

**大気化学研究会からのお知らせ**

中澤高清会長が紫綬褒章を受章  
 日本地球惑星科学連合 2010 年大会のお知らせ  
 第 24 回大気化学研究会運営委員会報告  
 大気化学研究会会員総会議事録  
 第 15 回大気化学討論会開催報告  
 大気化学研究会奨励賞: 2009 年度結果報告

**会員からのお知らせ・報告**

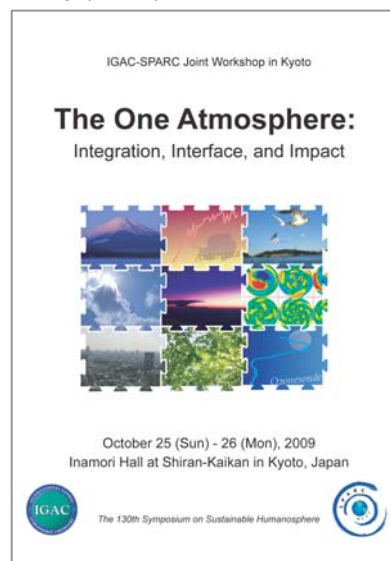
大気化学研究会奨励賞を受賞して  
 オランダでの MAX-DOAS 国際相互比較実験に参加して  
 IGAC/SPARC SSG/SSC 会議の報告  
 温室効果ガス観測技術衛星 GOSAT による CO<sub>2</sub> カラム  
 平均濃度の初期解析結果

**若手研究ショートレビュー**

データ同化手法を用いた感度実験  
 ブラックカーボンの混合状態を表現した数値モデルによる  
 エアロゾル光学特性・雲凝結核特性に関する研究

**海外研究通信**

若き大学院生のヨーロッパ



IGAC/SPARC ローカル WS のポスター

(海洋研究開発機構・金谷有剛氏が同・宮崎和幸氏の協力を得て作成)

## 大気化学研究会からのお知らせ

## 中澤高清会長が紫綬褒章を受章



本研究学会会長の中澤高清先生がこのたび「紫綬褒章」を受章されました。先生の功績は多岐にわたっていますので、この機会にその概略をご紹介します。

まず先生は、分子分光を専門とし、低温下における一酸化炭素の赤外線吸収を詳細に調べ、その温度依存性が従来の理論では全く説明できないことを見だし、経験的な温度依存性を提案しました。また、酸素の微弱な吸収帯や、高圧下におけるメタンや一酸化二窒素の赤外吸収帯についても数多くの実験を行い、これらの吸収特性を明らかにしました。

その後、先生は、地球温暖化問題の重要性に着目し、まず、二酸化炭素やメタン、一酸化二窒素などの温室効果気体の濃度と同位体比を世界最高レベルの精度で計測する技術を開発し、日本や南北両極域での地上基地観測を開始するとともに、航空機、船舶、大気球といった機動力を駆使した観測も展開し、地球規模での変動の実態を明らかにしました。また、対流圏から成層圏にかけての酸素の挙動を世界で初めて明らかにし、酸素変動の視点から近年の人為起源二酸化炭素の収支を推定しました。

先生はさらに、南極やグリーンランドで掘削された氷床コアに含まれる空気を抽出し分析することによって、過去における温室効果気体の変動を復元しました。特に産業革命以前の南北両極域のメタン濃度差を世界で初めて明らかにしたこと、酸素/窒素比を基にして深層氷床コアの絶対年代の決定法を確立したこと、深層氷床コアから過去35万年間の大気成分の変動を復元したこと、過去10万年間のメタン濃度の南北差の時間

変動を明らかにし、その原因を推定したことは、特筆すべき成果です。

先生は、全球炭素循環にとって重要な海洋にも注目し、観測船や商船などを利用して、海洋の二酸化炭素分圧や溶存無機炭素、その炭素同位体比、栄養塩等の観測を世界各地の海洋で実施し、二酸化炭素交換のプロセスの検討と大気海洋間の交換量の推定を行いました。

先生は、これらの観測的研究に加え、全球大気輸送循環モデルの開発とそれを用いた数値解析を実施し、二酸化炭素の放出・吸収量の変動をエルニーニョ現象や火山噴火に起因する気候変動の観点から詳細に明らかにしたことや、南大洋における二酸化炭素吸収、北半球および熱帯域の陸上生物圏による二酸化炭素吸収に関して、これまでの理解を大きく変える新たな知見を見いだしたことが特筆された成果となっています。

以上で述べたように、先生は、広範な研究を長期にわたって実施し、地球表層における温室効果気体の変動と循環の解明に貢献する多くの知見を得ており、その業績により、平成元年に日本気象学会賞、平成5年に山崎賞、平成8年に日産科学賞、平成14年に地球温暖化防止活動環境大臣表彰（学術部門）、平成19年に三宅賞、平成20年に島津賞も受賞されています。

(本記事は、大気化学研究会の会員を代表して東北大学理学研究科の青木周司先生にご執筆頂きました。大変おめでたいニュースに接することができ、ニュースレター編集幹事一同大変喜ばしく思っております)

## 日本地球惑星科学連合 2010 年大会

### 「大気化学」セッションのお知らせ



大気化学セッションコンビーナー

齋藤 尚子 (代表)、入江 仁士、持田 陸宏、小池 真、遠嶋 康徳

大気化学研究会では2007年度より、1)地球惑星科学分野全体に開かれた形で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、地球惑星科学連合大会において「大気化学」セッション(レギュラーセッション)を定期的に開催しております。これまでの「大気化学」セッションには、口頭・ポスター発表合わせて71件(2007年)、49件(2008年)、63件(2009年)の申し込みがあり、関連する「成層圏過程とその気候への影響(SPARC)」セッション(スペシャルセッション)とともに、多くの発表と議論が活発に行われてきました。

2010年の地球惑星科学連合大会では、サイエンスセッションの導入に伴い、従来のレギュラーセッション、スペシャルセッションの区別はなくなり、「大気海洋・環境科学」セッションの中のセッションとして「大気化学」と「SPARC」が採択され、右記の通り開催されることになりました。2010年大会においても従来と同程度またはそれ以上の規模での開催を目指したいと思います。

本ニュースレターが発行される時点では既に予稿原稿投稿受付が開始されていることと思います。「大気化学」および「SPARC」セッションを盛

り上げるためにも多くの投稿をお願い致します。特に各セッションへの時間配分は口頭発表への申込件数に応じて決定されますので、積極的に口頭発表としての投稿をお考えください。

記

名称: 日本地球惑星科学連合2010年大会

<http://www.jpгу.org/meeting/index.htm>

日程: 2010年5月23日~28日 (うち、大気化学および SPARCセッションは2日程度)

会場: 幕張メッセ国際会議場

[http://www.jpгу.org/meeting/outline01\\_general.html](http://www.jpгу.org/meeting/outline01_general.html)

予稿原稿投稿・参加登録: 連合大会ホームページよりオンライン投稿・登録

2010年1月12日、投稿・事前参加登録受付開始

2010年1月29日、投稿早期締切

2009年2月5日正午、投稿締切

2009年4月9日正午、事前参加登録締切

※ 上記のロゴはJPGU事務局の許可を得て掲載しております。

## 第 24 回大気化学研究会運営委員会報告

日時: 2009年10月20日(火) 19:00-21:00

場所: つば国際会議場 407号室

出席者: 中澤、植松、松枝、遠嶋、北、今村、小池、持田、齋藤、入江、中山(松見の代理)

### 議事内容

(1) 会員報告、会計報告(事務局)

#### 《会員状況》

一般 188 人(新規 2人 更新186人)

学生 45 人(新規 8人 更新 37人)

計 233 人(新規 10人 更新223人)

(参考)

平成20年度会員

一般 186 人(新規11人 更新175人)

学生 60 人(新規23人 更新 37人)

計 246 人(新規34人 更新212人)

平成19年度会員

一般 181 人(新規12人 更新169人)

学生 47 人(新規12人 更新 35人)

計 228 人(新規24人 更新204人)

#### 《会計状況》

大きな支出として IGAC/SPARC 国際ワークショップ補助金、IGAC 日本小委員会報告書印刷代がある。それ以外は、会員の会費で運営できている状況である。

(2) 大気化学討論会についての報告

松枝委員より報告があった(関連記事参照)。業者からの発表、展示および要旨集への広告の依頼があった場合の検討を行った。業者の営利目的の発表については、著しく研究会の目的に反さなければよいこととし、

基本的にはローカルコミッティで判断して、判断できない難しいものは運営委員会に持ち回り討議することとした。要旨集の広告については、要旨集を名大太陽研の研究集会の要録として発行しており、検討が必要であるとされた。また、行う場合には、業者に公平に案内を出す必要性が出された。

(3) ニュースレター発行について

入江委員から、2009年夏号の発行および2010年冬号(1月発行予定)について報告があった。

(4) 2010年連合大会での大気化学セッションについて

齋藤委員から取組状況の報告があった。議論の結果、SPARCセッションと連携し、連続希望を出すこと、大気圏・熱圏下部セッションとは日程がかぶらないようにすることにした。

