04204.x.
- Morfopoulos, C., et al. (2014), A model of plant isoprene emission based on available reducing power captures responses to atmospheric CO₂, *New Phytol.*, 203, 125–139, doi:10.1111/nph.12770.
- Müller, J.-F., et al. (2008), Global isoprene emissions estimated

using MEGAN, ECMWF analyses and a detailed canopy environment model, *Atm. Chem. Phys.*, *8*, 1329–1341.

- Navarro, J. A. C., et al. (2014), Global emissions of terpenoid VOCs from terrestrial vegetation in the last millennium, J. Geophys. Res. Atm., 119, 6867–6885, doi:10.1002/2013JD 021238.
- Niinemets, Ü., and R. K. Monson (Eds.) (2013), Biology, Controls and Models of Tree Volatile Organic Compound Emissions, 547 pp., Springer, doi:10.1007/978-94-007 -6606-8.
- Niinemets, Ü., and M. Reichstein (2002), A model analysis of the effects of nonspecific monoterpenoid storage in leaf tissue on emission kinetics and composition in Mediterranean sclerophyllous *Quercus* species, *Global Biogeochem. Cycles*, *16*, doi:10.1029/2002GB001927.
- Niinemets, Ü., S. Fares, P. Harley, and K. J. Jardine (2014), Bidirectional exchange of biogenic volatiles with vegetation: emission sources, reactions, breakdown and deposition, *Plant Cell Env.*, 37, 1790–1890, doi:10.1111/pce.12322.
- Niinemets, Ü., J. D. Tenhunen, P. C. Harley, and R. Steinbrecher (1999), A model of isoprene emission based on energetic requirements for isoprene synthesis and leaf photosynthetic properties for *Liquidamber* and *Quercus*, *Plant Cell Env.*, 22, 1319–1335.
- Niinemets, Ü., et al. (2010), The leaf-level emission factor of volatile isoprenoids: caveats, model algorithms, response shapes and scaling, *Biogeosci.*, 7, 1809–1832, doi:10.5194/bg-7-1809-2010.
- Oderbolz, D. C., et al. (2013), A comprehensive emission inventory of biogenic volatile organic compounds in Europe: improved seasonality and land-cover, *Atm. Chem. Phys.*, 13, 1689–1712, doi:10.5194/acp-13-1689-2013.
- Owen, S. M., and M. C. Peñuela (2005), Opportunistic emissions of volatile isoprenoids, *Trends Plant Sci.*, 10, 420–426.
- Pacifico, F., S. P. Harrison, C. D. Jones, and S. Sitch (2009),

Isoprene emissions and climate, *Atm. Env.*, *43*, 6121–6135, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.09.002.

- Peñuelas, J., and M. Staudt (2009), BVOCs and global change, *Trends Plant Sci.* 15, 133–144, doi:10.1016/j.tplants. 2009.12.005.
- Peñuelas, J., et al. (2014), Biogenic volatile emissions from the soil, *Plant Cell Env.*, 37, 1866–1891, doi:10.1111/pce.12340.
- Pierce, T., et al. (1998), Influence of increased isoprene emissions on regional ozone modeling, J. Geophys. Res., 103, 25611–25629.
- Pierik, R., C. L. Ballaré, and M. Dicke (2014), Ecology of plant volatiles: taking a plant community perspective, *Plant Cell Env.*, 37, 1845–1853, doi:10.1111/pce.12330.
- Possell, M., and C. N. Hewitt (2011), Isoprene emissions from plants are mediated by atmospheric CO₂ concentrations, *Global Change Biol.*, 17, 1595–1610, doi:10.1111/ j.1365-2486.2010.02306.x.
- Potter, C. S., S. E. Alexander, J. C. Coughlan, and S. A. Klooster (2001), Modeling biogenic emissions of isoprene: exploration of model drivers, climate control algorithms, and use of global satellite observations, *Atm. Env.*, 35, 6151–6165.
- Potosnak, M. J., L. LeStourgeon, and O. Nunez (2014), Increasing leaf temperature reduces the suppression of isoprene emission by elevated CO₂ concentration, *Sci. Total Env.*, 481, 352–359, doi:10.1016/j.scitotenv.2014. 02.065.
- Rosenkranz, M., T. A. M. Pugh, J.-P. Schnitzler, and A. Arneth (2015), Effect of land-use change and management on biogenic volatile organic compound emissions – selecting climate-smart cultivars, *Plant Cell Env.*, 38, 1896–1912, doi:10.1111/pce.12453.
- Sharkey, T. D., and R. K. Monson (2014), The future of isoprene emission from leaves, canopies and landscapes, *Plant Cell Env.*, 37, 1727–2740, doi:10.1111/pce.12289.
- Sharkey, T. D., A. E. Wiberley, and A. R. Donohue (2008),

Isoprene emission from plants: why and how, Ann. Bot., 101, 5–18, doi:10.1093/aob/mcm240.

- Shim, C., et al. (2005), Constraining global isoprene emissions with Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) formaldehyde column measurements, *J. Geophys. Res.*, *110*, D24301, doi:10.1029/2004JD005629.
- Shiojiri, K., R. Ozawa, K. Matsui, M. W. Sabelis, and J. Takabayashi (2012), Intermittent exposure to traces of green leaf volatiles triggers a plant response, *Sci. Rep.*, 2, doi:10.1038/srep00378.
- Sindelarova, K., et al. (2014), Global data set of biogenic VOC emissions calculated by the MEGAN model over the last 30 years, *Atm. Chem. Phys.*, 14, 9317–9341, doi:10.5194/ acp-14-9317-2014.
- Stavrakou, T., et al. (2009), Global emissions of non-methane hydrocarbons deduced from SCIAMACHY formaldehyde columns through 2003–2006, *Atm. Chem. Phys.*, 9, 3663– 3679.
- Stavrakou, T., et al. (2014), Isoprene emissions over Asia 1979–2012: impact of climate and land-use changes, *Atm. Chem. Phys.*, *14*, 4587–4605, doi:10.5194/acp-14-4587-2014.
- Tanaka, K., et al. (2012), How have both cultivation and warming influenced annual global isoprene and monoterpene emissions since the preindustrial era?, Atm. Chem. Phys., 12, 9703–9718, doi:10.5194/acp-12-9703-2012.
- 谷晃 (2010), 植物によるイソプレンとモノテルペンの放出, 低 温科学, 68, 35-39.
- Tani, A., and C. N. Hewitt (2009), Uptake of aldehydes and ketones at typical indoor concentrations by houseplants, *Env. Sci. Tech.*, 43, 8338–8343, doi:10.1021/es9020316.
- Tani, A., and Y. Kawawata (2008), Isoprene emission from the major native *Quercus* spp. in Japan, *Atm. Env.*, 42, 4540– 4550, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.01.059.
- 谷晃,望月智貴 (2016) 大気環境と植物の揮発性有機化合物放出, *大気環境学会誌*, 51, A51-A56.

- Tao, Z., and A. K. Jain (2005), Modeling of global biogenic emissions of key indirect greenhouse gases and their response to atmospheric CO₂ increases and changes in land cover and climate, *J. Geophys. Res.*, 110, D21309, doi:10.1029/2005JD005874.
- Tingley, D. T., M. Manning, L. C. Grothaus, and W. F. Burns (1980), Influence of light and temperature on monoterpene emission rates from slash pine, *Plant Physiol.*, 65, 797– 801.
- Unger, N., et al. (2013), Photosynthesis-dependent isoprene emission from leaf to planet in a global carbon-chemistry-climate model, *Atm. Chem. Phys.*, *13*, 10243–10269, doi:10.5194/acp-13-10243-2013.
- Warwick, N. J., et al. (2013), A global model study of the impact of land-use change in Borneo on atmospheric composition, *Atm. Chem. Phy.*, 13, 9183–9194, doi:10.5194/acp-13-9183-2013.
- Wiberley, A. E., A. R. Linskey, T. G. Falbel, and T. D. Sharkey (2005), Development of the capacity for isoprene emission in kudzu, *Plant Cell Env.*, 28, 898–905.
- Wiedinmyer, C., X. Tie, A. Guenther, R. Neilson, and C. Granier (2006), Future changes in biogenic isoprene emissions: How might they affect regional and global atmospheric chemistry?, *Earth Inter.*, 10, 1–19.
- Wu, S., L. J. Mickley, J. O. Kaplan, and D. J. Jacob (2012), Impacts of changes in land use and land cover on atmospheric chemistry and air quality over the 21st century, *Atm. Chem. Phys.*, *12*, 1597–1609, doi:10.5194/ acp-12-1597-2012.
- Yokouchi, Y., and Y. Ambe (1984), Factors affecting the emission of monoterpenes from red pine (*Pinus* densiflora), Plant Physiol., 75, 1009–1012.
- Yuan, J. S., S. J. Himanen, J. K. Holopainen, F. Chen, and C. N. J. Stewart (2009), Smelling global climate change: mitigation of function for plant volatile organic compounds, *Trends Ecol. Evol.*, 24, 323–331, doi:10.1016/j.tree.2009.01.012.

Zimmer, W., et al. (2000), Process-based modelling of isoprene

emission by oak leaves, Plant Cell Env., 23, 585-595.

原稿受領日: 2016年11月15日 掲載受理日: 2016年11月21日

著者所属:

1. 国立環境研究所

2. 海洋研究開発機構

*責任著者:

Akihiko Ito <itoh@nies.go.jp>

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^{1,2}*

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_{2.5} 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ヴェルでの提唱・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ろう。

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(CH₄)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(NOx)と、メタン(CH4)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,CO₂・CH₄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, CH4 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, CH4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 CH4 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/UCpd0cl8kEBCtElm8z RTt8Xw/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,どちらかというと光化 学スモッグや PM25 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のって広域に輸送されうる [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、CH4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 CH4 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。

- 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(NOx, BC, SO2)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(SO4²⁻)・硝酸塩(NO3⁻)・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(SO2)がダスト表面上で硫酸(硫酸カルシウム CaSO₄)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(NH4⁺)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] 😤 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,NOx 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,その不確定性は小さくな い。このような不確定性低減のため,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・不確定性が含ま 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。



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(1o)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 \mathcal{Z} [Sekiva 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(O₃), 灰実線は成層圏 起源の寄与 O₃(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⁻¹)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⁻¹)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⁻¹ 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⁻¹)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、NOx 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 CCMI 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強い。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⁻¹)が顕著であり,これには,対流圏オ ゾン,水蒸気,雷からの NOx 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



計昇した例。

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 きる。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・簡単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定性が大きく, 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大きい。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 るかもしれないが)。

化学気候モデリングについてのもう一つの不確定 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き 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 体の不確定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定性の低減も併せて 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 なければならず,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,これまでにない新し 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 CoupledGCM(MIROC) Description, Teck. report 1, The Center forClimate 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 NOx 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 CH3CCl3 using atmospheric trends, *Atmos. Chem. Phys.* 13(5): 2691-2702.
- Samset, B. H., et al. (2016), Fast and slow precipitation responses to individual climate forcers: 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 >

Research Focus

大気化学データ同化

Data Assimilation of Atmospheric Chemistry

関山剛¹*

データ同化とは観測と予報シミュレーションの情報を組み合わせて最も尤もらしい状態を推定する技術である。計算機の性能向上にともなって大気化学の分野でもデータ同化を利用した物質濃度分布の解析や発生/沈着量の逆推定が近年盛んに行われるようになってきた。本稿ではデータ同化に対する先入観や誤解(数式ばかりで難しい?/データ同化はデータ捏造?)を解きつつ,最新のデータ同化手法を使った解析例を紹介して大気化学データ同化の利用価値について概観したい。

1. データ同化とは

地球科学におけるデータ同化とは観測値と予報シ ミュレーションモデルの計算結果を組み合わせて統 計学的に最も尤もらしい大気(あるいは海洋や陸面) の状態を推定する技術である。もともとは天気予報計 算の初期値を作成するために研究開発が進められ たデータ同化であるが、2000年代頃から急速に大気 化学への応用が進められている。以下、データ同化 の原理(1.1節)とデータ同化の技術的変遷(1.2節) を簡単に説明したあと、具体的な大気化学への応用 例(2.1節:オゾン、2.2節:エアロゾル)を解説する。

1.1. データ同化の原理

我々地球科学者は二種類の情報を持っている。 一つは観測値,もう一つはモデル計算値である。観 測値はこの世界の真の状態を反映しているはずだが (ただし必ず誤差を含む;その誤差には測器誤差だ けでなく代表性誤差も含まれる;測器誤差よりも代表 性誤差の方が取り扱い困難である),任意の場所と時 間間隔で全ての物理量を観測することは不可能であ る。一方,モデルは地球上の任意の場所と時間にお けるあらゆる物理量を計算することが可能であるが, 所詮は計算機の中の世界(Virtual World)である。こ れら相補的な長所短所を持つ二種類の情報をベイ ズ統計学に基づき統合し、最も尤もらしい状態(=真 値に可能な限り近い値)を推定するのがデータ同化 である。

データ同化では通常,モデル計算値を第一推定 値あるいは先験情報と呼ぶ。もちろんこの第一推定 値には誤差が含まれる。最新のデータ同化手法は第 一推定値のどの場所,どの時刻,どの物理量にどの 程度の誤差が含まれているのか推定することによっ てデータ同化の計算精度を向上させている。データ 同化の計算結果である最適推定値(いわゆる解析 値)は第一推定値や観測値よりも真値(=この世界の 真の状態)に近いと期待することはできるが,我々人 類は真値そのものを知ることはできない。よく誤解さ れることであるが, 真値というのは測器の性能を無限 に上げていけば得られるというものではない(ここでは 量子力学の不確定性原理はとりあえず無視する)。 例えば,我々地球科学者が知りたいのは熱電対の先 端に触れている微小空気塊の温度ではなく、小さな 試料セルの中にたまたま入ってきた二酸化炭素の濃 度でもなく、少なくとも数十mサイズ、場合によっては 数十km サイズの空気塊における平均温度や平均濃 度なのである。このような「空気塊全体の平均値」と 「極小ローカルな観測値」との差を代表性誤差と呼ぶ。 データ同化の計算精度を上げるためには測器誤差 だけでなく代表性誤差も正確に見積もる必要がある。

データ同化はベイズ統計学に基づいていると前述 したが、本稿ではその数学的な内容に深入りはしな い(しかし、ベイズ統計学の学習はお薦めである。日 本の学校教育で学ぶ古典統計学との違いに驚愕し、 知的好奇心が満たされること請け合いである)。デー タ同化に関して日本語の教科書も幾つか出版されて いるので数学的な詳細はそちらを参照してほしい[*露* 木、川畑(編)、2008; 淡路ら、2009; 樋口ら、2011]。 ちなみにデータ同化の数学的原理は地球科学以外 でも盛んに使われている。例えば「ロケットや自動車 の位置推定」「通信情報のフィルタリング」「機械学習 によるビッグデータ処理」なども共通の数学的基盤に 依っている。これらはすべて「量・質共に限られた観 測情報を元にその背後に隠れている真の状態を推 定する」ことを目的としているからである。

ともあれ地球科学におけるデータ同化で実際に行 われている数学的操作を極めて簡略に述べるなら、 それは重み付き平均と言ってよいだろう。しかしモデ ル計算値と観測値を足して単純に2で割るのではな く,より信用できる方の重みを重くして平均値を計算 する。信用の度合いは誤差の相対的な大きさで決ま る。ただしこのような2変数間の単純な重み付き平均 は同じ場所・時刻・物理量のモデル計算値と観測値 が共に存在している時のみに実現可能である。残念 ながら実際の地球大気のデータ同化では観測値が 圧倒的に少なく, モデル計算値と同じ場所・時刻・物 理量の観測値が得られる可能性はほとんどゼロに近 い。しかしその場合も,異なる場所や時刻,あるいは 異なる物理量との間の相関をもとにして重みを推定し、 最適推定値を計算することが可能である。最新のデ ータ同化手法の開発は,このような離れた物理量同 士の相関(あるいは重み)をいかにして効率よく正確 に推定するかという技術競争である。また,異なる場 所・時刻の異なる物理量を最適推定できるということ