(5) 大気化学研究会奨励賞について

選考委員より、選考の経緯が報告された。来年の奨励賞の募集は1ヶ月締め切りを早めて7月末にすることにした。

(6) 次回の大気化学討論会について

開催場所、担当者について議論した。候補を挙げて早急に決めることにした。

(7) 学会化について

学会化について議論を行った。今後も議論を進めていくことにした。

(8) 総会の議題の検討

## 大気化学研究会会員総会議事録

日時:2009年10月21日(水)17:00-18:00  
場所:つくば国際会議場 大会議室101号室

- (1) 2009年度奨励賞受賞者の発表 石戸谷重之氏(東北大)と宮崎和幸氏(JAMSTEC)。受賞者へ賞状・メダルの授与。宮崎氏は都合により欠席。
- (2) 奨励賞受賞者、石戸谷氏の記念講演

- (3) 中澤会長挨拶
- (4) 会員報告、会計報告 事務局より
- (5) ニュースレターの発行について
- (6) 大気化学討論会について
- (7) 連合大会での大気化学セッションについて
- (8) その他

## 第15回大気化学討論会開催報告

大会実行委員会委員長 松枝 秀和(気象研究所 地球化学研究部)

初秋の少し汗ばむ好天に恵まれた2009年10月20~22日の3日間、つくば市の国際会議場にて、第15回大気化学討論会を開催いたしました。3日間全体では、事前参加登録者143名に、当日参加者49名を加えて、計192名の方々にご参加いただきました。参加総数は前回の第14回大会(196名)とほぼ同じで、都市型・非合宿形式の大会としては標準的な規模となりました。

発表件数は、口頭が36件、ポスターが65件の計101件でした。発表内容は大気化学に関連する幅広い分野にわたりました。口頭発表のセッションを列挙すると、エアロゾル測定法、遠隔計測、OHラジカル、エアロゾル観測、大気-陸面物質交換、同位体比の大気化学への応用、衛星観測、東シナ海航空機観測、大気観測に基づく発生源解析、モデル研究で、様々な大変興味深い発表が続きました。いずれも最新の研究成果が盛り込まれ、活発な質疑応答が展開されました。日本の大気化学の着実な発展と今後の方向性が見えたことを強く実感しました。ポスター発表でも多岐にわたる力が入った成果が掲示され、ポスターの前では熱の入った討論が行われていたのが印象に残っています。第一日目のポスター会場にはビールや軽食を準備し、懇親を深める意味も込めてナイトセッション形式としました。用意したビールが余ったのは、参加者された方々が議論に熱中されていたためでしょうか。第2日の夕刻には、大気化学研究会会員総会に先立ち、奨励賞の授与式と受賞記念講演があり、益々の若手研究者の活躍に期待がもてました。

今回は「研究内容についてじっくり密な討論を行う」という討論会の趣旨に沿って、口頭・ポスター発表を効果的に組んでいただくようプログラム委員の方々尽力していただきました。そのお陰で、休憩の回数や時間をできるだけ多くとり、飲み物で一息入れながら、発表時間内だけでは足り

ない議論を多少なりとも補うことができたと思います。一方で、前回も指摘されていた、参加者1人あたりの平均滞在時間は今回も短かったようで、今後の課題となりました。

最後に、本討論会の開催に当たり、中澤会長をはじめ、要旨集印刷費・旅費の支給及び大会の準備をお世話くださった名古屋大学太陽地球環境研究所、大会運営費の補助をいただいた大気化学研究会に感謝いたします。今回の討論会は、気象研究所、国立環境研究所、産業技術総合研究所の3機関合同で開催し、多くの方々にお手伝いいただきました。改めて関係者の皆様にお礼申し上げます。



口頭発表の様子

## 大気化学研究会奨励賞: 2009年度結果報告

**受賞者:** 石戸谷 重之(東北大学大学院理学研究科・特別教育研究教員)

**受賞研究課題:** 成層圏における酸素濃度の変動および大気主成分の重力分離に関する研究

**受賞理由:** 大気中の酸素濃度(以下、 $O_2/N_2$ 比)は、地球規模における炭素循環の解明において極めて重要な情報をもたらす。このことから、近年、世界の地上観測地点において $O_2/N_2$ 比の測定が開始されるようになってきた。今後、さらにこの観測の拡大による炭素収支の解明が益々期待されている。

これまでの $O_2/N_2$ 比の観測のほとんどが地上ステーションを中心に行われており、対流圏の中部・上部から成層圏を含む上空の観測は極めて少なく、未解明の領域として残されていた。石戸谷重之会員は、東北大学大学院の頃から、 $O_2/N_2$ 比をパーメグ・オーダーの高精度で計測するシステムの開発に着手し、世界で最も精度の高い測定法の一つとして確立することに成功した。この高度な計測手法を航空機観測や大気球観測に適用して、自由対流圏から成層圏の $O_2/N_2$ 比の鉛直分布とその長期変化傾向を明らかにしてきた。

石戸谷会員の最も重要な研究成果は、成層圏大気において $O_2/N_2$

比と大気主成分 ( $O_2$ ,  $N_2$ ) の同位体比が重力場における拡散分離（いわゆる重力分離）の影響を受けていることを発見し、その結果を世界に先駆けて報告した点にある。大気科学の歴史の中で、分子や原子の質量数の違いによる気体成分の重力分離は、高度 100~120 km の乱流圏界面以上でしか起こらないとされてきた。しかし、石戸谷会員は高度 35 km 程度までの成層圏大気でも重力分離が検出されることを明瞭に示した点で、極めて重要な科学的進展をもたらしたと言える。また、様々な地域の成層圏大気試料についても解析を挙げ、日本、北極、南極の重力分離の違いや、極渦内部で重力分離が大きいことも明らかにしてきた。さらに、重力分離に対してより敏感なトレーサーである  $Ar/N_2$  比の超高精度分析法を確立し、その手法を用いて北極下部成層圏における重力分離の特徴を明らかにしてきた。

以上の通り、石戸谷重之会員は  $O_2/N_2$  比の超精密分析法の確立とそれを応用した上空の時空間分布とその変動の観測研究に一貫して取り組み、その成果は、成層圏大気における化学成分の循環過程の理解に新たな知見をもたらした貢献として、国内外で高く評価されている。よって同会員の業績は、大気化学研究会奨励賞に値するものと認められた。

**受賞者:** 宮崎 和幸 (海洋研究開発機構 地球環境変動領域・研究員)  
**受賞研究課題:** 全球規模の大気微量成分の分布及び輸送過程に関する研究

**受賞理由:** 大気微量成分の力学的変動は、等温位面を横切る非断熱循環による輸送過程と、大気波動による等温位面上の準水平的輸送・碎波に付随した非可逆的の渦混合過程とに大別される。これらを分離して評価することは、輸送過程による大気組成変動を定量的に理解する上で極めて重要である。また大気微量成分の時空間分布を、限られた観測値から大気場の特性を考慮してデータ同化を行うことで、

如何に精密な分布として再現するかは、今後ますます期待される分野である。

大気微量成分の力学的変動性を議論する際、断熱条件下では空気塊は等温位面上を動くこと（断熱保存性）を利用した温位座標系を用いることが有利である。しかしながら、温位座標系の現実大気への適用には数学的煩雑さを伴うことから、その応用はほとんどなされてこなかった。宮崎和幸会員は、等温位面上における帯状平均のもつ数学的煩雑さが質量の重みをかけることにより解消されることに着目し、共同研究者とともにこれを「温位面での質量重み付き帯状平均 (MM)」方程式系として定式化した。次に MM 方程式系を成層圏大気微量成分の全球構造の形成・維持過程の解明に応用することで、その有用性を実証した。さらに、MM 方程式系が下部境界条件の扱いにも優れている点に着目し、複雑な形状を持つ地表付近に排出源と吸収源を持つ対流圏組成変動の記述に応用することで、対流圏二酸化炭素の複雑な子午面輸送過程に関する地域的・季節的な特徴を明らかにした。

宮崎会員は同時に、大気微量成分のデータ同化にも精力的に取り組んできた。時空間的に限られた観測値を大気場の特性に応じて化学輸送モデルに取り込む local ensemble transform カルマンフィルターの適用により、長寿命の大気トレーサー成分の精密な全球分布の再現に成功した。急速な発展が予想されるこの分野における彼の研究成果は、地上観測・衛星観測を問わず、また、対流圏・成層圏の境界を越えて広く適用可能であり、大気微量成分の全球構造とその変動の理解に対する大気力学的側面からの顕著な貢献である。

以上の通り、宮崎和幸氏は大気力学の観点から大気組成変動の研究に一貫して取り組み、その成果は、理論・実践の両面から重要な貢献として国内外で高く評価されている。よって同会員の業績は、大気化学研究会奨励賞に値するものと認められた。

## 会員からのお知らせ・報告

# 大気化学研究会奨励賞を受賞して

石戸谷 重之 (東北大学 大学院理学研究科)



この度は大気化学研究会奨励賞を授与頂きましてありがとうございます。私自身は研究者としてはたいへんな未熟者ですので、率直に言いまして辞退させて頂くことも考えたのですが、本研究に関わる研究グループ全体をご評価頂いたものと考えまして、お受けしたいと考えています。と言いますのも、この研究の遂行には、私が所属する東北大学大気海洋変動観測研究センターと、宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部が中心となって1985年から長きにわたり継続してきた、大気球を用いた成層圏大気のクライオジェニックサンプリング実験の存在と、同サンプルの  $CO_2$  や各種温室効果気体の濃度、同位体比の高精度測定が既に可能になっているという条件が不可欠であったからです。

そのような恵まれた環境の中で、私は修士課程の時から課題として、人為起源  $CO_2$  のリザーバー間収支の定量化を目的とした、質量分析計を用いた  $O_2$  濃度の高精度測定装置の開発と大気観測への応用を行ってまいりました。装置の開発の段階から中澤清先生と青木周司先生にご指導を頂き、地上基地においてなんとか当初の目的の達成に必要な精度での観測ができるようになったため、研究室の観測ネットワークにより蓄積されている様々な試料を測定してみよう、と考えまして、航空機、船舶、極

域氷床上部のフィルン空気、海水平衡空気、土壌中空気、など、とにかく測れるものを全て測ってみたのですが、結果が思わしくなくて諦めたものもあり、まだ論文にまとめられていないデータが大半で、自分の力のなさを痛感しています。そのような中で、今回受賞対象になった成層圏のデータは、唯一、それなりの形にすることができた結果でした。また成層圏の観測そのものにも修士課程の時から参加させて頂いており、複雑なシステムをフィールドでの限られた時間で組上げて実験を成功させるための事前準備の重要性や、多くの方々がそれぞれの技術や知識などを集結して事にあたるチームワークの必要性など、研究を行う上で大切な多くのことを学ばせて頂いた、思い入れの深い観測です。

今回の研究の面白さはやはり、今まで高度 80 km 以上の高層大気では観測されないと考えられてきた大気主成分の重力分離が、成層圏でもわずかに生じており、それが  $O_2$  の濃度や、 $N_2$  や  $O_2$  の安定同位体を高精度で測定することで検出可能であるということを示唆したことにあると思います。その証拠にはまだ完全とは言えない部分があり、さらなる観測による検証が不可欠ではありますが、もし本当に成層圏でも重力分離が起きているということになれば、 $CO_2$  や  $O_2$  のように成層圏内で大きな生成・消滅

源を持たず、存在量に対する変動量が小さい成分には、その影響が無視できない程度に効いてくることになります。観測された重力分離の影響は、CO<sub>2</sub>濃度の場合には日本上空の高度35 km程度で0.6 ppm程度であり、CO<sub>2</sub>濃度から計算した空気塊の平均年代は重力分離を考慮しないと0.4年程度新しく評価されてしまうことになります。一方<sup>18</sup>O/<sup>16</sup>O/<sup>18</sup>N/<sup>14</sup>N比として測定したO<sub>2</sub>濃度の場合には同高度で重力分離の効果が270 per megも効くことになり、O<sub>2</sub>濃度から計算した空気塊の平均年代は重力分離のために約14年も古く評価されてしまうことになります。その他、CO<sub>2</sub>の炭素同位体にも重力分離の影響が現れていることが示唆されており、今後、成層圏大気微量成分の研究を行う上では必ず考慮しなければならぬ要素になるかもしれません。

さらに、観測された重力分離の程度が日本上空、極渦崩壊後の南極上空および極渦内の北極上空でそれぞれ異なっており、その傾向は、極渦内で高高度からの空気塊の沈降があると考えた場合と整合的だということが分かりました。この観測結果と、重力分離は高度の増加に伴いシグナルが強化されていくという特徴から、同一高度の2つの空気塊の重力分離の程度を測定すれば、その空気塊のどちらがより重力分離の進んだ高高度からその場に輸送されてきたものかが識別できることになります。このことは、25 km高度以上ではほぼ一定の値になると考えられている空気塊の平均年代などからは分からない情報であり、今後成層圏大気重力分離の時空間変動が現実的なモデルで再現できるようになれば、成層圏大気輸送の理解に新たな情報をもたらすのではないかと期待しています。

このように、私の本来のテーマである人為起源CO<sub>2</sub>の全球循環の解明という内容からは少し外れた内容ではあるものの、科学的には面白い結果を提唱できたのではないかと考えています。それにしましても、成層圏のデータのO<sub>2</sub>濃度分析を開始したのが1999年でしたので、それが2006年に論文として発表できるまでには7年の時間がかかったということになります。途中、体調を崩したりしたこともありましたが、何年かかっても結果が出てこない私の遅々とした研究活動を、忍耐強く指導下さり、また学位取得後も雇用を継続して下さい、自由に仕事をさせて下さった先生

方には深く感謝しております。そういう経験から一つ思うのは、仕事をする環境さえ許すなら、当初の研究目的から多少脱線し、すぐにはっきりとした結論が見えないデータでも、成果につながらないからと投げ捨てるとなくデータを蓄積して時間をかけて見ていくと、ある時点で何かが見えることもある、ということです。

もちろんいくら蓄積しても何も見えないデータもあると思いますので、それを瞬時に見分けて捨てるべきものは捨てるのもセンスだとは思いますが、私のようにそういう才能のない者にとっては、今回は結果として運よく使えるデータだった、としか言えません。何が言いたいのかと言いますと、現状の研究業界は安定雇用が難しく、短期間に成果を出すことを要求され続けるシステムになっていますが、それに余裕をもってついていける方は問題もないとしても、本当は、十分な時間をかけることではじめて大切な何かを見つけられるという人も多いのではないかとことです。そして、結局それでも何も見つからない可能性もあるとしても、今回結果として私のように明らかに鈍才の部類に入る者が受賞対象になったということからも、業績だけにこだわらず様々な人間を安定雇用して自由な発想を許しておくことが、トータルとして見た学問の進歩には実は有意義なのではないか、ということです。これから学問の道を志そうとする方々が、落ち着いた暮らしをしながら学問を楽しめるという安心した将来展望をもって勉学できるようになることを、心から願いたいと思います。

今回の受賞を励みに今後も研究を進め、微力ながら大気化学の発展に貢献していきたいと思っておりますので、未熟者ですが今後ともご指導、ご鞭撻のほど、何とぞよろしくお願い申し上げます。

- Ishidoya, S. et al. (2008), *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03811, doi:10.1029/2007GL030456.  
 Ishidoya, S. et al. (2008), *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03812, doi:10.1029/2007GL031526.  
 Ishidoya, S. et al. (2006), *Geophys. Res. Lett.*, 33, L13701, doi:10.1029/2006GL025886.  
 Ishidoya, S. et al. (2003), *J. Meteorol. Soc. Japan*, 81 (1), 127-140.

## 大気化学研究会奨励賞を受賞して

宮崎 和幸 (海洋研究開発機構 地球環境変動領域)



この度は、大気化学研究会奨励賞を授与頂き、ありがとうございます。これまでに取り組んできた研究成果を評価頂きましたことを大変嬉しく思うとともに、今後更に気を引きしめて研究に取り組んでいきたいと思っております。受賞対象である研究課題「大気微量成分の全球輸送過程に関する研究」は、私が東北大学大学院在籍時に岩崎俊樹先生の指導の下で始めました。まずは、成層圏オゾンの分布変動に対する大気輸送の効果を明らかにすることを目的として、大気力学の観点から新たな解析手法を提案し、3次元化学輸送モデルの結果に適用しました。海洋研究開発機構に異動した後は、対流圏での二酸化炭素の輸送過程を主な対象として、中澤高先生、秋元肇先生の指導の下で研究に取り組みました。本研究課題を進めるに際して、気象研究所の柴田清孝さん、関山剛さん、出牛真さん、海洋研究開発機構のノトラ・プラビールさん、滝川雅之さんからは様々なご助言と協力を頂きましたことに、感謝を申し上げたいと思います。

全球規模の大気微量成分の分布変動に対する大まかな理解は、子午面(緯度-高度断面)での輸送過程及び化学過程を調査することで得ることができます。これは、大気の流れは東西方向には非常に早く物質濃度

は均一になる傾向がある一方、ゆっくりとした運動ではあるが南北および鉛直の流れが大気微量成分の全球規模の平均的な分布変動に決定的な役割を果たすためです。大気境界層内部では局所的な大気循環が物質分布に重要な役割を果たしますが、自由対流圏および成層圏ではそのような考えを適用できます。子午面での輸送過程を調査することで、ある領域で発生した(生成または排出された)物質が、どのような大気過程によって異なる緯度・高度に達するのかを理解可能となります。子午面での大気輸送過程は、大気の平均的な運動である(ラグランジュ運動と呼ばれる)平均子午面循環と、大気波動による拡散の効果である渦輸送により駆動されます。従来の解析手法では、大気波動による拡散の効果を容易且つ厳密に算出できないこと、物質が排出される地面付近を含んだ一括した解析ができないこと、物質濃度収支が厳密には保存しないことなどが問題となり、全球規模の物質分布変動過程の厳密な理解を妨げていました。そこで、博士課程の研究では、独自の微量成分の子午面輸送を診断する手法として、質量重み付き帯状平均に基づく輸送方程式を用いた新たな手法を提案しました。この手法では従来の手法とは異なり、平均流輸送と渦輸送が明快に定義でき、渦輸送は断熱と非断熱の効果とに