は,汚染濃度の観測値から(過去の)汚染発生量の 逆推定も原理的に可能であることを意味する。後述 するように逆推定は大気化学において大変利用価値 の高いデータ同化の能力である。

1.2. データ同化の技術的変遷

天気予報の分野では予報初期値を作るために計 算機性能の低い時代(1970年代)からデータ同化が 行われてきた。当時使われていたデータ同化の手法 は最適内挿法(Optimal Interpolation: OI)と呼ばれる ものであり、極めて簡便な計算処理で済むために計 算機負荷が低いという利点を持つ。しかし、最適内挿 法は計算結果(最適推定値)の格子点間および変数 間の物理的バランスが容易に崩れてしまうという欠点 を持つ。また、遠く離れた場所の観測値を適切に重 み付けしてモデル計算値と融合することができない。 そのため、(天気予報とは異なって)豊富な観測デー タを得ることの難しい大気化学の分野では最適内挿 法の利用は非常に困難であった。

大気化学の分野でデータ同化が広く行われるよう になったきっかけは,計算機の性能が向上して高性 能なデータ同化手法が実用化されたことが大きい。 天気予報の分野で開発された最新のデータ同化手 法(変分法やアンサンブルカルマンフィルタ)が物質 濃度のデータ同化にも流用されてきた。また,1980 年代あるいは 1990 年代頃から地球観測衛星が続々 と打ち上げられ,大気微量成分やエアロゾルの観測 データが広範囲に得られるようになったことも強い動 機となった。

現代の天気予報で主に使われているデータ同化 手法は変分法である(ちなみに変分法とは最速降下 線問題など函数最小値探索の際に用いられる数学 上のテクニックである)。特に気象庁や欧州中期予報 センター(ECMWF)が採用している4次元変分法 (Four Dimensional Variational method: 4D-Var)は最 適内挿法の欠点の多くを解決している。例えば格子 点間の相関は時々刻々変化する大気の流れに依存 して動的に推定されており、さらにモデル予報値とは 異なる種類の観測物理量(例えば放射輝度など)も 物理的に適切な関連性を推定することによってモデ ル予報値に取り込ませることができる。

しかし 4D-Var の欠点は極めて計算機負荷が大き いこと, さらには数値モデルのアジョイント・コード(随 伴方程式モデル)を用意しなければならないことにあ る。特に大気化学への応用を考えると,数学的な詳 細は省くが,非線形性の強い化学反応過程や拡散 沈着過程のアジョイント・コードを作成する作業は極 めて手間がかかる。そのため,大気化学での本格的 な 4D-Var の利用はあまり進んでいない(複雑な化学 反応系のアジョイント・コード作成を試みた例もあるが [Hakami et al., 2007; Henze et al., 2007], アジョイン ト・コードの維持管理は一般には極めて難しいと思わ れる。ただし黄砂や二酸化炭素のように化学反応系 が単純な事例では 4D-Var も利用されている [Yumimoto et al., 2008; Niwa et al., 2016])。 では、どのようなデータ同化手法が大気化学では 広く使われているのだろうか。一つには数値モデル のアジョイント・コードを作る必要のない3次元変分法 (3D-Var)の利用が挙げられる。しかし残念なことに 3D-Var は精度や応用性において 4D-Var に遠く及ば ない。そこで2000年代以降しばしば使われるようにな った手法がアンサンブルカルマンフィルタ(EnKF)で ある。EnKF は数値モデルのアジョイント・コードを必 要としない一方で4D-Var に匹敵する性能を持つため (ただし計算機負荷も4D-Var に匹敵してしまうのは残 念な点である)、大気化学のデータ同化に最適と言っ てよい。

EnKF の原理を簡単に説明すると、微小摂動を与 えた多数の異なる初期値によるアンサンブルシミュレ ーションのばらつきによって先験情報の分散(すなわ ちモデル誤差)と共分散(すなわちモデル変数間の 相関)を近似し、重み付け平均の重みを決定する線 形最小分散推定法である。その推定精度は原理的









図1 オゾン全量データ同化の例。(a) ナッジング法によって作成した解析値, (b) 40 メンバーのアンサンブルカル マンフィルタによって作成した解析値, (c) これらデータ同化に使用した TOMS オゾン全量観測値。Sekiyama et al. [2011a]の Supplement 1 を一部改変して引用。

にアンサンブルのメンバー数が多いほど,また数値 モデルの非線形性が弱いほど高くなる。大気化学に 内在する強い非線形性は如何ともしがたいが,アン サンブルのメンバー数は計算機資源の許す限り増や すことが可能である。かといって数千・数万のアンサ ンブルを計算することは容易ではないため(それより も数値モデルの解像度を上げる方が賢明な場合もあ る),大気化学データ同化の場合,通常は数十メンバ ー程度のアンサンブル計算で EnKF を実現させてい る。また,当然であるが観測データが充実しているほ ど,また数値モデルの性能が良いほど最適推定値の 精度は高くなる。どの程度の精度で最適推定値が得 られるかはこれら様々な要因によって決まるので"や ってみなければ分からない"というのが実情である。

次章ではEnKFを使った大気化学データ同化の例 として,筆者自身が行ったオゾン全量とエアロゾル (特に黄砂)の解析をそれぞれ紹介する。

2. 大気化学への応用

2.1. オゾン

成層圏オゾンは衛星観測が得やすい上に高性能 な数値シミュレーションモデルが多数開発されてきた 経緯もあり,比較的早い時期から大気化学データ同 化の対象となってきた。ここでは米国航空宇宙局 (NASA)が打ち上げた TOMS と呼ばれる観測装置 (現在は OMI と呼ばれる後継装置が打ち上げられて いる)で得られたオゾン全量値を EnKF によってデー タ同化した例を示す[Sekiyama et al., 2011a]。TOMS では観測データが鉛直方向の全量積算値であるた め,鉛直分布に関する情報は全く得られない。したが って鉛直分布情報はすべてモデル計算値(第一推 定値)から得ることになる。ちなみにオゾン全量の約9 割は成層圏オゾンであるため,オゾン全量を同化す ることは成層圏オゾンを同化することに近い。

この研究例では EnKF によって作成した最適推定 値(=解析値)をナッジング法で作成した解析値と比 較している。ナッジングは最適内挿法よりもさらに簡 便なデータ同化手法であるため(ただし TOMS や OMI のように空間的に密な観測値が得られる場合は 利用価値あり), ナッジング法で作成した解析値の精 度は一般に低い。それがよく現れているのが図1であ り, ナッジング解析値(図 1a)に比べて EnKF 解析値 (図 1b)の方が TOMS 観測値(図 1c)に似た等値線を 描いていることが分かる。ナッジング法などの簡便な データ同化手法はプルームの微小な構造を再現す るのが苦手である一方で, EnKF のような高性能なデ ータ同化手法はプルームの形を壊すことなく解析値 を作成できる。これは図 1 における南極海上空の等 値線の形を見れば一目瞭然だろう。

また, EnKF のような高度なデータ同化手法は入手 可能な観測値が少ない場合でも最適推定精度の劣 化が少ない。例えばオゾン全量データ同化計算を 2 ヶ月間続けた例では(図 2), EnKF データ同化の誤 差(RMSD)がナッジングに比べて小さいだけでなく, データ同化に用いる観測の分量が 10 分の 1 あるい は 100 分の 1 に減少しても誤差の大きさはほぼ同じ 値に収束することが見て取れる(ただし誤差の縮小速 度は遅くなる)。一方でナッジング解析値は観測の分 量の減少が解析誤差の拡大に直結している。ちなみ にこの実験では既存の観測値をランダムに間引くこと によって人為的にデータ量を減少させた。



図2 オゾン全量データ同化精度の時系列推移。 横軸はデータ同化開始からの日数,縦軸は解析 値を初期値にして6時間予報した値と観測値との 差(Root Mean Square Difference)の北半球中緯 度平均。データ同化に使用する観測値の数を標 準,10分の1,100分の1に変化させて計算してい る。Sekiyama et al. [2011a]の Fig.3 から引用。

2.2. エアロゾル

次に、データ同化の威力を強く認識させる例を示 そう。エアロゾルの観測装置にライダーと呼ばれるも のがある。レーザー光の後方散乱を測定し、エアロゾ ルの鉛直分布を非常に高い解像度で推定可能な測 器である。しかしライダーで観測できるのは減衰後方 散乱係数あるいは消散係数であり、エアロゾルの濃 度は直接には測定できない。また、レーザー光が放 たれる方向だけしか観測できないため、横方向の広 がり(swath 幅)が通常は得られない。したがってライ ダーの観測結果を図に描くと屏風のような断面図の みが得られる(例:図 3a)。ライダーから得られる情報 量は膨大であるのに横方向の広がりを欠くため、人 間が視覚的にライダー観測を把握するのは非常に困 難である。

このような特徴を持つライダー観測をデータ同化し たらどのような最適推定値(エアロゾル濃度の解析 値)が得られるだろうか。そう考えて筆者はライダー搭 載衛星 CALIPSO(2006 年に NASA が打ち上げ)の 観測データを EnKF によって全球エアロゾルモデル に同化した[Sekivama et al., 2010]。衛星ライダーは 非常に離れた場所の大気断面を測定するのみ (CALIPSO の極軌道の東西間隔は約 1000 km)であ るため、EnKF(あるいは 4D-Var)のように大気の流れ に依存して(=時々刻々変化する風上方向へ遡っ て)最適推定を行うデータ同化手法でなければ観測 情報の活用が難しい。また、この Sekivama et al. [2010]では球形エアロゾルと非球形エアロゾル(主に 黄砂)とを区別するため,532nm および 1064nm の減 衰後方散乱係数データに加えて 532nm の偏光解消 度データの同化を試みた。

図 3a は CALIPSO の観測した 532nm 減衰後方散 乱係数(2007 年 5 月 27 日東アジア上空)であり,図 3b は同じ時刻・同じ場所の 532nm 減衰後方散乱係 数を全球エアロゾルモデル(データ同化無し)で再現 した結果である。ただし,観測では雲の中や下で観 測が不可能であるのに対し,モデルでは雲を無視し



図3 衛星搭載ライダー観測のデータ同化の例。横 軸を緯度,縦軸を高度として,2007年5月27日(a) 東アジア(日本-朝鮮半島-中国東北部近辺)上空 を通過した極軌道衛星 CALIPSOの532nm 減衰後 方散乱係数観測値をプロットしてある(赤黒い領域 は雲,地面の黒い領域は山岳部,白い点は観測 値が得られなかった領域)。(b)同じ場所・時刻を再 現計算した数値シミュレーションモデル(データ同 化無し)の結果,および(c)アンサンブルカルマンフ ィルタで CALIPSO の観測値をデータ同化した結 果。Sekiyama et al. [2010]の Fig 1.を引用。

て描画してある。そして CALIPSO 観測値をデータ同 化した結果が図 3c である。この日は大陸から日本列 島へ向けて黄砂や越境汚染が流れ込んでおり,図 3aにおいても北緯40度/高度5km付近に何らかの エアロゾルが観測されていることが分かる(北緯30度 付近の雲中および雲下にもおそらくエアロゾルが大 量に含まれているが衛星ライダーでは観測不可能)。 この例では、特に北緯45~55度/高度3km前後に おいて(データ同化無しのモデル計算では観測にお いて存在しないエアロゾル塊が分布してしまっている 領域で)、データ同化による改善が顕著である。

この衛星ライダーデータ同化を使って水平方向の 黄砂濃度分布を調べた結果が図4である。データ同 化無しの場合,北海道と沖縄を除く日本全体が黄砂 に覆われてしまっているが(図4a),データ同化の解 析結果では九州・四国と山口県辺りにのみ黄砂が流



れ込んでおり(図 4b),残りのプルームは太平洋上へ 通り抜けている。この日の気象官署による黄砂目視 観測では九州・四国・山口県以外ではほとんど黄砂 が報告されておらず,データ同化無しの計算結果が 過大評価であることは明らかである。一方,データ同 化の解析結果は黄砂報告官署(図中の赤点)と黄砂 プルームの位置が非常に良く一致している。ちなみ に黄砂目視観測の情報はデータ同化に利用されて おらず,データ同化に利用したのは約 1000 km 間隔 / day の CALIPSO ライダー観測だけである。この例 のように,高性能なデータ同化は『必要とは異なる場 所/物理量の観測情報(この場合は衛星直下の減 衰後方散乱係数)』を利用して『必要とする情報(この 場合は自分の街の黄砂濃度)』を最適推定することが 可能である。

さらに同じ EnKF データ同化システムを使用して, 黄砂発生量を逆推定した例が図 5 である[Sekiyama et al., 2011b]。前に述べたとおり,高性能なデータ同 化手法を用いると物質濃度の観測値から物質の発生 /沈着量を逆推定することが可能である。これは大 気化学において大変利用価値が高い。図 5 の例で はタクラマカン砂漠からゴビ砂漠にかけての領域に おける黄砂発生量を推定している。この時期, ゴビ砂 漠では数値モデルの土壌水分量が過大評価だった ことが分かっており, そのためデータ同化無しの計算 では黄砂発生量が過小評価だったと推測されている。 データ同化はそれを補正することができた(図 5c の 赤色領域)。ただし黄砂発生量の広域観測は実際上 不可能であるため, この逆推定結果を直接検証する ことは困難である。大気化学における逆推定の計算 結果は他の様々な情報(ボトムアップ的なデータセッ ト等)と組み合わせて利用する必要があろう。

3. さいごに

本稿ではオゾン全量とエアロゾルのデータ同化し か紹介できなかったが、世界各国の研究者らによっ て成層圏オゾン関連物質(Ox, NOx, ClOx 等),温 室効果ガス(二酸化炭素、メタン等),一酸化炭素、 煤,放射能汚染物質など様々な大気微量成分の濃 度分布解析と発生量逆推定がデータ同化を使って 進められている。また将来的には、計算機の高速化・ 数値モデルの性能向上・新たなデータ同化手法の開 発によって、これまで以上の精度で最適推定が可能 になるはずである。そしてサイエンスからは離れるが、



図 5 衛星搭載ライダー観測のデータ同化による黄砂発生量の逆推定の例。2007 年 3 月 25 日から 4 月 3 日までの 総発生量について、(a) データ同化無しで推定した値、(b) CALIPSO 観測値をデータ同化して逆推定した値、(c)これら データ同化無し/有りの推定値の差(=b-a)。Sekiyama et al. [2011b]の Fig. 2 を一部改変して引用。

このように作成された濃度解析値はいわゆる「化学天 気予報」の初期値として活用することにより社会貢献 が可能である。大気化学データ同化の歴史はまだ浅 く、今後の発展が非常に楽しみである。

4. 謝辞

筆者の大気化学データ同化研究は理化学研究所 の三好建正博士や気象研究所の田中泰宙博士ら, 大変素晴らしい同僚や先輩に支えられている。改め て感謝したい。本稿で紹介した図の多くは環境省環 境研究総合推進費の助成による研究 A-0903(平成 21~23 年度)によって作成することができた。

5. 参考文献

- 淡路俊之,蒲地政文,池田元美,石川洋一 (2009),データ 同化,京都大学学術出版会,京都,日本.
- Hakami, A. et al. (2007), The adjoint of CMAQ, *Environ. Sci. Technol.*, 41(22), 7807–7817.
- Henze, D. K., Hakami, A., and Seinfeld, J. H. (2007), Development of the adjoint of GEOS-Chem, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2413–2433.
- 樋口知之,上野玄太,中野慎也,中村和幸,吉田亮 (2011),データ同化入門,朝倉書店,東京,日本.
- Niwa, Y. et al. (2016), A 4D-Var inversion system based on the icosahedral grid model (NICAM-TM 4D-Var v1.0): 1. Off-line forward and adjoint transport models, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, doi:10.5194/gmd-2016-231.