明瞭に区別されます。更に、地面付近の解析も可能となり、二酸化炭素などの分布変動を調査する上で非常に有用です。3次元化学輸送モデルの出力に適用することで、化学過程による変動および小さなスケールの大気輸送過程(積雲対流や鉛直混合)による変動と併せて、大規模輸送過程が物質分布に及ぼす影響を調査しました。

成層圏オゾンは、放射過程を通して大気構造に重要な役割を果たすだけでなく、オゾンホールなど地球環境問題とも関連します。成層圏オゾンの分布変動に関する研究はこれまで数多く行われてきましたが、子午面での輸送については解析手法の制限から理解が妨げられている部分がありました。博士課程の研究では、独自の解析手法を提案・適用することで、対流圏と成層圏を含んだ輸送過程の厳密な評価を通して、オゾンのライフサイクルに関する詳細な理解が得られました。また、物質濃度勾配の変動過程を調査する新たな解析手法を提唱し、成層圏亜熱帯と極渦縁辺付近に存在する長寿命化学種濃度の急な南北勾配の変動メカニズムを調べる研究にも取り組みました。解析手法の背景にある大気力学の理論だけでなく、大気輸送過程、化学過程、化学輸送モデルの詳細など勉強することが多くありましたが、これらの研究を通して、各種解析に基づく複合的なものの見方と、その背景では理論に基づく基礎研究を進めることの重要性を、岩崎先生から(時にはお酒を交えて)教えて頂き感謝しております。

対流圏における大気微量成分の全球規模の変動過程も重要な研究課題です。特に、二酸化炭素の分布変動に関する情報は、その気候への影響や炭素循環過程を調査する上で重要です。その大気中での濃度分布は、人為的な排出に加えて陸面・海面との交換により大きく変動し、更に大気輸送効果との複合効果によって複雑に変動します。これまでに開発した輸送診断手法では、大気下部境界を正確に扱い、陸面・海面との交換過程と大気輸送による濃度変動を一貫して取り扱うことで、大気中の二酸化炭素濃度変動に対する統一的な理解が得られると期待できます。現実的な地表面フラックスを含む大気輸送モデルによる計算結果に適

用し、自由対流圏ではハドレー循環と中高緯度の極向きの直接循環に加えて、傾圧不安定波による混合によって二酸化炭素濃度の変動は鉛直・南北へと伝わること、地面付近では北半球・中高緯度で放出された二酸化炭素が赤道域へとゆつくりとであるが効果的に運ばれていることがわかりました。通常の3次元分布の解析からは、大気が東西に行き来する運動ばかりが目につき、このようなゆつくりとした平均的な運動が全球的な分布変動に及ぼす影響を調査することは難しいと思います。また、地表面過程および上空の輸送過程の総和として、航空機により上空で観測される二酸化炭素濃度の南北勾配の極大が亜熱帯および赤道域に形成される影響を明らかしました。今後はGOSATによる観測データを用いて二酸化炭素の濃度変動過程を更に調べていきたいと思っています。

最近では、数値モデルを用いた研究だけでなく、観測データと数値モデルによる情報を統合することで尤もらしい解を推定する大気微量成分のデータ同化システムの開発に取り組んでいます。今後は、(しばらくは横浜を離れて)各種衛星観測データを活用する研究を長期的に進め、大気化学研究に貢献できればと願っております。

#### 関連論文

- Miyazaki, K. and T. Iwasaki (2005), J. Atmos. Sci., 62, 1192–1208.  
 Miyazaki, K. et al. (2005), J. Geophys. Res., 110, D18309, doi:10.1029/2005JD005900.  
 Miyazaki, K. and T. Iwasaki (2008), J. Atmos. Sci., 65, 490–508.  
 Miyazaki, K. et al. (2008), J. Geophys. Res., 113, D15301, doi:10.1029/2007JD009557.  
 Miyazaki, K. and T. Iwasaki (2008), J. Atmos. Sci., 65, 3989–4003.  
 Miyazaki, K. et al. (2009), J. Geophys. Res., 114, D03306, doi:10.1029/2008JD010545.  
 Miyazaki, K. and T. Iwasaki (2009), SOLA, 5, 009–012, doi:10.2151/sola.2009-003.

## オランダでの MAX-DOAS 国際相互比較実験に参加して

入江 仁士 (海洋研究開発機構 地球環境変動領域)

近年、人工衛星による対流圏大気組成観測が行われ、わたしたちに大気汚染の現状を示してくれている。例えば、対流圏 NO<sub>2</sub> カラム濃度については、GOME, SCIAMACHY, OMI, GOME-2 のデータが利用可能である。これらのセンサーは紫外可視域をカバーするが、その領域で NO<sub>2</sub> は最も導出し易い対流圏微量気体である。しかし、その NO<sub>2</sub> であっても、データが十分に検証されているとは言い難いのが現状である。これは、対流圏カラム濃度という特殊な物理量を、衛星とは独立な手法で観測することが難しいからである。例えば、航空機を用いてスパイラル飛行で得た NO<sub>2</sub> の高度分布から対流圏カラムを見積もる試みが INTEX-B でなされたが、NO<sub>2</sub> が豊富にある地表近傍は航空機が飛ばず、見積もりに大きな誤差を生じさせてしまっている。

こういった背景のもと、Cabauw Intercomparison Campaign of Nitrogen Dioxide measuring Instruments (CINDI) 観測キャンペーンが、2009年6~7月にオランダのカバウ(Cabauw)で行われた。具体的な場所はオランダ国立気象研究所(KNMI)の気象観測サイトで、高さ213mの気象タワーがランドマークとしてそびえ立っている。CINDIの主目的は、人工衛星から観測される対流圏 NO<sub>2</sub> カラム濃度の検証に有効な NO<sub>2</sub> 測器の国際的相互比較を行うことである。ローカルオーガナイザーは KNMI の研究者で構成され、限られたマンパワーにもかかわらず、週末も現場に張り付くなど、細部までキャンペーンをとてよくアレンジしてくれた。

世界中から30台を超す測器が集まり、とても活気あふれる雰囲気の中で相互比較観測が行われた。集まった NO<sub>2</sub> 測器の多くは Multi-Axis

Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) であり、実質的には、MAX-DOAS の国際相互比較が行われたといえる。海洋研究開発機構(JAMSTEC)も MAX-DOAS による観測を行い、アジアからの貴重なグループとしてキャンペーンを盛り上げた。なお、JAMSTECによる観測は、金谷氏、高島氏の協力の下で実施された。

MAX-DOASは、従来の受動型 DOAS 装置(天頂の太陽散乱光を測定する紫外可視分光計)に複数の低仰角での測定機能を加えた手法である(広義には複数の方位角の測定も含む)。MAX-DOAS で直接測定されるのは紫外可視域の太陽散乱光スペクトルであるが、正午ごろの天頂観測スペクトルを参照スペクトルとして解析することで、例えば NO<sub>2</sub> や O<sub>4</sub>(酸素の衝突錯体)のスラントカラム濃度(正確には差分スラントカラム濃度)を導出でき、さらには、Optimal Estimation Method によるインバージョンにより、対流圏中の微量ガスやエアロゾル消散係数の高度分布の情報(従って対流圏カラム濃度)も引き出せると期待されている。

キャンペーンのなかで6月15~26日は最も大事な期間であり、semi-blind intercomparison として差分スラントカラム濃度の相互比較が行われ、特別な緊張感を味わった。異なるグループ間ではデータの受け渡しは禁止され、レフェリーが作成する比較プロットを見るまでおどききなのである。この相互比較は過去に実施された NDACC(旧 NDSC)の DOAS 観測の相互比較実験の延長上に位置づけられる。NO<sub>2</sub> だけでなく新たに O<sub>4</sub> も対象とし、また、観測する視線方向(方位角)を統一して空間の非一様性の影響を抑えたのが CINDI の特徴である。昼食後にはミーティングが毎

日開かれ、前日の相互比較の不一致の原因等について議論された。ただし、示された比較プロットの中ではどのグループのデータがは分からないようになっていた。ミーティングの後、レフェリーが逸脱したデータのグループに原因を突き止めて改善するように注意勧告する。実際に生じた問題として、例えば、視線方向がずれていたことなどがあつた。こういった進め方で相互比較をリーズナブルに進めることが semi-blind と名付けられた所以のようである。

また、日々の相互比較をできるだけ公平に行うために、ある決まった



2009年4月にKNMI 気象観測サイトを視察したCINDI 観測キャンペーンの参加者。

時刻までにデータを提出しなくてはならなかつた。期間前半は定刻までに提出できないグループも多かつたが、途中からは、掃除のペナルティーが科せられた。そういったルールが伝わると、直ちに全てのデータが揃うようになった。

キャンペーンの後半にさしかかつた7月6~8日には初期結果についてのワークショップがKNMIで開催された。各グループのスラントカラム濃度の観測結果はもちろんのこと、高次プロダクトとしてのNO<sub>2</sub>やエアロゾル消散係数の高度分布の導出についても議論された。また、ホルムアルデヒドやグリオキサールの高度分布導出についても紹介された。NDACCの一環として、MAX-DOAS ネットワークの国際的展開の可能性も指摘された。