- Sekiyama, T. T., T. Y. Tanaka, A. Shimizu, and T. Miyoshi (2010), Data assimilation of CALIPSO aerosol observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 39–49.
- Sekiyama, T. T., M. Deushi, and T. Miyoshi (2011a), Operation-Oriented Ensemble Data Assimilation of Total Column Ozone, SOLA, 7, 41–44.
- Sekiyama, T. T., T. Y. Tanaka, T. Maki, and M. Mikami (2011b), The Effects of Snow Cover and Soil Moisture on Asian Dust: II. Emission Estimation by Lidar Data Assimilation, SOLA, 7A, 40–43.
- 露木義,川畑拓矢(編)(2008),気象学におけるデータ同 化,気象研究ノート 第 217 号,日本気象学会,東京, 日本.
- Yumimoto, K. et al. (2008), Adjoint inversion modeling of Asian dust emission using lidar observations. Atmos. Chem. Phys., 8, 2869-2884.

原稿受領日: 2016 年 11 月 15 日 掲載受理日: 2016 年 12 月 2 日

著者所属:

 気象庁気象研究所
 *責任著者: Tsuyoshi Thomas Sekiyama
 <tsekiyam@mri-jma.go.jp>

水表面の不均一化学の分子シミュレーション

Molecular Simulation Studies of Heterogeneous Chemistry at Aqueous

Interfaces

森田明弘 1,2*

エアロゾル表面での不均一化学の精密な解明には、大気化学と分子科学の両者にとって未開拓なフ ロンティアが残されている。界面現象の原子・分子レベルの理解において、しばしば実験計測が届か ない場面があり、分子シミュレーションが有効な役割を果たすことができることを、水表面の物質移動 やその表面構造に関するいくつかの研究例を通して紹介する。

1. はじめに

大気中のエアロゾルは、古くからの酸性雨や南極 のオゾンホールをはじめとして、近年の気候変動や 健康被害などを含めて大気化学全般にわたって 様々な役割を果たしており、その不均一化学の解明 は大気化学の中で大きな分野を形成している [*McNeil et al.*, 2014]。しかしエアロゾルの関わる不均 一化学を原子・分子の振る舞いのレベルで解明する ことは、未開拓な領域が多く残されている。

均一気相系の大気化学反応にない特徴として,不 均一系では界面現象が重要な意味をもつ。界面をま たぐ物質移動や界面特有の反応が関わるため,反応 機構や速度論も際立って複雑になる。また不均一反 応の微視的な理解のために,界面の観測が大きな問 題となる。大気化学の表面は従来の表面科学の枠に 収まらない部分が大きく,大気圧下で液体表面を含 むような界面を原子・分子レベルで観測できる手法は 非常に少ないためである。実験計測が難しい問題に 対する切り口として,理論計算によって原子・分子の 振る舞いを扱う分子動力学(MD)シミュレーションが 重要な役割を果たすことが期待される。本稿では,界 面現象の解明に対する分子シミュレーションの貢献 について紹介する。

2. 気液界面の物質移動

2.1 取り込み係数と適応係数

不均一反応の速度論は、気相の拡散輸送、界面 での取り込み、液相の拡散や反応など多くの要素が 関わっている[Kolb et al., 2010]。不均一反応の速度 は一般に取り込み係数γで表されるが、これは本質 的には単位時間・単位面積当たりの正味の物質移動 量に当たる現象論的な速度で、上のような要素ステッ





プをすべて含んだものである。その理解には、これら の要素ステップの解明が求められ、とくに律速段階を 把握することが必要である。各要素ステップの速度論 が分かれば、エアロゾル形状やバルク濃度の境界条 件の違いで見かけ上異なる取り込み係数 y をモデル 化して表すことも可能となる。

これらの要素ステップにはバルク中の拡散や反応 に関するものも含まれているが、そのなかで厳密な (狭義の)意味で界面の移動速度を表す量は mass accommodation coefficient (適応係数) αであり、ミク ロには

$$\alpha = \frac{(界面に取り込まれた分子数)}{(界面に衝突した分子数)}$$
(1)

で定義される。これは衝突分子や界面構造に依存するもので,直接測定も難しい¹。そこで分子シミュレーションで解明するにふさわしい対象である。

2.2 有機分子膜に覆われた表面の物質移動

気相の水分子が水表面に取り込まれる適応係数α はほぼ1であるが,水表面が界面活性のLangmuir膜 で覆われるとαは劇的に小さくなることが昔から知ら れていた[La Mer et al., 1964]。アルキル基 C_nH_{2n+1}を 含む界面活性分子では長鎖になるほどαは小さくな り, n=16のアルコールでは,αは 10⁻⁴ 程度になる。 大気化学でも海洋境界エアロゾルを含む多くのエア ロゾル表面は有機物で覆われていることが近年明ら かになってきており[Ellison et al., 1999],それが物質 移動の速度に影響を与えていることが考えられる。

長鎖のLangmuir 膜でαを求めることはむしろ容易 である。それはαが非常に小さくなると、それが物質 移動全体の律速となって、現象論的な取り込み係数 が適応係数と等しくなるためである。しかし短鎖の有 機物でのαの測定は困難で、これまで測定例はなか った。Nathansonらは、液体表面の分子ビーム実験に よって, 短鎖の界面活性有機分子の効果を初めて測定した。蒸気圧の妨害を避けるため, 比較的高い濃度の硫酸水溶液を用いて α の直接観測を行ったところ, n=4 (ブタノール)や6 (ヘキサノール)の膜ではほぼ α ~1 で, 界面移動にほとんど影響がないことを示した[Park et al., 2009]。これは長鎖の分子と短鎖の分子では, 界面移動に与える機構が違うことを示唆している。

そもそも長鎖の分子がなぜそれほどにαを小さく するのか。それを明らかにするため、Langmuir 膜を 通過する水分子の感じる自由エネルギー面と摩擦係 数を分子シミュレーションによって計算した [Sakaguchi et al., 2012]。すると、長鎖分子の場合に は図 2 のようにアルキル膜の中で自由エネルギー障 壁が現れ、鎖長とともに障壁が高くなることが明らかと なった。水分子が気相側からアルキル膜に侵入して いくと、鎖構造に歪みがたまって不安定化する。しか しある程度まで潜り込んでいくと、水表面側から water finger 構造が生じてその水分子を捕らえるようになり、 自由エネルギーが一気に安定化する。その 2 つの要 因が自由エネルギー障壁をつくり、遅い反応速度(小 さいα)を与える原因となる。

一方短鎖 (n=4,6)のアルコール膜の場合, MD シ ミュレーションで衝突を観察すると, かなりの割合が



図2 水表面のヘキサデカノール単分子膜を通過する水 分子の自由エネルギー面 G(z)。左パネルは界面に垂直 なz方向の膜構造を示す。右パネルは、水透過の障壁頂 上(z=23 Å)前後でのスナップショット。

¹ これは固体表面科学で, sticking coefficient と呼ば れる量に対応する。真空下の固体表面とは違って,大 気圧や蒸気圧下の表面で分子衝突の測定を行うことは 一般に困難である。

表面ではじかれることがみられる。これは、 $\alpha < 1$ を 意味しており、実験と矛盾しているように見える。しか し、実験では蒸気圧を下げるため高濃度の硫酸水溶 液を使用しており、アルコール分子の一部がプロトン 化していることが考えられる。中性のアルコール分子 ($C_nH_{2n+1}OH$)とプロトン化したカチオン($C_nH_{2n+1}OH_2^+$) が混ざった膜では有機膜の morphology が乱れ、確 かに分子動力学計算では α ~1 に近い結果が得られ た[*Sakaguchi et al.*, 2003]。界面での物質移動は、表 面を覆う有機分子の構造や構造の乱れなどにも敏感 に依存することが明らかとなり、そのモデル化のため には分子シミュレーションによる系統的な解明が求め られている[*Ergin et al.*, 2016]。

3. 電解質水溶液表面のイオン分布

3.1 近年の発展

大気中の水溶性エアロゾルの化学的成分は,硫酸や硝酸,海塩などの塩を含んだ電解質水溶液である場合が多い。その表面での不均一反応の特徴を解明するには,その表面構造,とくに電解質の分布

の理解が求められる。しかし電解質水溶液の表面は, 身近な系であるにもかかわらず,近年に至るまで未 解明のまま残されていた。その最大の理由は,水溶 液の表面第一層レベルの構造を正確に観測できる 手法が殆どなかったためである。一般にイオンは水 表面に露出しにくいと長年信じられていた。

しかし 2000 年代になって Jungwirth と Tobias が分 子シミュレーションによって, ある種のイオン(Br, I な ど)はむしろ表面活性であると予測し, 従来の常識を 覆すものとして大きな議論を巻き起こした[Jungwirth et al., 2001]。大気中の海塩粒子エアロゾルでも, 水 表面のイオン分布によって新たな表面反応の経路が あることが示された[Knipping et al., 2000]。これらの 研究は表面化学者の関心を呼び, 多くの計測の試 みがなされるようになった。

水表面の分子を観測する代表的な手法に和周波 発生(Sum Frequency Generation, SFG)分光がある。 これは可視光と赤外光のレーザーを同時に界面に照 射して発生する和周波の信号を観測する手法である。 これは2次の非線形光学過程で,対称性の破れた界



図3 電解質(NaI)水溶液表面での SFG スペクトル(右上)[Raymond et al., 2004] と分子動力学(MD)シミュレーション(右下) [Jungwirth et al., 2001] 。 MD で得られた構造は, I⁻ が表面に蓄積した様子を示し, 測定された界面スペクトルがこれを意味 するかどうかが問題であった。 Reprinted with permission. ©Copyright 2004 & 2001, American Chemical Society.

面でしか原理的に起こらないため,界面の分子だけ を選択的に捉えて振動スペクトルを得るユニークな特 徴をもっている。そこで,問題の Nal 水溶液表面の SFG 測定を 2004 年に Richmond と Allen らの 2 つの グループが行った[Raymond et al., 2004, Liu et al., 2004]。両者はほぼ同じスペクトルの測定を報告した が, Г イオンが界面活性かどうかをめぐっては正反対 の結論を出し、実験スペクトルを見ただけで解釈が難 しいことを示す結果となった²。その頃筆者らはSFGス ペクトルを MD シミュレーションによって計算して解析 する手法を提案し,開発を進めていた。そこで MD 計 算で得られた Nal 水溶液の界面構造は,実測の SFG スペクトルを再現することを示し, 界面の SFG 分光と MD 計算の結果を合わせて、I が表面活性であるこ とを確立した[Ishiyama et al., 2007, Ishiyama et al., 2014].

その後電解質水溶液の表面でのイオン分布は、イ オン種によって多様性を示すことが急速に明らかにさ れていった[Jungwirth et al., 2006]。その構造情報を もとに、水表面特有の反応機構も明らかにされつつ ある[Enami et al., 2016]。本稿では近年明らかにされ た電解質水溶液表面の一例として、大気中の硫酸エ アロゾル表面に関する系である硫酸水溶液表面につ いて紹介する。

3.2 硫酸エアロゾル表面

硫酸エアロゾルの基本的な組成は濃厚な硫酸水 溶液で、大気化学で基本的な物質としてよく研究さ れ、そのバルク物性は体系的にモデル化されている [Carslaw et al., 1995]。しかし表面に関する情報は、 ほとんど皆無に近かったといえる。そこで SFG 分光と MD シミュレーションの共同で、その表面分子の詳細 が研究された[Ishiyama et al., 2011]。

上記の Nal 水溶液などと比べて, 硫酸水溶液表面の解明は一段とチャレンジングである。硫酸は2段階

の酸解離平衡 (H₂SO₄ \leftrightarrow HSO₄⁻ \leftrightarrow SO₄²⁻)をもち, その分子 (イオン)種の割合は熱力学条件で変化す る。表面では解離定数も未知であるため,表面構造 を知るにはイオン種の解離平衡と表面での分布構造 の両方を同時に解くことが求められる。そこで我々は 産総研の宮前博士と共同研究を実施し,硫酸水溶 液の溶質と溶媒の SFG スペクトルを包括的に測定し たうえで, MD シミュレーションでそれらをすべて説明 できる条件を同定した。その結果,大気中の硫酸エ アロゾルの表面では,硫酸の第2解離がバルク中より も顕著に抑制されていることを明らかにした。硫酸エ アロゾルの表面では,H₃O⁺ と HSO₄⁻ の電気二重層 が支配的な構造をとることが分かった。

4. まとめ

本稿では不均一大気化学にかかわる問題として, 界面での物質移動の機構,および電解質水溶液表 面の構造をとりあげ,分子レベルの詳細を解明するう えで分子シミュレーションが有効であることを解説した。 その他にも表面の反応場としての特徴,酸性度や塩 基性度,表面での不均一反応機構,エアロゾルの核 形成など重要な問題がある。

このような対象は大気化学と物理化学の両方から ターゲットとされ,欧米ではこのような研究分野が物 理化学の一部として普通に認知されている。私事な がら筆者は米国ボールダーに留学中にこのような分 野の存在を知り,それを出発点として大気の界面現 象に物理化学として興味をもつようになった。今後分 野の枠を越えて多くの方が興味をもつことを期待して いる。

5. 謝辞

本稿で紹介した筆者の研究は,当研究室の石山 達也博士(現富山大)と坂口俊博士(現昭和電工), および産総研の宮前孝行博士との共同研究である。 またこの分野への関心を導いたコロラド大の J. T. Hynes 教授に感謝する。

² 表面第一層の情報を選択的に捉えることと、その情報 から表面の分子構造を同定することは別の課題である。

6. 参考文献

- Carslaw, K. S., S. L. Clegg and P. Brimblecombe (1995), A thermodynamic model of the system HCl-HNO₃-H₂SO₄ -H₂O, including solubilities of HBr, from <200 to 328 K, J. *Phys. Chem.*, 99, 11557-11574.
- Ellison, G. B., A. F. Tuck and V. Vaida (1999), Atmospheric processing of organic aerosols, *J. Geophys. Res.*, 104 (D9), 11633-11641.
- Enami, S., M. R. Hoffmann and A. J. Colussi (2016), Halogen radical chemistry at aqueous interfaces, *J. Phys. Chem. A*, 120, 6242-6248.
- Ergin, G. and S. Takahama (2016), Carbon density is an indicator of mass accommodation coefficient of water on organic-coated water surface, J. Phys. Chem. A, 120, 2885-2893.
- Ishiyama, T. and A. Morita (2007), Molecular dynamics study of gas-liquid aqueous sodium halide interfaces. II. Analysis of vibrational sum frequency generation spectra, *J. Phys. Chem. C*, 111, 738-748.
- Ishiyama, T., A. Morita and T. Miyamae (2011), Surface structure of sulfuric acid solution relevant to sulfate aerosol: molecular dynamics simulation combined with sum frequency generation measurement, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13, 20965-20973.
- Ishiyama, T., T. Imamura and A. Morita (2014), Theoretical studies of structures and vibrational sum frequency generation spectra at aqueous interfaces, *Chem. Rev.*, 114, 8447-8470.
- Jungwirth, P. and D. J. Tobias (2001), Molecular structure of salt solutions: a new view of the interface with implications for heterogeneous atmospheric chemistry, J. Phys. Chem. B, 105, 10468-10472.
- Jungwirth, P., B. J. Finlayson-Pitts and D. J. Tobias (eds.) (2006), Structure and chemistry at aqueous interfaces, *Chem. Rev.*, 106(4).
- Knipping, E. M. et al., (2000), Experiments and simulations of ion-enhanced interfacial chemistry on aqueous NaCl

aerosols, Science, 288, 301-306.

- Kolb, C. E. et al. (2010), An overview of current issues in the uptake of atmospheric trace gases by aerosols and clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10561-10605.
- La Mer, V. K., T. W. Healy and L. A. G. Aylmore (1964), The transport of water through monolayers of long-chain *n*-paraffinic alcohols, *J. Coll. Sci.*, 19, 673-684.
- Liu, D., G. Ma, L. M. Levering and H. C. Allen (2004), Vibrational spectroscopy of aqueous sodium halide solutions and air-liquid interfaces: observation of increased interfacial depth, *J. Phys. Chem. B*, 108, 2252-2260.
- McNeill, V. F. and P. A. Ariya (eds.) (2014), Atmospheric and aerosol chemistry in "Topics in current chemistry" Vol. 339, Springer, Berlin.
- Park, S. C., D. K. Burden and G. M. Nathanson (2009), Surfactant control of gas transport and reactions at the surface of sulfuric acid, *Acc. Chem. Res.*, 42, 379-387.
- Raymond, E. A. and G. L. Richmond (2004), Probing the molecular structure and bonding of the surface of aqueous salt solutions, *J. Phys. Chem. B*, 108, 5051-5059.
- Sakaguchi, S. and A. Morita (2012), Mass accommodation mechanism of water through monolayer films at water/vapor interface, J. Chem. Phys. 137, 064701.
- Sakaguchi, S. and A. Morita (2013), Molecular dynamics study of water transfer at supercooled sulfuric acid solution surface covered with butanol, *J. Phys. Chem. A*, 117, 4602-4610.
 - 原稿受領日: 2016 年 10 月 13 日 掲載受理日: 2016 年 11 月 4 日

著者所属:

- 1. 東北大学大学院 理学研究科
- 2. 京都大学 触媒・電池研究ユニット

*責任著者:

Akihiro Morita <morita@tohoku.ac.jp>

大気エアロゾルに対する水蒸気の作用

桑田幹哲1*

大気エアロゾルは水蒸気と作用することで吸湿成長し、過飽和雰囲気下においては雲凝結核として 働きます。雲凝結核特性はエアロゾルが雲粒へと成長することにより引き起こされる放射収支への影響、またエアロゾルの湿性沈着を評価する上で不可欠です。さらに大気エアロゾルは吸湿成長するこ とにより相転移し、化学反応性が変化します。このように大気エアロゾルに対する水蒸気の作用はエア ロゾルが環境や気候に与える影響を評価する上で重要な役割を果たします。本レビューではこれらの 点に関して筆者の研究を踏まえながら議論したいと思います。

1. はじめに

まず最初に2016年度の大気化学研究会奨励賞を 頂いたことに対し,推薦してくださった先生方,これ までお世話になった共同研究者の方々,さらにこれ までに在籍した研究室の皆様方に感謝したいと思い ます。今後の研究においては,今回受賞対象になっ た研究を基に研究の幅を広げ,より広範な視野に立 った研究を行っていきたいと考えています。

今回受賞対象となった研究テーマは「大気エアロ ゾルに対する水蒸気の作用に対する研究」です。こ のテーマの中には私が(1)大学院生/博士研究員とし て行っていた雲凝結核特性の研究,(2)博士研究員 として行った二次有機エアロゾルの相に与える水蒸 気の影響に関する研究,(3)現在行っているバイオマ ス燃焼起源有機エアロゾルが持つ吸湿特性の研究 が含まれています。今回のレビューでは主に(1)と(2) の点を中心にまとめようと思います。

2. 背景

大気中での雲生成にエアロゾルが不可欠だという ことはAitkenにより19世紀に実証されました[Aitken, 1881]。Aitkenの実験では断熱膨張により生成した過 飽和雰囲気下での液滴生成を調べることにより,巧 妙に液滴(雲粒)生成におけるエアロゾルの重要性を

明らかにしています。Aitken により示された過飽和雰 囲気下での雲粒生成の理論的な説明は 1936 年に Köhler により与えられました[Köhler,1936]。Köhler 理 論によれば,エアロゾルの平衡水蒸気圧はケルビン 効果とラウールの効果の釣り合いにより決定されます。 ケルビン効果は表面張力による平衡水蒸気圧の増 大のことを指し、ラウールの効果は溶質の存在により 平衡水蒸気圧を減少させます。これら二つの相反す る効果は共にエアロゾルの直径に依存するため、エ アロゾルが持つ平衡水蒸気圧はある一定の直径に おいて最大値をとります。この平衡水蒸気圧に相当 する水蒸気飽和度を臨界過飽和度と呼びます [Seinfeld and Pandis, 2006]。エアロゾルは臨界過飽 和度を越す水蒸気雰囲気下に曝されると水蒸気が 存在する限り水を吸い続けることが可能となるため雲 粒へと成長します。このように雲粒へと吸湿成長する ことが可能なエアロゾルのことを雲凝結核と呼びます。 一方,臨界過飽和度以下の水蒸気飽和度において はエアロゾルの吸湿成長はその平衡蒸気圧によって 決定されます。一般に水溶性成分を含む量が多い 粒子の方がラウールの効果が強く働くために臨界過 飽和度が低くなり,吸湿特性が高くなります。従って, 粒子直径が大きく,水溶性成分の割合が大きなエア ロゾルの方が雲凝結核として機能しやすいということ

になります。

ラウールの効果の大きさを決定する上で重要な水 溶性成分(溶質)としては,長らく硫酸塩等の無機物 のみが考えられてきましたが,1990年代の中ごろから 実験・観測・理論的な研究により有機物の重要性が 明らかになってきました[Novakov and Penner, 1993; Saxena et al., 1995; Cruz and Pandis, 1997]。そして, 2000年代半ば以降に行われた研究により,室内実 験により生成された二次有機エアロゾルや大気中に 存在する有機エアロゾルが持つ雲凝結核特性や吸 湿特性が詳細に調べられるようになってきています [Hartz et al., 2005; VanReken et al., 2005]。

さらに近年は有機エアロゾルの可塑剤としての水 の役割が注目されるようになっています。二次有機エ アロゾルがガラスの様なアモルファス固体となるという ことが 2010 年に Virtanen らにより発見されました [Virtanenet al., 2010]。固体と液体では化学反応が生 じる場としての性質が大きくことなるため、この発見を 機として二次有機エアロゾルの相に関する研究が盛 んに行われるようになってきました[Koop et al., 2011]。 それらの研究の中で豆腐や寒天の硬さが含水量によ って徐々に変化するように、二次有機エアロゾルの粘 性も吸湿に伴い低下するということが明らかになって きました[Shiraiwa et al., 2011]。

エアロゾルが持つ吸湿特性や雲凝結核特性が重 要である理由はいくつかありますが,幾つか主要なも のを挙げると

(1) 間接効果・直接効果を含む放射影響

(2) エアロゾルの湿性沈着

(3) 化学反応性

があります。

雲が太陽光を散乱し地球のアルベドに影響を与え るということは古くから知られていましたが,近年増 加している人為起源エアロゾルが雲生成に与える可 能性は 1974 年に Twomey により初めて指摘されまし た[*Twomey*, 1974]。Twomey は人為起源のエアロゾ ルが増大すると雲凝結核の数濃度が増え,雲の光学 的特性が変化するために地球のアルベドが増大する であろうと考察しています(間接効果)。気候変動を評 価する上での間接効果の重要性はIPCC第1次評価 報告書(1990)から第5次評価報告書(2013)に至るま で一貫して強調されています。それと同時に雲微物 理過程や雲凝結核個数濃度の正確な見積もりの困 難さのため,間接効果は気候変動の将来予測を行う 上での最大の誤差要因だと考えられています。とりわ けエアロゾル化学成分や粒子直径と雲凝結核特性 の関係は今世紀初頭の段階では観測的な知見があ まりありませんでした。

雲凝結核として機能する粒子の大多数は 1µm 以 下の比較的小さな直径を持つので, 主に降水に伴う 湿性沈着過程により大気中から除去されます。例え ば太陽光を吸収し大気を加熱することが知られてい る黒色炭素(black carbon, BC)粒子は主に湿性沈着 により除去されます[Chung and Seinfeld, 2002]。BC 粒子はグラファイト様の構造を持つことからも明らかな ように非水溶性であり、単体で大気中に存在する際 には雲凝結核として機能しません。しかし BC 粒子に は大気中に滞在する間に硫酸塩や水溶性有機物と いった物質が凝縮・凝集します。そして水溶性成分と 内部混合した BC 粒子は雲凝結核として機能するた め、降水を伴う雲過程において大気中より除去されま す。このように BC 粒子の変質過程を実験的・観測的 な手法で解明していくことは重要なのですが,これは 技術的にチャレンジングなテーマです。

低相対湿度でガラスのような固体のエアロゾル粒 子は気相に存在する物質と表面で化学反応を起こ すものの,気相物質をエアロゾル内部に取り込むこと ができないために粒子相での反応が起きません。一 方液体として存在する粒子の場合,気相物質が粒子 内部にまで拡散していくことが可能となるため,粒子 内での化学反応が起こります[Ravishankara, 1997]。 従って,化学反応性は固体の場合に比べて格段に 高くなります。しかしながら,有機エアロゾルの化学的 組成は非常に複雑なので,このような実験を実際に 行うのは容易ではありません。以下では私のこれまで の研究の中でこれらの課題にどのように挑んできたの かをまとめたいと思います。

3. 雲凝結核特性と化学組成

上述したように, 雲凝結核特性はエアロゾルの大き さ(直径)と水溶性成分の割合に強く依存します。そ こでエアロゾルの大きさを選別して雲凝結核特性を 測定することができれば,化学成分(水溶性成分)へ の依存性に関する情報のみを取り出すことができる であろうと予想されます。しかしながら私が雲凝結核 の研究を開始した当初,このような手法は実験室レ ベルでは用いられていたのですが、大気観測に用い られた例は殆どありませんでした。そこで私の研究で は,エアロゾルの直径を選別し雲凝結核特性の粒径 依存性を自動的に連続測定する装置を開発しました。 そして,その装置を用いて韓国の済州島で大気観測 を行い,同時測定された化学成分と定量的な比較を 行いました。その結果, 硫酸アンモニウムをはじめと する無機水溶性成分や水溶性有機物の割合が実大 気における雲凝結核特性を決定する上で重要な役 割を果たしていることをはじめて観測的に明らかにし ました[Kuwata et al., 2008]。

この韓国済州島で行われた研究での最大の問題 点は水溶性有機物が持つ雲凝結核特性をどのように 推定するか,という点でした。そこで博士研究員とし て行った研究では水溶性成分のうち主要な部分を占 める二次有機エアロゾルが持つ雲凝結核特性を研 究することにしました。二次有機エアロゾルは連続流 型テフロンバッグチャンバーで生成し,その雲凝結核 特性を測定しました[Kuwata et al., 2011]。二次有機 エアロゾルが持つ化学成分は飛行時間型エアロゾル 質量分析計を用いて測定しました。エアロゾル質量 分析計のデータからは有機エアロゾルの炭素 – 酸素 組成比を推定しました。そして,組成比と雲凝結核特 性の関係を純物質のものと比較しました。その結果, α-ピネン由来の二次有機エアロゾルが持つ雲凝結核 特性は予想外に高いことが明らかになりました。この 点を定量的に理解するためにはα-ピネン粒子がどの ような相の粒子として存在するのかを明らかにするこ とが重要だと考えられます[Kuwata et al., 2013]。

4. BC 粒子の雲凝結核特性

BC 粒子が持つ雲凝結核特性は混合状態に強く 関連するものと予想されます。そのため, BC 粒子が 持つ雲凝結特性を精密に測定するには混合状態を 選別した粒子の化学組成と雲凝結核特性を同時に 測定することが重要になるものと考えられます。しかし ながら、このような測定手法というのは従来確立され たものがありませんでした。そこで私の研究では揮発 分離法による化学成分の測定と雲凝結核特性の測 定を組み合わせることにしました。揮発分離法では BCを含む粒子を、BCとそれ以外の化学成分に分離 することが可能となります[Kondo et al., 2009]。これら の測定を混合状態選別した粒子に対して行うため, 吸湿成長型タンデム微分型移動度分析器 (hygroscopicity tandem differential mobility analyzer: HTDMA),および微分型移動度分析器-エアロゾ ル質量分析器システム (differential mobility analyzer-aerosol particle mass analyzer system: DMA-APM)と結合しました。HTDMA は粒子が持つ 吸湿特性の差により混合状態を選別し、DMA-APM は粒子の電気移動度(× 1/粒子直径)と粒子質量と いう二つの量の組み合わせにより混合状態選別を行 います[Kuwata, 2015]。これらの手法を用いた観測の 結果,大気中の BC 粒子が雲凝結核として機能する ために必要な水溶性物質の質量を初めて定量するこ とに成功しました[Kuwata et al., 2007; Kuwata et al., 2009]。

5. 二次有機エアロゾルの相と水蒸気

二次有機エアエアロゾルの相は可塑剤としてして機 能する水の量により変化し、それに応じて化学反応 性変わることが予想されます。しかしながら、空気中 に浮遊しているエアロゾルの化学反応性を測定する のは技術的に容易でないため、二次有機エアロゾル が固体であることが発見された後でも実験的な証拠 は直には現れませんでした。

私の研究では二次有機エアロゾルへのアンモニア の取り込みを調べることにより、この問題への解答を 与えることを試みました[Kuwata and Martin, 2012]。 二次有機エアロゾルは多くのカルボン酸を含むため, アンモニアを取り込むことによりアンモニウム塩を形 成します。アンモニウム塩は高分解能エアロゾル質 量分析装置により NH⁺, NH₂⁺, NH₃⁺のフラグメントイ オンの形で明確に定量することができます。実験の 結果,低相対湿度(5%以下)では,気相のカルボン酸 とアンモニアは反応して塩を生成するものの, エアロ ゾルへのアンモニアの取り込みは起こらないことがわ かりました。一方,90%を越えるような高相対湿度条 件化ではアンモニアが二次有機エアロゾルに取り込 まれていく様子を観察することができました。さらに取 り込まれたアンモニアがカルボン酸との塩を形成する のみでなく、炭素-窒素結合を生成することが分かり ました。この実験結果は二次有機エアロゾルの化学 反応性が相に依存することを初めて実証したものに なります。

6. おわりに

現在, 我々の研究室では東南アジアで発生する 泥炭火災により引き起こされるヘイズの研究を行って います。エアロゾルの吸湿性はヘイズが気候や環境 に与える影響を評価する上で非常に重要な情報な ので, 泥炭火災起源物質の研究の一環として研究し ています。泥炭火災を含むバイオマス燃焼により排 出されるエアロゾルの場合, 化学成分の主要な部分 を有機物が占めるために有機物が持つ吸湿性をより 定量的に理解することが重要になってきます。過去 20 年間の研究により有機物が持つ吸湿性や雲凝結 核特性を測定することは比較的容易に行えるように なってきたのですが, 測定結果を定量的に理解する ためにはまだ多くの困難があります。 今後の研究で はこの点に関してより理解を深めるためのアプローチ を考案していきたいと思っています。

また、今後の研究においてはエアロゾルに対する 水蒸気の作用のみに拘らず、隣接する重要な研究テ ーマにも手を伸ばしていきたいと考えています。例え ば雲凝結核個数濃度に関する理解を深めるために は粒径分布や混合状態に関する知見が不可欠です が、これらは定量的に理解するのはなかなか大変な 研究テーマです。エアロゾルの生成や変質過程と吸 湿特性の関係に関する理解を深め、土地利用変化 や産業の発展に伴う大気における化学過程の変化 を関連付けることにより、将来の気候や大気質を予測 する上で重要な過程を浮き彫りにしていくことに貢献 することができればと考えています。

7. 参考文献

Aitken, J. (1881), Dust, fogs, and clouds, Nature, 23, 384-385.

- Chung, S. H., and J. H. Seinfeld (2002), Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols, J. Geophys. Res., 107, 4407.
- Cruz, C. N., and S. N. Pandis (1997), A study of the ability of pure secondary organic aerosol to act as cloud condensation nuclei, *Atmos. Environ.*, 31, 2205-2214.
- Hartz, K. E. H., et al. (2005), Cloud condensation nuclei activation of monoterpene and sesquiterpene secondary organic aerosol, J. Geophys. Res., 110, D14208.
- Köhler, H. (1936), The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets, *Trans. Faraday Soc.*, 32, 1152-1161.
- Kondo, Y., et al. (2009), Stabilization of the mass absorption cross section of black carbon for filter-based absorption photometry by the use of a heated inlet, *Aerosol Sci. Technol.*, 43, 741-756.
- Koop, T., J. Bookhold, M. Shiraiwa, and U. Poeschl (2011),Glass transition and phase state of organic compounds:dependency on molecular properties and implications for

secondary organic aerosols in the atmosphere, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13, 19238–19255.