ワークショップ以降は、衛星観測ピクセル内のNO<sub>2</sub>の空間分布をきちんと抑えるために、装置の視線方向を変えたりするなど、装置を再配置し、7月下旬まで観測が続けられた。この期間にはいくらか気持ちに余裕がでてきたこともあり、KNMIのタワーに登った。オランダはフラットな国である。周りに高い建物が無く、とても高さを感じたことを覚えている。

最後になるが、CINDIプロジェクトとしては semi-blind intercomparison の論文を2010年頭に Atmospheric Measurement Techniques (AMT) に投稿することを目標としている。高次プロダクト等の応用解析もこれから本格化し、AMTの特集号として論文化される見通しである。また、2010年春頃にはEGUでセッションを設けることが検討されており、その前後にはCINDIのワークショップが計画されている。今後、私はこういったことを視野に入れながら本格的な解析を進めていく予定である。

## IGAC/SPARC ワークショップと SSC/SSG 会議の開催報告

小池 真 (東京大学)、近藤 豊 (東京大学)、塩谷 雅人 (京都大学)

林田 佐智子 (奈良女子大学)、金谷 有剛 (海洋研究開発機構)

高橋 けんし (京都大学)、余田 成男 (京都大学)、村山 泰啓 (情報通信研究機構)

IGAC (International Global Atmospheric Chemistry) と SPARC (Stratospheric Processes And their Role in Climate) は、それぞれ、グローバルな大気化学研究や成層圏大気の状態に果たす役割の解明のために、国際的な研究の促進・交流において重要な役割を果たしてきている (<http://www.igac.noaa.gov/>、<http://www.atmosph.physics.utoronto.ca/SPARC/index.html>)。この IGAC と SPARC 活動の母体となる SSC や SSG (Scientific Steering Committee or Group) の会議が、今年の10月に京都で、初めてジョイントで実施された。これは対流圏・成層圏を連続した大気として扱い、また大気中物質と気候の研究を包括的に実施する国際的な研究動向を反映したものである。この SSC/SSG 会議の前に、二日間にわたり SSC/SSG メンバーとの研究交流を行うワークショップ (One Atmosphere: Integration, Interface, and Impact) を開催した。この記事では、このワークショップとそれぞれの SSC/SSG 会議についてご報告する。

25-26日に実施されたワークショップでは、IGACおよびSPARCのそれぞれのchairであるK. LawおよびT. Shepherdによる基調講演から始まり、SSC/SSGメンバー11人と日本の研究者13人によるきわめて質の高い口頭発表がなされた。また国際IGAC/SPARCの研究アクティビティーの紹介を含む44件のポスター発表も行なわれた。SSC/SSGメンバーの発表では、CCM(chemistry climate model)を駆使した様々なスケールの力学過程や物質場との関係に関する研究の新展開、衛星観測から得られる各種大気物質の経年変化や発生源に関わる新たな知見と今後の展望、成層圏エアロゾルや対流圏の雲を人工的に増加させ日傘効果により地球温暖化を暫定的に緩和するジオ・エンジニアリングの可能性など、今後の大気化学研究の方向を考える上でも重要な最新の研究成果などが紹介された。また最後のパネルディスカッションでは、日本の若手

研究者が中心になりサイエンスプランを策定しているアジアの自然起源有機物の動態研究や、現在計画中の静止衛星からのアジア大気環境観測計画について紹介がなされ、SSC/SSGメンバーからも計画実現に向けて強い支持を得た。なおこのワークショップは、日本の大気化学研究のアクティビティーの高さなどにおいてSSC/SSGメンバーから高い評価をいただいた。関係者・参加者の皆様には、改めてお礼を申し上げます。

IGAC SSC 会議では、1日目は2010年にカナダのハリファックスで行われるCACGP/IGAC会議の準備状況が責任者のJ. Drummondから報告された。IGACとIGBPとの連絡を行っているS. Seitzingerから今後のIGBPの改編とそれに対応するIGACの将来計画の立案の重要性の説明があつた。これは9月にロンドンで行われたIGACの将来計画の会議(近藤が出席)と関連するもので、認識を再確認するとともに、IGBP全体の方針に対する多くの議論もなされた。各task (megacities, AMMA, DEBITS, POLARCAT, ACPC, Emissionなど)の報告がなされた。2日目はSPARCと



口頭発表会場の様子。セッション開始前議論が白熱。

の合同会議となった。お互いの関連する部分の報告があり、IGAC-SPARC と重なり合う部分の協力の重要性が認識された。3日目の議論では SSC メンバーとして韓国の Park が承認された。韓国のより大きな貢献が期待される。今後 IGAC の SSC 会議に、正規の SSC メンバーだけでなく、大規模なプロジェクト研究を遂行している研究者に参加してもらうことになった。このことは、IGAC の活動をより活性化するための大きな変化である。

SPARC SSG 会議は、10月26日午後から10月30日の午前中にかけておこなわれた。1日目の午前中には、IGAC/SPARC ワークショップの報告と SPARC に関連した日本のプロジェクトの紹介があった。2日目には SPARC の中でも中心的な活動である CCMVal (Chemistry-Climate Model Validation Activity for SPARC) の報告があった。これは、オゾン層の将来予測を具体的なターゲットとして、化学-気候モデルの検証をおこなう研

究活動である。今後、温暖化予測も化学的なカップリングを取り入れた形で進められていくものと思われる。3日目は IGAC との合同会議となり、今後のさまざまな協力の可能性が示唆された。4日目には、成層圏-対流圏交換、重力波、データ同化などのテーマについて議論がおこなわれた。最終日には、次回の SSG ミーティング開催予定地インドの準備状況などが紹介された。

合同ワークショップとそれに引き続いておこなわれた合同会議は、IGAC-SPARC が今後ますます交流を深め、関連した大気研究が進展していくことを期待させる集まりであったといえる。

なお、合同ワークショップの開催におきましては、大気化学研究会および京都大学生存圏研究所から支援いただいたことを、感謝と共に付記させていただきます。

## 温室効果ガス観測技術衛星 GOSAT による CO<sub>2</sub> カラム平均濃度の初期解析結果

吉田 幸生、横田 達也 (国立環境研究所 地球環境研究センター)

温室効果ガス観測技術衛星 GOSAT が 2009 年 1 月 23 日に打ち上げられました。打上げ 2 週間後の同 2 月 7 日には搭載センサである TANSO-FTS と TANSO-CAI による初データが取得されました。同 4 月 10 日には搭載センサ等の初期チェックアウトが、同 7 月 28 日には初期校正運用がそれぞれ終了し、現在 GOSAT は定常運用段階にあり、検証作業や処理手法の確認・調整を進めています。GOSAT は JAXA、国立環境研究所 (以下 NIES)、環境省の三者が共同で推進しているプロジェクトであり、ここでは NIES が担当している高次処理の中から、CO<sub>2</sub> カラム平均濃度 (気柱内に含まれる乾燥大気的全分子数に対する CO<sub>2</sub> の全分子数の比、以下 XCO<sub>2</sub> と記す) の初期解析結果を紹介します。GOSAT プロジェクトや、搭載センサの仕様、その他の処理の概要については、NIES GOSAT プロジェクトのホームページ (<http://www.gosat.nies.go.jp/>) や、日本リモートセンシング学会誌 Vol. 28 (2008) No. 2 の GOSAT 小特集をご参照下さい。

NIES では TANSO-FTS で観測される CO<sub>2</sub> 1.6 μm 帯の輝度スペ

クトルから、optimal estimation method [Rodgers, 2000] と呼ばれる手法を用いて XCO<sub>2</sub> の推定を行っています。観測される輝度スペクトルは、CO<sub>2</sub> 濃度のみならず、地表面アルベドや地表面気圧、雲やエアロゾルなどによっても変わりうるため、これらの影響を適正に評価し、解析に取り入れる必要があります。現時点では、雲が TANSO-FTS の視野内に混入しているなど、推定誤差が大きくなりやすい事例は解析対象から除外しています。解析手法の詳しい説明は、Yokota et al. [2009]、Yoshida et al. [2009] をご覧下さい。

図 1 に TANSO-FTS の観測スペクトルを解析して得られた 2009 年 8 月の XCO<sub>2</sub> の全球分布 (10 回帰 (1 ヶ月) 分) を示します。TANSO-FTS の視野サイズ (直下視で直径約 10.5 km の円形) における晴天率は全球平均で 11% 程度 [Eguchi and Yokota, 2008] と事前に見積もっておりましたが、これは実際の観測事例数に対する解析事例数ともほぼ一致しています。晴天率には地域的な偏りがあるものの、1 ヶ月分のデータを蓄積すると、陸上の大半が観測されていることがわかります。これまで地上観測データが不足していた南米やアフリカなどが観測されていることは、衛星観測ならではの強みといえるでしょう。なお、海上は反射率が低いため、比較的反射率の高いサンゴリット領域周辺のみが対象となっています。図 2 に 2009 年 4 月から 8 月の陸上の XCO<sub>2</sub> の緯度帯平均値を示します。北半球では春から夏にかけて陸上生態系の活動が活発になるため、XCO<sub>2</sub> が大きく減少している様子が見られます。