- Kuwata, M. (2015), Particle classification by the tandem differential mobility analyzer- particle mass analyzer system, *Aerosol Sci. Technol.*, 49, 508-520.
- Kuwata, M., Q. Chen, and S. T. Martin (2011), Cloud condensation nuclei (CCN) activity and oxygen-to-carbon elemental ratios following thermodenuder treatment of organic particles grown by alpha-pinene ozonolysis, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13, 14571-14583.
- Kuwata, M., et al. (2008), Cloud condensation nuclei activity at Jeju Island, Korea in spring 2005, Atmos. Chem. Phys., 8, 2933-2948.
- Kuwata, M., Y. Kondo, M. Mochida, N. Takegawa, and K. Kawamura (2007), Dependence of CCN activity of less volatile particles on the amount of coating observed in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, 112, D11207.
- Kuwata, M., Y. Kondo, and N. Takegawa (2009), Critical condensed mass for activation of black carbon as cloud condensation nuclei in Tokyo, J. Geophys. Res., 114, D20202.
- Kuwata, M., and S. T. Martin (2012), Phase of atmospheric secondary organic material affects its reactivity, *PNAS*, 109, 17354-17359.
- Kuwata, M., W. Shao, R. Lebouteiller, and S. T. Martin (2013), Classifying organic materials by oxygen-to-carbon elemental ratio to predict the activation regime of Cloud Condensation Nuclei (CCN), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5309-5324.
- Novakov, T., and J. E. Penner (1993), Large contribution of organic aerosols to cloud-condensation-nuclei concentrations, *Nature*, *365*, 823-826.
- Ravishankara, A. R. (1997), Heterogeneous and multiphase chemistry in the troposphere, *Science*, 276, 1058-1065.
- Saxena, P., L. M. Hildemann, P. H. McMurry, and J. H. Seinfeld (1995), Organics alter hygroscopic nehavior of

atmospheric particles, J. Geophys. Res., 100, 18755-18770.

- Seinfeld, J. H., and S. N. Pandis (2006), *Atmospheric chemistry* and physics, second ed., 1203 pp., Wiley-Interscience.
- Shiraiwa, M., M. Ammann, T. Koop, and U. Poeschl (2011), Gas uptake and chemical aging of semisolid organic aerosol particles, *PNAS*, 108, 11003-11008.
- Twomey, S. (1974), Pollution and Planetary Albedo, *Atmos. Environ.*, 8, 1251-1256.
- VanReken, T. M., N. L. Ng, R. C. Flagan, and J. H. Seinfeld (2005), Cloud condensation nucleus activation properties of biogenic secondary organic aerosol, *J. Geophys. Res.*, *110*, D07206.
- Virtanen, A., et al. (2010), An amorphous solid state of biogenic secondary organic aerosol particles, *Nature*, 467, 824-827.

原稿受領日: 2016 年 12 月 9 日 掲載受理日: 2016 年 12 月 12 日

著者所属:

1.南洋理工大学 シンガポール地球観測所

* 責任著者:

Mikinori Kuwata <kuwata@ntu.edu.sg>

全球大気輸送モデル NICAM-TM を用いた二酸化炭素の フラックス解析に関する研究

丹羽洋介1*

1. はじめに

この度は日本大気化学会奨励賞を頂き,大変光 栄に存じます。この受賞の対象となる研究は、私が東 京大学気候システム研究センター(現大気海洋研究 所)に修士の学生として進学した時から始めて,現在 に至るまで一貫して行ってきたもので,今回それを評 価して頂き,大変嬉しく思っております。

まず、この研究テーマを与えて下さった大学院時 代の指導教官、今須良一先生に心より御礼申し上げ ます。また、研究を進めていくなかで様々な場面で多 くの方々に大変お世話になりました。特に NICAM (Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model) と CONTRAIL (Comprehensive Observation Network for TRace gases by AIrLiner) というモデルと観測の 二つの大きなプロジェクトに学生の頃から関わること が出来たことは、とても幸運でした。本稿ではまず、 CO₂ のインバージョン解析というものについてご説明 した後、NICAM と CONTRAIL のそれぞれについて、 私が行った研究をご紹介したいと思います。

2. 二酸化炭素のインバージョン解析

ご存じの通り、CO₂は主要な温室効果ガスであり、 人間活動、特に化石燃料の消費によって、大気に放 出されています。しかし、人間活動によって放出され た CO₂の約半分しか大気中に残存していないことが 大気の濃度観測からわかっており、残りの半分は陸 域植生や海洋に吸収されていると考えられています。 しかし、陸域植生や海洋は、一様に CO₂を吸収して いるわけではなく、場所・季節によっては放出もして おり, 地表面でのCO₂フラックスは時空間的に非常に 不均一なものとなっています。しかし, これらの定量 的な推定には不確定性が大きく, また, 変動メカニズ ムの理解が十分ではないために, 地球システムモデ ルによる温暖化予測では, モデル間に大きなばらつ きが生じているのが現状です。

この CO2 フラックスを推定する手法の1つにインバ ージョン解析があります。この手法は、大気 CO2 濃度 の観測データからフラックスの時空間変動を推定す る手法で, 地表面フラックスと大気濃度を繋ぐために 大気輸送モデルを用いるシミュレーション解析です。 インバージョンとは逆問題を解く(実際の物理現象の 方向-地表面から大気中へ-とは逆に向かって問題 を解く)という意味です。CO2のインバージョン解析は, 一般的な逆問題と同様に,観測データの数が知りた いパラメータ数よりも少なく, 先験情報を与えなけれ ば安定的に解が求まらない不良設定問題となってい ます。この様なインバージョン解析において,その精 度を決めるポイントは大きく分けて3つあります。1つ 目は先験情報の与え方,2つ目は大気輸送モデル の精度、そして3つ目は、どれだけ観測データを多く 与えられるか,です。私が行ってきた研究は、この後 者の2つにあたります。

3. NICAM-TM

私が大学院にはいって修士論文のテーマとして与 えられたのが、「インバージョン解析のための大気輸 送モデルの開発」でした。今須先生曰く、"インバージ ョン解析を行うにあたって、モデルをブラックボックス

としていては駄目だ。自分で作りなさい"、と。モデル を一から作るとはいえ,既に国内外の研究機関で 様々な大気輸送モデルが開発されている中で,どう すれば something new を出すことが出来るかと、一人、 悶々と考えながらモデルの勉強をしていたところ,出 会ったのが NICAM です。NICAM は全球超高解像 度シミュレーションを目的として開発された大気モデ ルで,従来のモデルとは異なり,正20面体格子を採 用した次世代型のモデルです[Satoh et al., 2014]。こ の NICAM をベースとして大気輸送モデル NICAM-TM(NICAM-based Transport Model)の開 発に着手しました。次世代型というだけで目新しさは ありましたが、NICAM は CO2のような長寿命気体の シミュレーションにとって大きな利点ももっていました。 それは質量保存性で,従来型のモデルで必要とされ ていた質量補正を使わずとも、物質の質量を完全に 保存することが出来たのです。これが、 NICAM を使 う大きな動機になりました。

CO2の大気輸送は基本的にシンプルな移流拡散 であり,エアロゾルや短寿命気体にあるような複雑な プロセスはありません。そのため、モデルの大きな不 確定性要素であるパラメタリゼーションも多くはありま せん。しかし, モデル間のばらつきは大きく, モデル 誤差がインバージョン解析へ与えるインパクトは無視 できないことが,国際的な大気輸送モデル相互比較 計画 TransCom(Atmospheric Tracer Transport Model Intercomparison Project) での研究で明らかになって いました[Gurney et al., 2002]。なぜ、シンプルな移流 拡散なのに, モデル間のばらつきがそんなに大きい のか?ある著名な気象学者が TransCom の結果をみ てそう質問していたことを思い出します。それは,私 たちが注目している濃度変動が非常に微小であり, また、シンプルが故にちょっとしたことで影響が見え てきてしまう(ごまかしが効かない),からだと私は思っ ています。従来型モデルにある質量補正も、この"ち よっとしたこと"の一つになり得ます。

さて、NICAM は質量保存性があるとはいえ、まだ

改良の余地がありました。それは移流スキームで、物 質の輸送に適した単調性(負値/擬似的な振動がで ない性質)のスキームにする必要がありました。そこで 三浦裕亮さん(現東大)が正20面体格子用に開発さ れた単調性のある移流スキーム[*Miura*, 2007]を NICAM に実装することになったのですが、ここで空 気の移流とは独立に、しかし整合性(CWC: Consistency With Continuity)が保たれるような工夫を 施しました[*Niwa et al.*, 2011a]。NICAM チームの 華々しい(しかし、非常に大変な)超高解像度実験が 行われている中、一人、低解像度で黙々と(しかし、 気楽に)輸送実験を行っていた私にとって、この CWC 移流の開発は、ほんの少しだけ胸を張れる NICAM チームへの貢献です。

そうして開発した NICAM-TM をもって, TransCom の輸送比較実験に参加しました[Law et al., 2008; Patra et al., 2008]。開発を始めてから1年ほどでデー タ提出までしてしまっていたので, 今思うと, 冷や汗も のです。幸いにも TransCom での結果はまずまずで, ここで私は自信を得てインバージョン解析の方へと研 究を進めていき, TransCom のインバージョン比較 [Peylin et al., 2013]にも参加することができました。

4. CONTRAIL

上述のモデル開発からインバージョン解析までに 至る過程で多くの実験を行い、モデルの輸送性能の 評価をしてきました。六フッ化硫黄やラドンといった単 純な気体の輸送実験を行って観測データとの比較を 行いましたし、過去のモデル比較実験の追試を行っ たりもしました。また、日本では世界的にもユニークな CO₂ 観測網をいくつも持っており、これらの観測デー タを使った解析もさせて頂きました。この観測データ の一つが CONTRAIL[*Machida et al.*, 2008]のデータ です。CONTRAIL は民間の旅客航空機を使った温 室効果ガス観測プロジェクトで、日本ーオーストラリア 間のフラスコサンプリング装置(ASE: Automatic airSampling Equipment)による観測は 1993 年から [*Matsueda et al.*, 2002], 連続観測装置(CME: Continuous CO₂ Measuring Equipment)を使った全球 規模の観測は 2005 年から始まっており[*Sawa et al.*, 2012], 現在も継続して観測が行われています。

研究の初期の頃から,長期の上空のデータとして 貴重な ASE 観測との比較解析は行っていたのです が,私が博士課程2年の頃,国内の CONTRAIL デ ータを使っている研究者が集まる会合で, CME 観測 が充実してきたということで,いよいよ本格的にモデ ルを使った解析が出来ないか,という話が持ち上がり ました。"モデル解析なら,国内で複数モデルもある ことだし、マルチモデル解析がいいでしょう、誰か音 頭とってやりませんか?"。今須先生曰く、"若い人が いいでしょう",と。それを受けた CONTRAIL のプロジ ェクトリーダーである町田敏暢さんが、"丹羽さんやり ませんか?"。。。未熟な私は、まだ断る術を持ち合 わせておらず,このマルチモデル解析を主導すること になりました。JAMSTECの Prabir K. Patra さんの手 厚いサポートを受けながら,実験プロトコルを作成し, フラックスデータも整備して,各モデル研究者に実験 をして頂きました。おかげさまでCME観測によるデー タをふんだんに使って,3次元的な視点での詳細な モデル比較解析ができました[Niwa et al., 2011b]。ま たこの成果は,幸運にも4年に一度の国際 CO2 会議 の plenary セッションで発表することもできました。

気象研究所に就職してからは、いちデータユーザ ーではなく、プロジェクトメンバーとして CONTRAIL に関わることになりました。この頃には、海外の多くの 研究者が CONTRAIL データを使うようになっており、 いくつか CO₂ インバージョンの研究でも使われるよう になっていました。ただしこれらの研究はどれも、最 適化された濃度場を検証する独立データとして CONTRAIL データが用いられており、直接、インバ ージョン解析に入力されてはいませんでした。これは、 民間航空機による観測なのでしょうがないのですが、 データが時空間的に非常に不均一であることが理由 の一つです。そこで、なんとか CONTRAIL データを

直接,インバージョン解析に取り込めないかと考え, データを地域毎に分割し、カーブフィッティングによ るデータ補間・平滑化処理などを施して, NICAM-TM を使ったインバージョンシステムに入力 してみました。その試みは成功して,地上観測の空 白地域であり, 且つ, 対流活動が活発な南アジアや 東南アジアにおいて,フラックス推定の誤差を大幅に 減少させることが出来ました[Niwa et al., 2012]。また、 その推定された CO2 フラックスの季節変動が先験値 とは大きく異なることも示し、プロセス研究にとって有 用な知見を示すこともできました。さらに,この結果は, 国際的な炭素循環共同研究プロジェクト (GCP/RECCAP : Global Carbon Project/Regional Carbon Cycle Assessment and Processes) にも取り上 げてもらい、インバージョンとは異なるアプローチで得 られた推定値などとも比較が行われました[Patra et al., 2013; Ishii et al., 2014].

5. おわりに

私の研究はモデルづくりから始まって、やっと CO2 インバージョン研究のスタート地点に立てたかなとい うレベルかと自覚しております。先行する海外の研究 に追いつくために、今後はモデルだけではなくインバ ージョン手法の開発も行い[Niwa et al., 2016a,b],ま た、とかくモデルいじりに傾倒しがちな私ですが、あく までモデルは研究の道具であることを肝に銘じて、時 にはモデルから離れて観測データをじっくり眺めなが ら [e.g., Niwa et al., 2014]、インバージョン解析を軸 に様々なアプローチで炭素循環メカニズムの解明に 取り組んでいきたいと思っています。

繰り返しになりますが、多くの方々のご支援を得て ここまで研究を進めることが出来ました。今須先生、 また 佐藤正樹先生、富田浩文さんをはじめとする NICAM 開発チームの皆様、町田敏暢さんをはじめと するCONTRAILチームの皆様、気象研究所の上司・ 同僚である、松枝秀和さん、澤庸介さん、坪井一寛さ ん、さらに共同研究者の方々に、この場をお借りして 深く感謝申し上げます。今後ともご指導ご鞭撻のほど よろしくお願い申し上げます。

6. 参考文献

- Gurney, K. R., et al. (2002), Towards robust estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415, 626–630.
- Ishii, M., et al. (2014), Air–sea CO₂ flux in the Pacific Ocean for the period 1990–2009, *Biogeosciences*, *11*, 709–734.
- Law, R. M., et al. (2008), TransCom model simulations of hourly atmospheric CO₂: Experimental overview and diurnal cycle results for 2002, *Global Biogeochem. Cy.*, 22, GB3009, doi:10.1029/2007GB003050.
- Machida, T., et al. (2008), Worldwide measurements of atmospheric CO₂ and other trace gas species using commercial airlines, J. Atmos. Oceanic Technol., 25, 1744–1754.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue, and M. Ishii (2002), Aircraft observation of carbon dioxide at 8–13 km altitude over the western pacific from 1993 to 1999, *Tellus B*, *54*, 1–21.
- Miura, H., (2007), An upwind-biased conservative advection scheme for spherical hexagonal-pentagonal grids, *Mon. Wea. Rev.*, 135, 4038–4044.
- Niwa, Y., H. Tomita, M. Satoh, and R. Imasu (2011a), A three-dimensional icosahedral grid advection scheme preserving monotonicity and consistency with continuity for atmospheric tracer transport, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 89, 255–268.
- Niwa, Y., et al. (2011b), Three-dimensional variations of atmospheric CO₂: Aircraft measurements and multi-transport model simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 13,359–13,375.
- Niwa, Y., et al. (2012), Imposing strong constraints on tropical terrestrial CO₂ fluxes using passenger aircraft based measurements. J. Geophys. Res., 117, D11303, doi:10.1029/2012JD017474.
- Niwa, Y., et al. (2014), Seasonal Variations of CO₂, CH₄, N₂O

and CO in the Mid-troposphere over the Western North Pacific Observed using a C-130H Cargo Aircraft, J. Meteorol. Soc. Jpn., 92, 55–70.