さて、このように得られた解析結果も、どの程度信頼のおける値であるかを評価する必要があります。GOSAT プロジェクトでは、TCCON と呼ばれる地上設置の高分解能 FTS 観測網 (北米、欧州、

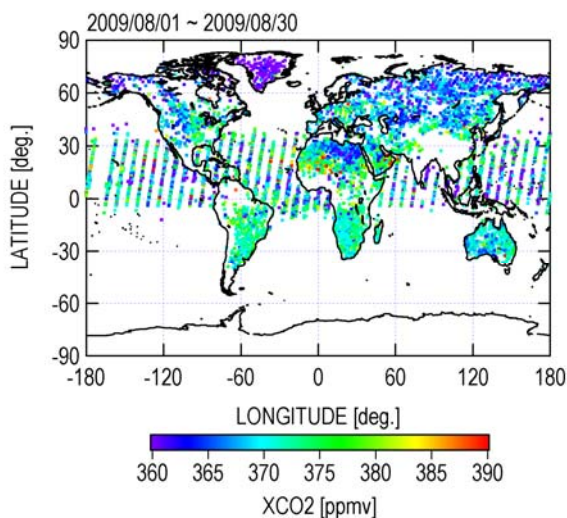


図 1. TANSO-FTS 観測スペクトルから得られた 2009 年 8 月 (2009/08/01 ~ 2009/08/30 の 10 回帰分) の XCO<sub>2</sub> の全球分布。

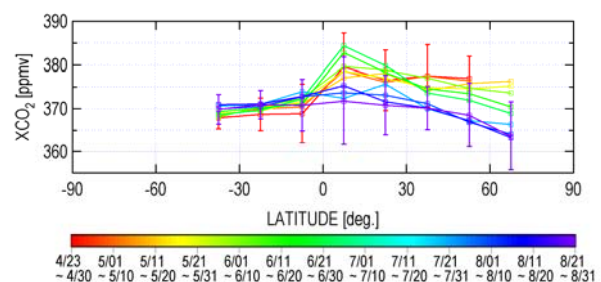


図 2. XCO<sub>2</sub> の緯度帯平均値 (15 度毎)。色の違いは観測時期の違いを表す。



日本、豪州など十数か所) から得られた  $XCO_2$  を検証データとして利用しています。TANSO-FTS から得られた  $XCO_2$  と TCCON の  $XCO_2$  とを比較した結果、現状の TANSO-FTS 解析結果は 15 ppm ほど  $XCO_2$  を過小評価していることが判りました。地域別に詳しく見ていくと、 $XCO_2$  のばらつきがそれほど大きくないと考えられるサハラ砂漠周辺や海上で大きなばらつきを示しています(図 1)。前者は砂塵粒子の影響を適正に補正できなかったこと、後者は TANSO-FTS 視野内に混入している雲を検知できなかったことに直接の原因があると考えられます。ただし、解析に使用したデータには校正結果の全てが反映されていないこと、また、解析アルゴリズム自体も各種パラメータ調整がまだなされていないことに注意する必要があります。図 2 に示した緯度帯平均値を従前の研究結果と比較してみると、バイアスこそあるものの、南北半球間の濃度差や、季節変動の振幅の大きさは概ね一致しています。

GOSAT が無事に打ち上がり、定期的な観測が開始されてから半年あまりが経ちます。解析結果にはまだ満足できない点が多々あるものの、初期結果としてはまずまずのものだと思っています。解析アルゴリズムの調整・改良や検証作業など、やるべきことはまだまだ

山積みですが、一つ一つ着実に解決していく所存です。今後、2009 年 11 月には校正済み L1 データ (TANSO-FTS のスペクトルなど) の、2010 年 2 月には検証済み L2 データ ( $XCO_2$  など) の一般公開が予定されています。今後の GOSAT から得られた検証済みデータが炭素循環や地球温暖化に関する新たな科学的知見を与えることに期待します。

本稿で紹介した解析結果・検証データは NIES GOSAT プロジェクトの事業成果です。

#### 参考文献

- Eguchi, N. and T. Yokota (2008), *Geophys. Res. Lett.*, L23816, doi:10.1029/2008GL035897.
- Rodgers, C. D. (2000), *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, World Sci., Singapore.
- Yokota, T. et al. (2009), SOLA (accepted).
- Yoshida, Y. et al. (2009), *Proceeding of Atmospheric Science Conference (7-11 September 2009, Barcelona, Spain)* (in submitted).

#### 若手研究ショートレビュー

## ブラックカーボンの混合状態を表現した数値モデルによるエアロゾル光学特性・雲凝結核特性に関する研究

大島 長 (東京大学 先端科学技術研究センター)

ブラックカーボン (BC) エアロゾルは太陽放射を強く吸収し、大気の加熱を通じて、地球の放射収支に大きな影響を及ぼす。このため、BC が気候システムに果たす役割は非常に重要である。エアロゾルの気候影響を推定する上で、特に重要な鍵となるのが、BC の混合状態 (BC が他のエアロゾル成分によってどの程度被覆されているか) であり、BC の混合状態の理解は重要な研究課題として位置づけられている。

BC は燃焼過程により、一般的には被覆がない疎水性粒子として大気中に排出される (他のエアロゾル成分と外部混合している状態)。その後、大気中での凝縮や凝集等により、他のエアロゾル成分によって被覆され、内部混合した状態へと変化する (BC aging)。BC は硫酸塩アンモニウムなどの水溶性エアロゾル成分によって被覆されると、雲凝結核特性を持つ親水性粒子へと変容する。親水性粒子は雲粒へ取り込まれ降水によって大気中から除去されるので、BC の混合状態の変化は BC の大気中での寿命や BC の広域空間分布に大きな影響を及ぼす。同時に、BC は非光吸収性エアロゾル成分によって被覆されると、太陽放射の吸収率が增大するので、BC の混合状態の変化は地球の直接放射強制力にも大きな影響を及ぼす [Jacobson, 2001; Bond et al., 2006]。このような BC 粒子の光吸収率と雲凝結核特性は、BC 自身の量 (コア直径) とその被覆量 (シェル直径) に大きく依存する。従って、エアロゾルの光学特性と雲凝結核特性を精度良く推定するためには、BC の混合状態全体 (BC コアの粒径分布と、被覆成分を含むエアロゾル (シェル) の粒径分布) を知る必要がある。しかしながら、従来の多くの数値モデル研究では、BC の混合状態がモデルで必ずしも十分に表現されていない。このため、従来のエアロゾルの気候影響評価には、大きな不確実性が含まれていた。

近年、計測技術の進歩により、単一粒子としての BC とその被覆量の測定が可能となり、BC の混合状態の情報が観測から得られるよう

になった。例えば Schwarz et al. [2008] は、同一の BC コア直径に対し、様々なシェル直径を持つ粒子が大気中共存していることを報告している。現在の気候化学分野では、このような先端計測に基づく新しい観測結果が得られつつあり、従来のモデル研究では困難であった BC の混合状態の変化の検証が可能になったとともに、BC の混合状態の変化が放射に及ぼす影響を定量的に理解できる段階に到達したと考えられる。

このような背景に基づき、本研究 [Oshima et al., 2009a] では、BC の混合状態全体の表現を可能にする新しいエアロゾル表現を考案し、エアロゾルモジュール MADRID (Model of Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution) に導入することで、被覆に伴う BC の混合状態の変化を正確に計算できる新しいボックスモデル MADRID-BC を開発した。このエアロゾル表現では、エアロゾル各成分の質量・粒子数が、各粒子直径と粒子中の BC の質量比率に対して与えられる (図 1)。この手法により、同一の粒子直径に対し、様々な被覆量を持つ BC 粒子の共存が表現可能となる。またエアロゾル光学特性・雲凝結核特性の計算では、エアロゾルをコア・シェル型として扱うミーム理論・ケーラー理論をそれぞれ採用した。

2004 年 3 月に日本周辺で実施された PEACE-C (Pacific Exploration of Asian Continental Emission phase C) 航空機観測では、名古屋都市域から大気境界層内を通過して海上を水平輸送された空気塊中で、厚く被覆された BC 粒子の割合の増大が観測された [Moteki et al., 2007]。本研究では、この観測事実に着目し、開発した MADRID-BC ボックスモデルを用いて、気体濃度やエアロゾル総量が観測値と一致するような束縛条件下で計算を行った。その結果、MADRID-BC は観測された BC の混合状態の時間的な変化を良い精度で再現した。同時にモデル計算から、個々の BC 粒子の被覆量の変化を求めることで、BC の混合状態全体の変化を初めて定量的に明らかとした [Oshima et al., 2009a, Figure 6]。

続いて、本研究 [Oshima et al, 2009b] では、PEACE-C 航空機観測で検証した事例での BC の混合状態に基づき、MADRID-BC を用いてエアロゾルの光学特性・雲凝結核特性の推定を行った。両特性を正確に推定するためには、検証された BC の混合状態の情報が必要不可欠である。この結果、空気塊が名古屋都市域から大気境界層内を通過して海上を半日程度輸送される間に、BC は被覆されることにより光吸収率（波長 550 nm）が 40-60% 増大していたことが明らかとなった。雲凝結核特性についても同様に、BC は被覆されることにより全 BC 質量の 50-80% が過飽和度 0.05% で雲粒へと変換できることが明らかとなった。

またモデルの感度実験を通じて、BC の混合状態をどの程度詳細にモデルで表現することが、エアロゾル光学特性・雲凝結核特性の推定精度を失わない上で必要であるかを調べた。その結果、エアロゾル光学特性を見積もる上では、BC を含むエアロゾルと BC を含まないエアロゾルの二種類をモデルで同時に考慮することが本質的に重要であることを明らかにした。この BC を含まないエアロゾルの存在は、観測事実からも裏づけられているが、世界的にもよく知られているエアロゾルモデルである ECHAM5-HAM [Stier et al, 2005] や WRF-chem [Fast et al, 2006] でも必ずしも取り扱われていない。さ

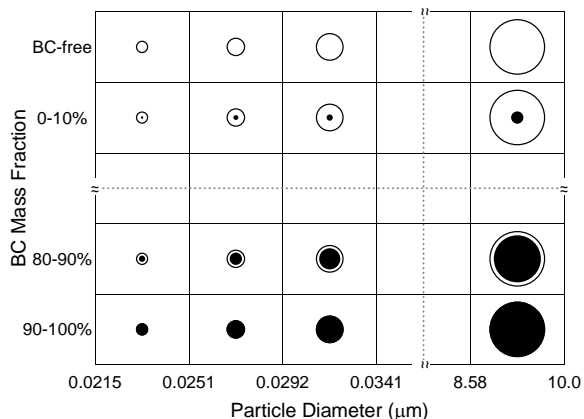


図1. MADRID-BC に導入したエアロゾル表現。エアロゾル各成分の質量・粒子数が、粒子直径（横軸）と粒子中の BC の質量比率（縦軸）で構成されるグリッドにより与えられる。BC を含むエアロゾルに加え、BC を含まないエアロゾル (BC-free) も取り扱う。

らに、雲凝結核特性を見積もる上では、BC を含むエアロゾルを少なくとも二つのカテゴリー（例えば、疎水性 BC と親水性 BC）で表現することが重要であることを明らかとした。本研究により得られた知見を三次元エアロゾルモデルに反映することで、従来よりも BC の空間分布およびエアロゾルの放射影響の推定精度が向上することが期待される。

最後に日本の大気化学分野におけるエアロゾルモデル研究の現状を考えると、欧米と比較して遅れをとっている印象を受ける（研究者の人数が少ないことも大きな要因だろう）。また、信頼性の高い数値モデルの構築には、観測研究から得られた本質的な知見をモデルに反映させることやモデルの検証などが必要不可欠であるが、観測研究とモデル研究とのリンクは未だ不十分な印象を受ける。今後、日本のエアロゾルモデル研究を発展させる上では、大気化学分野全体として、モデル研究および観測研究の研究者の連携をより強化していくことが必要であると考えられる。同時に、モデル研究の発展は、観測研究の発展にもフィードバックをかけるはずである。今後、私自身も、観測研究者と連携を取りつつ、エアロゾルモデルに関連した研究課題に取り組んでいきたい。

#### 謝辞

本研究を実施する上で、東京大学の小池真准教授、近藤豊教授には熱心なご指導をして頂きました。心よりお礼申し上げます。

#### 参考文献

- Bond, T. C. et al. (2006), *J. Geophys. Res.*, 111, D20211, doi:10.1029/2006JD007315.
- Fast J. D. et al. (2006), *J. Geophys. Res.*, 111, D21305, doi:10.1029/2005JD006721.
- Jacobson, M. Z. (2001), *Nature*, 409, 695-697.
- Moteki, N. et al. (2007), *Geophys. Res. Lett.*, 34, L11803, doi:10.1029/2006GL028943.
- Oshima, N. et al. (2009a), *J. Geophys. Res.*, 114, D06210, doi:10.1029/2008JD010680.
- Oshima, N., et al. (2009b), *J. Geophys. Res.*, 114, D18202, doi:10.1029/2008JD011681.
- Schwarz, J. P. et al. (2008), *J. Geophys. Res.*, 113, D03203, doi:10.1029/2007JD009042.
- Stier, P. et al. (2005), *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1125-1156.

## データ同化手法を応用した感度実験

計算機の発達や観測データの拡充などを背景に、化学輸送モデル (CTM) に対してもデータ同化手法を適用した研究が行われるようになってきた。これらの研究は予報・排出量逆推定・感度実験など多岐にわたるが、詳しい説明は各学術論文 [例えば、Chai et al, 2006; Constantinescu et al, 2007; Kurokawa et al, 2009; Yumimoto et al, 2008; Yumimoto and Uno, 2006] に任せ、ここでは同化手法の一つである 4 次元変分法を利用した感度実験について紹介する。

4 次元変分法では、フォワードモデルに対応したアジョイントモデルを用いてデータ同化を行う。アジョイントモデルは過去に向かって積分するモデルであり、同化過程では観測の情報を過去へと伝搬させる役割を担っている。この特性を利用すれば、時間を遡った現象の追跡が可能であり、アジョイントモデル自体を強力な逆解析ツールと見なすことが出来る。また、アジョイントモデルはフォワードモデルに従うため、バックトラジェクトリ解析とは異なり、

弓本 桂也 (九州大学 応用力学研究所)

CTM 内の物理・化学過程を考慮に入れた感度実験を行うことが可能である。本稿ではアジョイントモデルを応用した

1. 大気汚染エピソードの逆追跡
2. 仮想感度実験

の二つにスポットを当てる。

本研究では、RAMS/CFORS-4DVAR 同化システム [Yumimoto et al, 2008] のアジョイントモデルを用いた。簡単のため有効半径 2 μm のエアロゾルを仮定し、化学反応過程はアジョイントモデルに組み込まなかった。実験対象には、国立環境研究所が展開しているライダーネットワークを選択した。環境研ライダーからは球形粒子・非球形粒子に対する消散係数をそれぞれ得ることが出来る。

はじめに、ライダーネットワークによって観測された大気汚染エ

ピソードの逆追跡実験を紹介する。図1に結果の一例を示す。左列(a, b, c)は2008年3月11-12日に仙台・つくば・富山・長崎で観測された球形粒子エピソードに対するアジョイント変数(感度)の分布である。過去に向かうにつれ、感度の高い部分が黄海を渡り北京付近へと遡る様子がわかる。右列(d, e, f)には2008年4月15-16日にかけて仙台・つくば・富山で観測された非球形粒子エピソードに対する結果を示す。非球形エピソードに対する感度は中国東北地方を通り、モンゴル・ゴビ砂漠北部へと到達している。これらのことから、球形エピソードが北京付近の工業地帯を起源とした大気汚染、非球形エピソードがゴビ砂漠北部付近で発生した黄砂であると推測