- Niwa, Y., et al. (2016a), A 4D-Var inversion system based on the icosahedral grid model (NICAM-TM 4D-Var v1.0): 1. Off-line forward and adjoint transport models, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, doi:10.5194/gmd-2016-231, in review.
- Niwa, Y., et al. (2016b), A 4D-Var inversion system based on the icosahedral grid model (NICAM-TM 4D-Var v1.0): 2. Optimization scheme and identical twin experiment of atmospheric CO₂ inversion, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, doi:10.5194/gmd-2016-232, in review.
- Patra, P. K., et al. (2008), TransCom model simulations of hourly atmospheric CO2: Analysis of synoptic-scale variations of the period 2002–2003, *Global Biogeochem*. *Cy.*, 22, GB4013, doi:10.1029/2007GB003081.
- Patra, P. K., et al. (2013), The carbon budget of South Asia, Biogeosciences, 10, 513–527.
- Peylin, P., et al. (2013), Global atmospheric carbon budget: results from an ensemble of atmospheric CO₂ inversions, *Biogeosciences*, 10, 6699-6720.
- Satoh, M., et al. (2014), The Non-hydrostatic Icosahedral Atmospheric Model: description and development, *Progress in Earth and Planetary Science*, 1, 1–32.
- Sawa, Y., T. Machida, and H. Matsueda (2012), Aircraft observation of the seasonal variation in the transport of CO₂ in the upper atmosphere, J. Geophys. Res., 117, D05305, doi:10.1029/2011JD016933.

原稿受領日: 2016 年 12 月 9 日 掲載受理日: 2016 年 12 月 16 日

著者所属:

1. 気象庁気象研究所 海洋·地球化学研究部

*責任著者:

Yosuke Niwa <yniwa@mri-jma.go.jp>

AOGS 2016(第13回アジアオセアニア地球科学会年会) 参加報告

梅澤拓1*

ウサイン・ボルトがリオデジャネイロ五輪でまたして も圧倒的な力を見せつけて金メダルを獲得したことは まだ記憶に新しい。その彼にとって初めての五輪の 舞台は2008年の北京国家スタジアム(通称「鳥の巣」) であった。北京国家会議センターの大きな窓ガラスを 通してその「鳥の巣」をすぐそばに眺めれば,迫り来 るリオ五輪への期待とともに(AOGS 会議のその週末 にリオ五輪が開幕した),我々研究者にとっての晴れ 舞台の一つがこのような国際会議であることを思い, 改めて気を引き締める次第であった。

AOGS 2016(http://www.asiaoceania.org/aogs2016/) は、当然ながら開催地北京を色濃く反映していた。 私は Biogeosciences と Atmospheric Sciences 部門の セッションに参加したが、中国の研究機関の研究者、 あるいは中国出身で米国研究機関に勤める研究者 の発表が目立った。以下では、私自身が口頭発表を 行った二つのセッションを含めて個人的に興味深か ったことを紹介したい。

温室効果気体に係わる二つのセッション「Budgets Of Greenhouse Gases And Other Biogenically Active Species」と「Greenhouse Gases Emissions In Asian Terrestrial Ecosystems In A Changing World」(いずれ も Biogeosciences 部門)では、CO₂とCH₄を中心に大 気圏・水圏での温室効果気体の動態に関する幅広 い研究発表が行われた。中国にフォーカスした観測・ モデル研究が目立つ中で、マレーシアの研究者によ る二件のハロカーボン研究が新鮮味を加えていた。 前者のセッションは Prabir K. Patra 氏 (JAMSTEC)が 主コンビーナを務め、私もこのセッションにおいて、イ ンド・デリー上空の航空機観測から冬小麦を要因とす る CO₂ 濃度変動を見出した、という報告を行った。こ の日,個人的に印象に残ったのは、Y. Luo 教授(オク ラホマ大学)による特別講義である。ほぼ満員の熱気 に満ちた会場の聴衆に向けて、「炭素循環のあらゆ る研究者にとって最も重要な target quantity は何か?」 と彼は問い掛けた。研究分野の本質を立ち止まって 考えるための良い問いではないだろうか。

また、谷本浩志氏(国立環境研究所)が主コンビー ナを務めるセッション「Interaction Of Atmospheric Composition And The Asian Monsoon」(Atmospheric Sciences 部門)では、アジア各国で活発に展開されて いる大気汚染成分の観測・モデル研究が次々と紹介 された。この中で私も航空機観測で得られたアジア 上空の CO₂ 分布を紹介した。セッションを通して、ア ジアンモンスーンに伴う大気輸送の理解と排出源の 理解が並行して進展していることがよく実感できた。

公式サイトによれば, AOGS 2016 の参加者は約 3,000 人と, 地球科学の大会としては JpGU(約 7,000 人), EGU(約 13,000 人), AGU(約 24,000 人)などに は及ばない。しかし, ロ頭発表がポスター発表件数 を上回っており高い確率でロ頭発表できることや, 参 加者の 8 割を占めるアジア地域の研究者と比較的小 規模な会議の雰囲気の中で議論できるなどの利点が 十分にあり, アジア太平洋域の地球科学をリードす べき日本の科学者がこの会議においてもさらに重要 な役割を果たすべきだと感じた次第である。

著者所属:

- 1. 国立環境研究所
- * 責任著者:

Taku Umezawa <umezawa.taku@nies.go.jp>

QOS 2016 参加報告

長濱智生1*

英国・エディンバラの国際会議場にて 4 年毎オゾ ンシンポジウム(Quadrennial Ozone Symposium: QOS2016)が2016年9月5-9日の日程で開催され た。このシンポジウムは IUGG の特別委員会である国 際オゾン委員会(International Ozone Commission: IO3C)により4年ごとに開催され、成層圏・対流圏オ ゾン等,オゾン全般に関する研究と大気中のオゾン の現状について世界各国から 300 名以上の研究者 が5日間一堂に会して報告と討論が行われた。日本 からも 20 名弱の参加があり、5 つのセッション (Stratospheric Ozone, Tropospheric Ozone, Ozone Chemistry-Climate Interactions, Global Ozone Observations and Measurement Techniques, Effects of ozone on climate, human health, ecosystems and food production)でそれぞれ基調講演, 口頭発表, ポスタ ー発表が行われた。なお,発表資料の多くは QOS2016 のホームページ上で公開されている。 関心 のある方は、"QOS2016"で検索していただきたい。

まず20年来の成層圏オゾンの大きなテーマである 「南極オゾンホールからの回復傾向」の検出に関して, Solomon (MIT)は火山活動の影響を考慮すれば回 復しつつあることを観測データは示していると主張す る一方で, de Laat (KNMI)はオゾンホールを特徴づ ける量の多くには「有意」な回復の傾向は表れていな いとより慎重な主張を展開した。また, Strahan (NASA/GSFC)は2000年以降, 南極上空のClyとオ ゾンの経年変化が互いに独立性を強め, むしろ気温 変動の影響がオゾン変動に強く表れており, それが オゾンホールからの回復の検出を困難にしていること を示した。このテーマについてはもう少し推移を見守 る必要があるとの認識が支配的であった。

対流圏オゾンに関しては, Tropospheric Ozone Assessment Report (TOAR)の内容を中心に対流圏オ

ゾンのトレンドに関連した発表 (Cooper (U. Colorado/CIRES), Tarasick (Environment Canada), von Schneidemesser (Potsdam/IASS)など)がなされた。 また,気候変動との相互作用の面から,須藤氏(名古 屋大学)が対流圏オゾンと放射強制力の変動には CO が主要な役割を担い、その他の影響は局所的な 影響しか与えないとの明瞭なコンセプトの基調講演 を行った。また多くのセッションで観測データの品質 管理 (Quality Control: QC) と品質保証 (Quality Assurance: QA)の重要性とその取り組みについて発 表があった。トレンドの解析にデータ精度が与える影 響の評価では,現時点でのデータセットでは上部成 層圏以外では有意なオゾントレンドを得ることが困難 であることが指摘され、また QA/QC を効率的に実現 するプロジェクト,データの取得時からの QA/QC へ の配慮の必要性などが報告された。

最後に今回,2階建てバスが走りまわるエディンバ ラの街中(若干の刺激臭あり)でのQOS2016 に参加 して、「ひとつの時代が終わったのかな」という印象を 受けた。南極オゾンホールの発見に関わるFarmanの 名を冠した賞が IO3C によって新たに設けられ、シン ポジウムではオゾンホールからの(おぼろげながらの) 回復傾向が報告される一方で、オゾンシンポジウム で最初に南極上空のオゾン減少に関する報告を行 った忠鉢先生が欠席されていた。そのような状況が 上記の印象を与えたのかもしれない(と同時に、改め て大気汚染研究の重要性が身にしみました)。

著者所属:

- 1. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所
- * 責任著者:

Tomoo Nagahama <nagahama@isee.nagoya-u.ac.jp>

IGAC 2016 の参加報告

藤田遼*

2016年9月26日~30日にかけて、アメリカ・コロ ラド州ブレッケンリッジにて、IGAC2016が開催された。 ブレッケンリッジは、デンバー空港から車で2時間ほ どの距離に位置する標高約3000mもの小さな街であ り、冬は多くのスキー客で賑わう(写真)。会場となっ たBEAVER RUNは、総勢およそ600人もの参加者 を収容できる大きな会議場を内設したリゾートホテル であり、今回の参加者の多くは同ホテル内に宿泊し た、いわゆる合宿形式の学会となった。

今回の IGAC2016 では、1. Atmospheric Chemistry and Urbanization, 2. Atmospheric Chemistry, Ecosystems and Agriculture, 3. Atmospheric Chemistry and Energy, 4. Atmospheric Chemistry and Fundamental Studies, 5. Atmospheric Chemistry and Climate Change, 6. Atmospheric Chemistry: Observing Composition and Variability, という計 6 つのセッショ ンで構成されていた。筆者は第6 セッションにてポス ター発表を行った。5日間の日程で、口頭発表 66件, ポスター発表 367 件という非常に活気に満ちた議論 が展開された。筆者にとって特に印象に残ったのは、 初日の招待講演であったチリの環境副大臣 Marcelo Mena Carrasco 氏による, 実際の政策へのアウトプット を目的とした化学・気象予報モデルの使用に関する 発表であった。同氏は環境副大臣という立場でありな がら,同時に都市環境工学の専門家であり,現在チ リで問題となっている大気汚染被害に対して, 予報モ デルを改良することで数多くの成果を上げていた。 IGAC2016 全体の発表傾向としては、メタンやオゾン、 ブラックカーボンに代表される短寿命気候汚染物質 に関する観測・モデル研究や,衛星や地上観測を用 いた化石燃料資源の採掘現場での大気汚染物質の 排出量の定量化に関する研究,といったように,テー マとして実社会との関連が大きい発表内容の多さが



学会会場外の様子

比較的目に付いた。サイエンスとしての研究の質を 深めていくことは,研究者としてはある種当然の方向 性ではあるが,同時に現実社会における課題に対す る視点が加わってくることで,よりその研究に多面的 な厚みや新たな視点が出てくる場合もあると感じた。

筆者は、今回がはじめての国際学会への参加であった。偶然にも、同様にはじめて参加した国内学会が4年前に福岡で開催されたやはり合宿形式の大気 化学討論会であった。今回の IGAC2016 は、さすが に討論会のように世界各国の参加者がそれぞれ同 部屋で宿泊するような形式ではなかったものの、数日 間にわたって参加者が一つの会場で密度の濃い時 間を共有していたという意味では、4 年前の懐かしい 記憶を思い起こさせるものがあった。2 年後の IGAC2018 は、日本がコンビーナーとなり、高松市で 開催されることが既に決まっている。瀬戸内海を一望 できる高松シンボルタワー内の国際会議場にて、自 然豊かな景色を眺めながら各国研究者どうしが議論 に花を咲かせる光景を見られることが、今からでも待 ち遠しく思う。

著者所属:

東北大学大学院 理学研究科

*責任著者:

Ryo Fujita <ryo.fujita.t6@dc.tohoku.ca.jp>

東アジア大気環境の航空機観測を考える意見交換会か らの報告

林田佐智子1*,金谷有剛2

日本気象学会 2016 年秋季大会開催期間中の平 成 28 年 10 月 27 日,名古屋大学宇宙地球環境研究 所・飛翔体観測推進センターのセミナー室を借りて, 「東アジア大気環境の航空機観測を考える意見交換 会」を開催し,約 20 名の参加者があった。ここに記録 して報告する。

1. この会を開催した契機

近年,東アジアにおける大気質を対象とした航空 機観測キャンペーンが活発に行われている。 KORUS-AQ 2016はNASAと韓国が2016年5-6月 に共同で実施した航空機観測キャンペーンである。 飛行経路は韓国上空が中心であったが,6月10日 には九州上空に飛来した。2020年頃には再度航空 機観測計画が進行中であるが,内容はまだ未確定で, 今から参加意志を表明すれば測定器を搭載してもら える可能性がある。

一方, Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales (EMeRGe)はドイツの観測キャンペーン で 2018 年 2-5 月を予定しており, 東アジアをターゲットとしている。また Asian Summer Monsoon Chemical and Climate Impact Project (ACCLIP)は NCAR の Laura Pan 氏らが計画中のもので, まだ内容は不確定 であるが, 日本からの参加者を求めている。

このような趨勢の中で,海外の研究者から日本の 研究者には個別に協力の打診が行われているが, 日本国内で情報が十分に共有されていないため個 別対応になりがちで,オールジャパンの対応ができ ていないのが現状である。しかし,大局的に考えれば 対外的に日本の貢献が見えることが望ましい。今回 は海外航空機観測計画の情報提供を行うと共に,日本からのこのようなキャンペーンへの参加について今後の対応について議論することを目的として,上記のような会を開催した。

2. 東アジアの大気質観測を取り巻く背景一静 止衛星からの大気化学観測の時代へ

東アジアにおいて航空機観測が活発に行われる 背景として,この地域における大気汚染の深刻化に 加え,静止衛星からの大気化学観測計画が本格化 しつつある状況が挙げられる。韓国では,2018年か ら2機の静止衛星 KOMPSAT-2A および2Bを連続し て打ち上げ予定である。2019年3月には,大気化学 種の観測を行う紫外可視分光計 Geostationary Environment Monitoring Spectrometer (GEMS)を搭 載した KOMSAT-2B が打ち上げられる予定で,2016 年現在,着々と準備が進められている。図1に概要を 示す(韓国・Yonsei 大学 Jhoon Kim 氏提供のスライド から抜粋)。GEMS に触発されたかのように,アメリカ



図1 GEMSの概要



図 2 GEMS, TEMPO, Sentinel-4の観測予定

では NASA が Tropospheric Emissions: Monitoring of Pollution (TEMPO)をミッションとして決定し, 2018 年 11 月(以降)の打ち上げを目指している。また欧州 でも、同様の紫外可視分光計(UVN)が Sentinel-4 に 搭載され, 2021年頃の打ち上げが予定されている。 3 機がそろう頃には北半球の大気化学種の挙動が, 図 2 のように半球規模で時々刻々と監視される状況 になるであろう。特に GEMS は日本が観測視野に入 っており、日本としても無関係ではいられない状態で ある。この意味からも GEMS と密接に関連する航空 機観測キャンペーンへの日本の貢献は重要と考え る。

3. 各計画の詳細情報

(1) KORUS-AQ 2016は2016年5-6月にかけ、
 韓国上空において、NASAの航空機DC-8、LaRC
 King Air および韓国のHanseo大学King Airを使って行われた。

https://espo.nasa.gov/home/korus-aq/content/KOR US-AQ

から知ることができる。このサイトにリンクされているフ アイル(flightsummaries.pdf)から日々の飛行経路が確 認できる。その資料の24ページ目には2016年6月 10日,九州上空にDC-8が飛来したことが記されてい る。

KORUS-AQ 計画については、日本からは JAMSTEC の宮崎和幸氏がサイエンスチームメンバ ーになっており、筆者の一人である金谷らが福江で

の観測データを提供するなどして貢献した。また JAXA・佐賀大学などが運用している佐賀と,国立環 境研究所が運用している陸別の TCCON (Total Carbon Column Observing Network)サイトの検定の ための観測に関してJAXA塩見慶氏と環境研の森野 勇氏らも協力した。そのような経緯があり、2016 年 4 月27日にDC-8の韓国への機体輸送途中に北海道 道東の上空での観測が,また同年6月10日にDC-8 による福江・佐賀の上空での観測が実現した。しかし、 基本的には韓国と米国の共同観測であり、中国の人 為発生源やロシアの森林火災などからの越境汚染を 主な観測対象としたこともあり、日本上空の観測はご く限定されたもので終了になった。観測データの事 後解析に向けては,東アジア域を対象とした数値モ デルやエミッションインベントリ,現場・衛星観測利用 研究を合わせた貢献をすべく,日本国内においても 連携を強化している段階にある。一連の連携研究に 関心のある方は JAMSTEC の宮崎和幸氏 (kmiyazaki@jamstec.go.jp)までご一報頂きたい。

GEMS の打ち上がる時期に合わせて, KORUS-AQ 2020 が計画されているが,まだ未確定 の要素が多い。今から計画に参加していれば,航空 機に自分の測器の搭載も可能であるとのことである



図3 EMeRGe 航空機観測での観測フライト地 域計画

http://www.iup.uni-bremen.de/emerge/home /work_approach.html ${\tt L}{\tt y}_{\circ}$

(NASA, Jim Crawford 氏の談)。2020 年は日本から の貢献が外からも見える程度に活発になることを期 待したい。

(2) EMeRGe はドイツの HALO(High Altitude Long-Range) 航空機プラットフォーム(機体は Gulfstream G550)を用いた観測キャンペーンで, 2018年2-5月に日本から東南アジアにかけての飛行 を予定しており,中国大陸などの MPC(Major Pollution Centers)からの大気汚染物質の流出などを 観測ターゲットとしている。アジア大陸からの春季の 大気汚染物質の流出の計測を主目的として,台湾を 拠点に北側の日本に近い地域と,南側の東南アジア の地域を飛行することを予定している(図 3)。キャン ペーンの概要は

http://www.iup.uni-bremen.de/emerge/

から得ることができる(white paper が必要であれば著 者まで要請されたい)。航空機搭載予定のセンサー の一覧を表1に示す。これはすでに確定しており、日 本から測器搭載の余地はないが、地上観測やモデ ル解析で貢献してほしいというのがドイツの研究者側 の要請である(もちろん別の機体で実施される同時 期の航空機観測などは歓迎されるとのこと)。主なタ ーゲットはオゾン化学・エアロゾルであるが、CO₂、 CH₄ などの長寿命成分も総合的に観測される。現在、

Institution	PI	Gas/Parameter	Instrument / Model
Institute for Environmental Physics- University of Bremen (UB-IUP)	J.P. Burrows / M.D Andrés Hernández	HO ₂ +RO ₂	PeRCEAS
University of Wuppertal (BUW-IAU)	R. Koppmann / M. Krebsbach	VOC / carbon isotope ratios	MIRAH
Institute for Environmental Physics- University of Heidelberg (UH-IUP)	K. Pfeilsticker	O ₃ , NO ₂ , HONO, CH ₂ O, C ₂ H ₂ O ₂ , O ₄ , BrO, CIO, IO	mini-DOAS
	U. Platt / D. Pöhler	NO ₂ , CH ₂ O, C ₂ H ₂ O ₂ , H ₂ O, O ₄ , SO ₂ , IO, BrO, O ₃	2D/3D HAIDI
Forschungszentrum Jülich (FZJ-IEK-8)	B. Bohn	UV radiation, J(O ₃), J(NO ₂)	HALO-SR
Particle Chemistry - Department MPIC/ University of Mainz (JGU-IPA)	S. Borrmann / J. Schneider	Aerosol particle composition	C-ToF-AMS
Multiphase Chemistry Department MPIC- Mainz (MPIC)	U. Pöschl / M.O. Andreae	CCN, soot, aerosol microscopic properties	HALO-CCN
Institute of Meteorology and Climate Research, Karlsruhe Institute of Technology (KIT-IMK)	A. Zahn	O ₃ , 5-10 VOCs	FAIRO / HKMS
Institute of Atmospheric Physics, Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt (DLR-IPA)	H.Schlager / H. Ziereis /Y. Ren/D.Sauer	O ₃ , CO, CO ₂ , CH ₄ isotopes, PFC tracer	AMTEX / CATS / PERTRAS
		SO ₂ , HNO ₃ ,HONO, organic acids NO, NO ₂ , NOy PAN Fine aerosol	CI-ITMS AENEAS IPAN AMETYST
University of Bremen /Atmospheric Chemistry, MPIC Mainz (UB, MPIC)	M.Vrekoussis / A. Pozzer	Modelling	TM5/Flexpart/EMAC

表 1 EMeRGe 航空機観測で予定されている測定項目 http://www.iup.uni-bremen.de/emerge/home/halo_payload.html より。略語は記事末尾参照。

著者の一人である金谷が EMeRGe の日本での計画 のとりまとめ窓口となっているので, 関心のある方は 金谷(yugo@jamstec.go.jp)までご連絡頂きたい。参加 者には航空機観測データがオープンとなる。

(3) Asian Summer Monsoon Chemical and Climate Impact Project (ACCLIP)

上部対流圏下部成層圏(UTLS)の科学において, 夏のアジアモンスーン時期に,チベット高気圧に伴う 循環によって成層圏と対流圏の空気交換が生じてい ることが,大きな研究対象となっている。アジアにおけ る大量の大気汚染物質が成層圏まで流入しているこ とが示されている[e.g., Park et al., 2007; Randel et al., 2010]。これに関連して, Pan 氏は,夏のチベット高気 圧の東方,日本上空あたりにある小笠原高気圧によ る高気圧性循環があることに着目し,航空機計画を 立案した。現時点ではまだ申請準備段階であるが, 日本の研究者の協力が是非とも必要とされている。 関心の有る方は著者の一人林田か北海道大学の藤 原正智氏(fuji@ees.hokudai.ac.jp)までご一報頂きた い。

また,上記の他にも計画段階の航空機観測の情報があるが,随時情報を更新して大気化学会の会員 諸氏に伝達してゆきたい。

4. GEMS の進捗状況

最後に,韓国の静止衛星センサーGEMS につい て補足しておく。2016年10月10-12日に、ソウルの ヨンセイ大学でGEMSの科学者会議が行われた。毎 年10月頃の開催が恒例となっているが、今年は各観 測項目毎にATBD (Algorithm Theoretical Basis Document)が用意されて配布された。まだ初版で査 読中とのことではあったが、すべての項目に対し ATBDの著者は全員が韓国の研究者のみとなってお り、特に若手の執筆者が目立つ。米国で修行を積ん だ若手研究者が急速に台頭してきている様子に圧倒 された。上述の通り、GEMSの視野には日本も含まれ ており、日本周辺の大気質が静止衛星から常時観測 される状況になる。米国・欧州もそろって観測を開始 する頃には、大気化学分野の研究は一気に加速す るだろう。日本からも GEMS への参加を積極的に考 える時に来ているのではないだろうか。

5. 参考文献

- Park, M., W. J. Randel, A. Gettelman, S. T. Massie, and J. H. Jiang (2007), Transport above the Asian summer monsoon anticyclone inferred from Aura Microwave Limb Sounder tracers, J. Geophys. Res., 112, D16309, doi:10.1029/2006JD008294.
- Randel, W. J., M. Park, L. Emmons, D. Kinnison, P. Bernath, L. A. Walker et al. (2010), Asian Monsoon Transport of Pollution to the Stratosphere, *Science*, 328, 611-613, DOI: 10.1126/science.1182274.

略語一覧

- PerCEAS: Peroxy radical Cavity Enhanced Absorption Spectrometers
- MIRAH: Measurements of Stable Isotope Ratios in Atmospheric Trace Gases on HALO
- mini-DOAS: miniatured differential optical absorption spectroscopy instrument
- HAIDI: The Heidelberger Airborne Imaging DOAS Instrument
- HALO-SR: HALO-Solar Radiation instrument
- C-ToF-AMS: Compact Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer
- HALO-CCN: Cloud condensation nuclei (CCN) measurements with the HALO aircraft

FAIRO: Fast 10-Hz dry chemiluminescence detector for ozone

HKMS: HALO- Karlsruhe Mass Spectrometer

AMTEX: Atmospheric Trace Experiment

CATS: Klima-verträgliches Lufttransportsystem

PERTRAS: A perfluorocarbon tracer system

CI-ITMS: chemical ionization - ion trap mass spectrometer

AENEAS: AtmosphEric Nitrogen oxides mEAsuring System IPAN: Institute of Atmospheric Physics instrument AMETYST: Aerosol MEasuremenT SYSTem TM5: the global chemistry Transport Model, version 5 Flexpart: FLEXible PARTicle dispersion model EMAC: ECHAM/MESSy Atmospheric Chemistry Model

著者所属:

- 1. 奈良女子大学研究院 自然科学系
- 2. 海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野

* 責任著者:

Sachiko Hayashida <sachiko@ics.nara-wu.ac.jp>

2nd International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 開催報告

廣川淳1*, 森田明弘2, 猪俣敏3

2016 年 11 月 12 日から 14 日にわたり, 2nd International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols(大気エアロゾルに 関わる不均一反応国際ワークショップ)を茨城県つく ば市のつくば国際会議場にて開催致しました。大気 微量成分とエアロゾルとの気相一液・固相間不均一 反応は,二次有機エアロゾルの生成とエイジング,反 応性微量気体の生成・消失,エアロゾルの物理的な 性状変化に関わるため,気候変動や大気汚染に重 要な役割を果たしていますが,その理解は断片的で 十分とはいえません。室内実験,野外観測,モデル それぞれのアプローチからの情報を共有し,より包括 的な理解を進めることが必要となっています。

このような背景のもと、アジアにおける不均一反応 研究の現状を相互理解し,さらに発展させることを目 的として, 2015年8月に, 本ワークショップの第1回 が北京で開催され、今回がその2回目にあたります。 米国から Colorado 大学の Veronica Vaida 教授と Lawrence Berkeley 国立研究所のKevin R. Wilson 博 士をお招きして基調講演をお願いするとともに、日本, 中国(香港,台湾を含む),米国,スイス,シンガポー ルから 26 名の方にご講演いただきました。上記の 国々に加え、トルコからも含め総勢 48 名の参加者が ありました。今回は、実験的アプローチが困難なため 理解が遅れている凝縮相(特に液相)表面近傍での 反応過程に焦点を当て,大気化学の分野のみなら ず,界面分光,単一粒子測定,氷表面過程などの研 究に携わる物理化学,分析化学,低温科学など異分 野の研究者の方々にもご講演いただきました。他に も,二次有機エアロゾルや黄砂など無機粒子上での 不均一反応を含む幅広いテーマでご講演があり,活



参加者の集合写真

発な議論が交わされました。全講演後に行われた総合討論では、不均一反応の研究推進に向け日本で計画されている予算申請について説明がなされたのち、米国、中国での状況が報告され、議論されました。 最後に、北京大学の Tong Zhu 教授より、次回を中国にて開催することが提案されました。

本ワークショップは、公益信託分子科学研究奨励 森野基金、名古屋大学宇宙地球環境研究所、国立 環境研究所からご支援をいただきました。国立環境 研究所の皆様には、予稿集の印刷、会場の準備など ご援助いただきました。厚く御礼申し上げます。

著者所属:

- 1. 北海道大学 大学院地球環境科学研究院
- 2. 東北大学 大学院理学研究科
- 3. 国立環境研究所

*責任著者:

Jun Hirokawa < hirokawa@ees.hokudai.ac.jp >

JpGU-AGU Joint Meeting 2017 での大気化学セッション 開催のお知らせ

日本大気化学会では、1)地球惑星科学分野全体 に開かれた形で研究集会を実施すること、2)正式な 「学会」の場での発表を可能とすること、3)他分野と の交流を促進することを目的として、日本地球惑星 科学連合大会(JpGU-AGU Joint Meeting の前身)に おいて 2007 年から大気化学セッションを毎年開催し てきました。これまで当該セッションには口頭・ポスタ 一発表合わせて平均 50 件程度の申し込みがあり、 関連するセッションとともに 多くの発表と活発な議論 が行われてきました。

JpGUとAGUとの共同開催となるJpGU-AGU Joint Meeting 2017 においても大気化学セッションが採択 され,従来通り開催されることとなりました。以下,大 事な点を抜粋してお知らせします。

- セッション毎に発表使用言語を設定するようにな りました。大気化学セッションは「JJ」,すなわち、ポ スター・スライドの言語も口頭発表の言語も、英語 /日本語を発表者が選択可としました。広く学生 にも開けたセッションとする狙いがあります。
- 2) 参加者の日程確定を大幅に早めるため、ロ頭コ マ数は前年の投稿数を元に仮配分され、その後、 実際の投稿数により微調整されます。2017 年大会 の大気化学セッションは 2016 年大会の実績に基 づき4コマを既に獲得。なお、1コマは90分、ロ頭 発表 6 スロット(6件)に相当します。

本記事が公表される時点では、仮配分されたロ頭 コマ数をもとにした大気化学セッションの日程が公開 され、予稿原稿投稿受付が開始されていることと思い ます。上記の通り、2017年大会における投稿数は 2017 年だけでなく 2018 年大会のコマ数にも影響を 与えます。JpGU と AGU との共同開催となったことに よりセッション数は大幅に増加しました。このような状 況の中,日本大気化学会として,これまで以上に大 気化学に関連する研究を盛り上げるためにも,皆様 からの積極的な発表申込みをお願い申し上げます。

記

名称: JpGU-AGU Joint Meeting 2017 http://www.jpgu.org/meeting_2017/

日程: 2017 年 5 月 20 日(土)~25 日(木)

(うち,大気化学セッションは2日間程度)

会場:幕張メッセ国際会議場

(〒261-0023 千葉市美浜区中瀬 2-1) スケジュール:

2017 年 1 月 6 日, 予稿投稿·事前参加登録開始 2017 年 2 月 16 日 17:00, 予稿投稿締切 2017 年 5 月 8 日 17:00, 早期参加登録締切

(日本大気化学会 運営委員会(JpGU 担当:入江仁士,町田敏暢,谷本浩志,岩本洋子))

第 22 回大気化学討論会開催報告

長谷部文雄1*, 宮崎雄三2, 廣川淳1, 藤原正智1, 亀山宗彦1, 吉川久幸1

2016年10月12日~14日の日程で北海道大学工 学部フロンティア応用科学研究棟(鈴木章ホール,ホ ワイエ)を会場に第22回大気化学討論会を開催しま した。過去の地方での開催実績に基づいて参加人 数の目標を100-120人に設定し,交通の利便性と開 催経費の観点から北海道大学での開催を計画しまし た。学会会場としておなじみの学術交流会館は2年 前からの仮予約で埋まっておりましたが,幸い北海道 大学工学研究院の村尾直人先生のご協力を賜り,上 記会場を確保することができました。新しい建物であ ったことに加え,ゆったりとした講演会場と大きなスク リーンにはご好評を頂けたのではないでしょうか。最 終的に,一般81名,学生33名,計114名の方々に ご参加頂くことができました。全国各地からお越し頂 いた皆様にお礼申し上げます。

今回からロ頭発表にロングとショートの区別がなく なり、杉本敦子教授(北大)と能田淳准教授(酪農学園 大)による特別講演を除き、一律20分で計29件の発 表がありました。一方、ポスター発表は51件で、2日 間連続して掲示されたこともあり、ロ頭発表とともに活 発な議論が行われました。近年、学生発表のレベル



第22回大気化学討論会で学生優秀賞に輝い た方々。写真左から、H. M. Syedul Hoque さん、 坂田昂平さん、吉末百花さん、葛西光希さん、 Astrid Müller さん。右端は今村隆史日本大気化 学会会長。写真提供 坪井一寛さん



盛況だったポスターセッション

が向上しており、今回は5名の方が学生優秀賞に選 ばれました。今後のご活躍を期待します。

今回の大気化学討論会は、参加費が据え置かれ た一方で非会員の参加費が会員より1,000円高く設 定されました。これは学会の会員増を促す意図もあり ますが、いわゆる団塊世代の退職による学会員の減 少は多くの学会に共通する課題です。会員増を図り 学会を活性化するために、学会運営に対する会員の 積極的取組みが期待されています。

最後になりましたが、本討論会は、日本大気化学 会運営委員会、プログラム委員会の皆様のご協力な しには開催できませんでした。厚くお礼申し上げます。 運営委員会と実行委員会との役割分担の明確化や 引継ぎ体制の整備など解決の待たれる課題に取組 み、高松開催が決定した 2018 年 iCACGP/IGAC 合 同学会の成功に向けた一層の努力を皆様とともに誓 いつつ、以上、開催のご報告とさせて頂きます。

著者所属:

- 1. 北海道大学 地球環境科学研究院
- 2. 北海道大学 低温科学研究所
- * 責任著者:

Fumio Hasebe <f-hasebe@ees.hokudai.ac.jp>

日本大気化学会役員選挙の公示

1. 役員選挙について

日本大気化学会則の選挙細則に基づき下記の要 領で第10期(大気化学研究会からの期)運営委員会 役員を選出しますので,会員の皆さまのご協力をお 願い致します。2016 年度の会費を12月31日まで に納入したすべての正会員に選挙権と被選挙権が あります。ただし,例外として選挙細則第6条により, 会長及び運営委員選出の被選挙権を持たない方が 数名いるのでご注意ください(下記にお名前がありま す)。

2. 役員選出日程

- 2017 年 1 月 大気化学研究 36 号による公示(本 記事)と郵送による投票の開始
- 2017 年 2 月 24 日(金) 投票締め切り(選挙管 理委員会必着)
- 2017 年 3 月 開票・当選者の確定(その後, 電子 メールと大気化学研究 37 号によって結果公表)
- 2017 年 5 月 会員集会にて報告
- 2017 年 7 月 新運営委員会活動開始

3. 選挙要領

- 3. 選出役員数:運営委員会役員 10 名,および会長1名。
- 2. 投票の締め切り:2017 年 2 月 24 日(金)まで に選挙管理委員会へ必着のこと。
- 3. 投票用紙送付先: 〒305-0052 茨城県つくば市長峰1-1 気象研究所 海洋・地球化学研究部 澤庸介宛。
- 4. 投票方法:投票用紙に 6 名を連記(内1名は会長への投票)した後,投票用封筒に入れ,密封したうえで,さらに郵送用封筒に入れて送付する。
- 4. 選挙細則

- 第1条役員選挙の管理事務を行うため,3名の 委員を持って構成する選挙管理委員会を置く。
- 第2条 選挙管理委員会委員は,会長が運営委員より3名を委嘱する。委員長は互選とする。
- 第3条 選挙管理委員会は次の事業を行う。
 - 1. 選挙の公示
 - 2. 投票および開票に関する事務
 - 3. 投票結果の確認と当選者の確定
 - 選挙結果の運営委員会への伝達および会員 への公表
 - 5. その他選挙管理に必要な事項
- 第4条 選出すべき運営委員会役員およびその定 数は以下の通りとする。

会長1名,運営委員10名

- 第5条選出すべき運営委員会役員は,当該年度 会費を納入した全ての正会員同士の互選とし, 正会員は選挙に際して選挙権と被選挙権を有す る。
- 第6条 役員任期を2 期連続したものは被選挙権 を持たない。
- ただし例外として会長の選出については、会長を 2 期連続したもの以外の正会員は被選挙権を持 つものとする。
- 第7条 選出すべき運営委員会役員として,6名を 無記名投票する。この内1名を会長への投票と する。会長への投票数は,運営委員会役員の選 出のための得票としても数えるものとする。
- 第8条 当選者は得票数の多い順に選出され,得 票同数の場合は抽選によるものとする。
- 第9条副会長は選出された運営委員会役員によ る互選とする。
- 第 10 条 監事は運営委員会で,正会員の中のうち 運営委員以外から運営委員会で選出される。
- 2 監事は,再任は妨げないが,3 期連続して監事

になることはできない。

附則

 本会設立後の最初の役員選出選挙における第6 条の適用においては、設立前の大気化学研究会 の運営委員会役員を務めた期間も含めるものと する。

2. この細則は平成 26 年1 月1 日より実施する。

5. 第10期運営委員会役員選出に関する注意

会長に関しては,現在2期目の今村会長を除きす べての正会員(2016年度の会費を納入した方)に被 選挙権があります。

運営委員の選出に関しては、大気化学研究会時 も含め2期連続して役員をされている次の8名の方 (△印及び▲印)は、被選挙権をもちませんのでご注 意ください(注:▲のついた方は、会長としての被選 挙権はあります)。 なお第九期の運営委員会役員(委員会推薦の役 員を含む)は以下の通りです。

会 長:△今村隆史

副会長:▲松見豊

運営委員:入江仁士, 岩本洋子, 江波進一,

▲梶井克純, ▲澤庸介, ▲高橋けんし,

▲竹川暢之, ▲谷本浩志, 町田敏暢,

▲村山昌平, 持田陸宏 (50 音順)

(日本大気化学会 選挙管理委員会 (村山昌平(委員長),竹川暢之,澤庸介))

第12回日本大気化学会奨励賞の選考結果について

受賞者氏名:桑田幹哲(南洋理工大・Assistant Professor)

受賞研究課題名:大気エアロゾルに対する水蒸気の 作用に関する研究

受賞理由:大気エアロゾル粒子が空気中の水蒸気を 取り込む過程は,粒子の雲凝結核(CCN)としての働 きに結びついており,また,粒子が関与する化学反 応にも関係すると考えられる。この,粒子が CCN とし て作用する能力や,水蒸気の取り込みがもたらす効 果は,エアロゾル成分の組成や混合状態,相と関係 しており,それらの関係を理解することは,大気中に おけるエアロゾルの動態や役割を把握する上で重要 である。桑田氏は,大気エアロゾルに対するこれらの 水蒸気の作用に関して,野外観測や室内実験に基 づいた研究を行い,これまでに数多くの特筆すべき 成果を挙げている。

桑田氏は,揮発性解析用のタンデム DMA (VTDMA)や CCN カウンタなどを用いた都市(東京) の大気エアロゾルを対象とした研究により、大気エア ロゾルに含まれる黒色炭素粒子の雲凝結核能が凝 縮成分の存在とどのように結びついているのかを明ら かにした。また、東京および済州島における大気観 測に基づき、大気エアロゾルの雲凝結核能とその化 学組成・混合状態との関係について知見を得た。さら に,実験室で生成した二次有機エアロゾルや,有機 エアロゾルのモデル物質を用いて, 有機エアロゾル 成分の化学構造とその雲凝結核能の関係について も知見を得た。また、二次有機エアロゾル、モデル有 機エアロゾルに対するアンモニア曝露の実験に基づ き、水蒸気の取り込みに伴う有機エアロゾル相の変 化が,気相成分との反応性にどのように影響している のかを実験的に明らかにした。これらの研究成果は、 大気エアロゾル分野におけるトップジャーナルである

JGR 誌や ACP 誌等に掲載されており, 桑田氏の研 究成果は, 国際的に高く評価されていると判断できる。 なかでも, 有機エアロゾルの反応性と水蒸気の取り込 みの関係に着目した研究は, 米国科学アカデミーの 総合学術雑誌である Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America に掲載されており, その成果が極めて優れたもので あることを裏付けている。

なお, 桑田氏は, 東京大学で博士の学位を取得し た後, ハーバード大学における博士研究員としての 研究活動を経て, 現在はシンガポールの南洋理工 大学において Assistant Professor の職に就いている。 海外を研究活動の場として選び世界と伍して実績を 挙げている新進気鋭の研究者であり, 今後の活躍を 大いに期待することができる。

このように桑田氏は大気エアロゾルの雲凝結核能 や,吸湿と化学反応性の関係に関して,大気化学の 発展に大きく寄与する優れた成果を挙げている。以 上の桑田氏の業績は,大気化学の研究分野で特筆 されるべきものである。以上の理由により,日本大気 化学会運営委員会は桑田幹哲会員が同賞に値する ものと認める。

受賞者氏名:丹羽洋介(気象庁気象研究所・研究 官)

受賞研究課題名:全球大気輸送モデル NICAM-TM を用いた二酸化炭素のフラックス解析に関する研究 受賞理由:地球温暖化の主要因である二酸化炭素 (CO₂)の地球規模循環を解明する最も有効な手法の 一つとして,大気で観測された CO₂ 変動から全球大 気輸送モデルを用いてフラックスを評価するインバー ジョン解析法がある。しかしながら,モデルの輸送誤
差と観測データの不足により、評価されたフラックス には依然として大きな不確定性が存在している。

丹羽氏は、気象学分野において先進的な準一様 格子大気モデル NICAM の開発に早い段階から参 画するとともに、NICAM が有する高い物質保存性に 着目し、CO2 等の長寿命気体に最適な大気輸送モ デル(NICAM-TM)を独自に構築した。特に移流ス キームに力点を置き、大気輸送の誤差を軽減する改 良を加えた。このようにして開発した NICAM-TM の 有効性を調べるために,国際大気輸送モデル相互 比較計画 TransCom に参加し,海外のモデルと比肩 する優れた性能を有していることを明らかにした。さら に、国内において大気輸送モデルの相互比較プロジ ェクトを企画立案し、自らが主導して成功に導いた。 このプロジェクトでは、航空機観測によって得られた CO2データを用いて3次元的な視点からの詳細な比 較解析が世界で初めて行われ, NICAM-TM の輸送 性能の優位性が実証された。

もう一つの不確実性要因である大気 CO₂の観測デ ータの不足に対処するために,民間航空機を用いた 観測プロジェクト CONTRAIL に参画して取得データ の解析に貢献した。また,気象庁が西太平洋上で実 施している航空機観測のデータ解析を主導し,東ア ジア地域での発生源に起因した変動が,東方海上の 中部対流圏でも出現することを見出した。これらの観 測研究を通して,インバージョン解析に最適な航空 機観測データの処理と導入手法を確立した。さらに 丹羽氏は,CONTRAIL 観測と地上観測を組み合わ せたインバージョン解析を,世界に先駆けて実施し, アジア域における CO₂ フラックスの推定誤差を大幅 に減少させるとともに,当該地域における CO₂ フラッ クスの季節変動が従来の知見では説明できないこと を示した。

NICAM-TM によるインバージョン解析の結果は, 国際的なプロジェクト(GCP/RECCAP)にも取り上げら れ,重要な知見の一つとなっている。さらに, TransCom によるインバージョン解析相互比較や IPCC 第 5 次評価報告書にも貢献するなど, 国際的 枠組みのもとでの活動を積極的に推進している。最 近では, 温室効果ガス観測技術衛星 2 号(GOSAT-2) プロジェクトの推進にも尽力している。

このように丹羽氏は,高度な CO₂ フラックス評価シ ステムを独自に開発し,それをもとにして全球炭素循 環の理解向上に大きな貢献を果たした。以上の丹羽 氏の業績は,大気化学の研究分野で特筆されるべき ものである。以上の理由により,日本大気化学会運 営委員会は丹羽洋介会員が同賞に値するものと認 める。





桑田会員(左)と丹羽会員(右)

(日本大気化学会 運営委員会)

第37回日本大気化学会運営委員会議事録

日時: 2016年10月12日(水)19:00-21:00

- 場所:北海道大学工学部 フロンティア応用科学研 究棟 2 階 セミナー室
- 出席者:今村隆史,入江仁士,岩本洋子,江波進一, 澤庸介,高橋けんし,谷本浩志,町田敏暢, 松見豊,持田陸宏(以上,運営委員),廣川淳 (オブザーバー(第22回大気化学討論会実行 委員))
- 欠席者:梶井克純,竹川暢之,村山昌平(以上,運 営委員)

1)会計·会員報告

幹事の谷本委員より,会計の移転,会計,会員情報 について報告があった。名古屋で管理していた口座 はつくばに移転した。新入会員は例年より多く,手続 きの費用が発生しているが,国際文献社への支払い 金額はほぼ想定通りである。会員の半数近くが今年 度分の会費を未納であることが報告された。

2) 大気化学会奨励賞の報告

選考委員より,大気化学討論会の申込に合わせて例 年より早く選考を済ませたことが報告された。応募時 の提出物に業績リストを明示するための学会細則を 改訂する。副賞のメダルの在庫がなくなったため,来 年度に作製する必要がある。

3) 大気化学討論会の開催状況

大気化学討論会の開催状況について実行委員の廣 川会員より報告があった。今回は学会の方針により, 会員か非会員かによって参加費の金額に差をつけ た。発表は合計で82件であり,事前登録は104名で あった。学会と LOC との役割分担と引き続き体制に ついて課題があるので,改善策を作成中である。 4) 次回の大気化学討論会の開催地について 今村会長より複数の候補地が挙がっていることが報 告された。12月初めには決定することになった。

5) JpGU-AGU Joint Meeting 2017 の大気化学セッションについて

入江委員より報告があった。今回は土曜日からの6 日間になる。大気化学セッションは学生の敷居を下 げるために日本語使用を可とした。セッション以外で も大気化学会としてまとまれる場を作ることについて 検討することになった。

6) 学会誌「大気化学研究」について

高橋委員より報告があった。編集作業に予想以上の 労力と時間を費やしているので,改善策を検討中で ある。今期の編集委員によりさらに2回の発行を行う。

7)規約ならびに細則の改正について 今村会長より改定案が提示された。詳細は引き続く 審議することとなった。

8)役員選挙について

幹事の町田委員から報告があった。会費を納めた人 にだけ選挙権があるので,未納の会員に周知を徹底 する必要あるとの指摘があった。

9) 退会の手続について

谷本委員より報告があった。退会時に会費未納の会員に対する処置や除名手続きについてルールを決めておく必要がある。

10)事務局移転について 町田委員より説明があった。おおむね順調に移転で きているが,まだ試行錯誤の状態である。

11)学会ウェブサイトについて 岩本委員より報告があった。IGAC2018の HP と同じ ツールを利用して試作した。早期のニューアルを目 指している。

(日本大気化学会 運営委員会)

JpSAC news

日本大気化学会会員集会プログラム

日時:2016年10月13日(木)16:20-17:00 場所:北海道大学工学部 フロンティア応用科学研

究棟 鈴木章ホール

- 1) 今村会長より挨拶
- 2)規約・細則の改訂について
- 3) 事務局移転関係の報告
- 4)会計報告、会員報告
- 5) 大気化学討論会の開催状況について
- 6) JpGU 連合大会の大気化学セッション
- 7)大気化学研究誌について
- 8) Web ページの改訂について
- 9)学生優秀発表賞について
- 10) IGAC 関係報告
- 11)ドイツ航空機観測との協力について

(日本大気化学会 運営委員会)

大気化学研究 第36号 (2017年1月12日 発行)

編集兼発行: 日本大気化学会 編集委員: 高橋けんし(委員長), 澤庸介, 江波進一 連絡先: 〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局 電話: 03-5389-6237 FAX: 03-3368-2822 電子メール: jpsac-post@bunken.co.jp ホームページ: http://www.stelab.nagoya-u.ac.jp/ste-www1/div1/taikiken/

《本誌掲載著作物の転載を希望される方へ》 本誌に掲載された著作物を転載される場合は、上記までご連絡ください。無断での二次使用や勝手 な加工はお控えください。