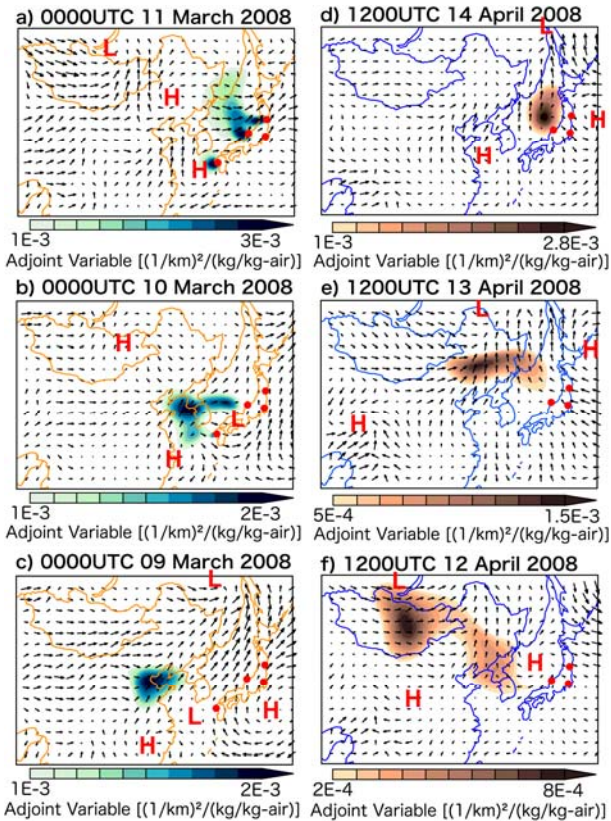


図 1. 環境研ライダーで観測された消散係数に対するエアロゾル重量混合比のアジョイント変数分布。図中のL, Hは地上低気圧, 高気圧の位置を表す。

### Averaged Adjoint Variable ( $\lambda$ )

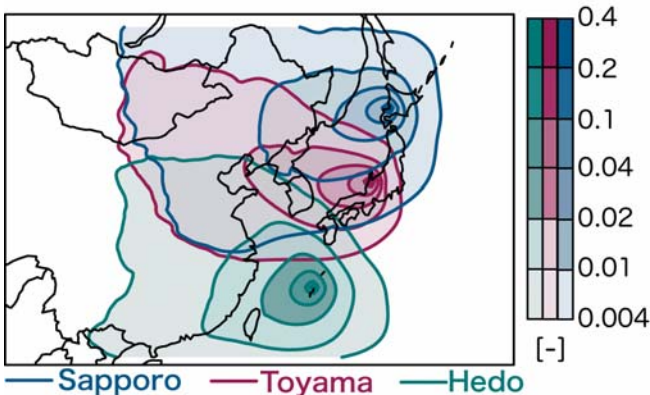


図 2. 2006-2008 年春季 (3-5 月) における仮想感度実験結果。

できる。両実験結果を比べてみると、同じ春季、同じ地点におけるエピソードでありながら、その輸送経路が大きく異なることがわかる。非球形粒子エピソードは球形エピソードに比べ、北よりの経路をたどっている(低気圧の運行に左右されている)。次に、図示したアジョイント変数の単位に重量混合比の逆数が含まれていることに注目してほしい。これは、アジョイント変数がインプットである観測データ(消散係数)に対するエアロゾル濃度の感度を表していることを意味する。すなわち、アジョイントモデルを用いた感度実験では対象とした現象の起源を定量的に求めることが出来る。4次元変分法ではこのようにして得た感度の情報をもとに初期条件や排出量の最適化を行っている。さらに、アジョイントモデルに化学反応過程を組み込むことによって、前駆物質に対する(例えば、オゾン観測データから窒素酸化物へと遡る)感度も定量的に求めることが出来る [Sandu et al., 2004]。放射過程をアジョイントモデルに組み込めば、エアロゾルから気象へのフィードバックを考えることも出来る。

次に、仮想感度実験について紹介する。前段落の逆追跡実験では、大気汚染エピソードの実測値を入力しその起源を遡った。ここでは、実測値の代わりに定常値を仮想的に与えることによって、ライダーサイトが捉える空気塊の起源の分布を調べる。図2に辺戸岬、富山、札幌の結果を示す。対象期間は2006-2008年春季(3-5月)で、エアロゾル重量濃度に対する感度(どこからやってきた空気塊が対象地点の濃度にどのくらい影響を与えるか)を図示している。札幌は中国東北地方からロシアの森林火災の多い地域に加え、北京付近を起源とした空気塊を捉える機会がある。富山では感度の高い地域が北京・内陸部のゴビ砂漠へと伸び、黄砂から大気汚染までカバーしていると推測される。つくばや仙台など本州の観測点も同様の感度分布となった。この結果から、春季の本州はこれらの地域を起源とした空気塊によく曝されていると言い換えることも出来る。辺戸岬では、感度の高い領域が台湾・中国東岸と広く覆っており、中国からの越境汚染を広く捉えている。3地点を総合すると、環境研ライダーは春季における森林火災・人為起源物質・黄砂といった越境大気汚染を捉える守備範囲の広いネットワークを構築していると評価できる。本稿では、春季に限定した結果をお見せしたが、季節変化、高度別、球形・非球形など詳細な感度分布を調べることも出来る。また、設置計画段階に行うことによって観測地点選定や事前影響評価などへの応用も可能である。特に衛星観測においては計画段階における観測データの影響評価が重要となる。そのため、データ同化手法を利用した仮想観測網シミュレーション実験(OSSE)などの研究が進められている。

本稿ではデータ同化研究、特に感度実験への応用例について焦点を当てた。同化手法が予報精度の向上のみならず、いろいろな場面に応用可能であることが示唆できれば幸いである。本研究を行うにあたり鶴野伊津志教授(九州大学)、杉本伸夫博士、清水厚博士、西澤智明博士(国立環境研究所)には貴重なアドバイスを頂いた。心よりお礼申し上げる。

#### 参考文献

Chai, T. et al. (2006), *J. Geophys. Res.*, 111, D02301, doi:10.1029/2005JD005883.  
 Constantinescu, E. M. et al. (2007), *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 133, 1229-1243.  
 Kurokawa, J.-i. et al. (2009), *Atmos. Environ.*, 43, 1878-1887.  
 Sandu, A. et al. (2004), *J. Comp. Phys.*, 204, 222-252.  
 Yumimoto, K. and I. Uno (2006), *Atmos. Environ.*, 40, 6836-6845.  
 Yumimoto, K. et al. (2008), *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2869-2884.

## 若き大学院生のヨーロッパ

白岩 学 (ドイツ マックスプランク化学研究所生物地球化学科)

### 研究について

2008 年の 9 月より、マックスプランク化学研究所(MPI-C)の博士課程に留学している。修士課程においては東大先端研の近藤豊教授、竹川暢之准教授にお世話になり、すす粒子の混合状態に関する観測研究を中心に行った [Shiraiwa et al., 2007, 2008, in press]。MPI-C に留学してからは研究テーマが大きく変わって、生物地球化学科 (Director: Prof. M. O. Andreae) の Dr. U. Pöschl のグループにおいて、大気エアロゾル表面またはバルクでの化学反応のモデルおよび実験研究を行っている。

まず私はモデル研究として、不均一反応の PRA フレームワーク [Pöschl et al., 2007] をベースにしたエアロゾル化学反応モデル (図) を開発している。このモデルでは、ガス相から表面への吸着・脱着、表面反応、表面-バルク交換を陽に記述している。まずこのモデルを用いて、すすや有機物表面に付着した多環芳香族化合物 (PAH) のオゾンや二酸化窒素による変質過程を調べ、PAH の大気中での化学寿命を推定した [Shiraiwa et al. 2009]。またイギリスの Reading 大との共同研究で、有機物 (オレイン酸) のオゾンによる酸化過程を詳細に調べた [Pfrang et al., submitted]。さらに、バルク内での拡散と反応を表面過程と結合させたモデルを開発した [Shiraiwa et al., submitted]。このモデルは、エアロゾルのフローチューブやチェンバー実験のデータ解析に有用なものはもちろんだが、将来的には MPI-C のモデルグループと共同で、現状では不均一反応の取扱いが粗いグローバルモデルに組み込みたいと考えている。

また、バイオエアロゾルに着目した研究も行っている。バイオエアロゾル (花粉、孢子、タンパク質など) は粗大エアロゾルの質量濃度の約 20% を占めており、雲凝結核や健康影響といった面から、近年注目を集めてきている。その中でも、タンパク質粒子は大気中でオゾンと二酸化窒素の存在下においてニトロ化され、ニトロ化したタンパク質は人体に取り込まれるとアレルギーを引き起こすことが報告されている。私は、このニトロ化反応の速度論 (取り込み係数) をフローチューブ実験により測定している。実験は、スイスの Paul Scherrer Institute (PSI) の Dr. M. Ammann との共同研究で、私が PSI に中期滞在を繰り返して行っている。PSI では放射性を有する  $^{13}\text{NO}_2$  をオンラインで作り出すことができる。これをタンパク質粒子と反応させ、取り込まれた  $^{13}\text{NO}_2$  を  $\gamma$ 線検出器で直接測定することができるので、感度が高くより正確な取り込み係数を測定することができる。実験結果にエアロゾル化学反応モデルを適用して、反応過程の

詳細な理解を目指している。

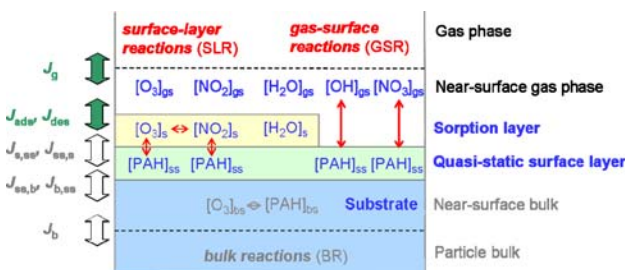
### MPI-C での生活について

200 人程の研究者で構成される MPI-C は、アットホームな雰囲気でも親切で明るい。博士課程の学生は 50 人 (半数が留学生) で、私は今年度の MPI-C の学生代表を務めており、70 近くある他分野の MPI との交流の機会があるのも楽しい。ノーベル賞を受賞された Dr. P. Crutzen も 75 歳にしてまだ現役で、気さくに話してくれる。MPI-C には大気化学の様々な分野 (観測、実験、モデル、衛星) の研究者が集まっており、内部での研究交流が盛んで日々大きな刺激を受けられるのが最大の魅力だ。また、海外からのゲストが多く、その度にセミナーで最新の研究を聴けることがとても勉強になる。マインツはフランクフルト空港に近いなど交通の便が良く、学会や共同研究にも気軽に出掛けることができるのもいい点だ。今は研究が楽しくて仕方なく、この恵まれた研究環境を存分に満喫しようと思っている。

マインツはライン川下りの起点のきれいな街でとても住みやすい。妻と二人でキャンパス内の夫婦棟で、質素ではあるが快適に暮らしている。夏は夜の 10 時まで明るく、逆に冬は夕方の 4 時半には暗くなるが、街では週末に多くのイベントが開催され、とても賑やかだ。ブンデスリーガのサッカー観戦はかなり興奮する。ラインワインやビールを片手に、ソーセージを頬張りながら、愉快地語り合う毎日だ。

### 参考文献

- Pöschl, U. et al. (2007), Atmos. Chem. and Phys., 7(23): 5989–6023.
- Shiraiwa, M. et al. (2007), Geophys. Res. Lett., 34(16): L16803, doi:10.1029/2007GL029819.
- Shiraiwa, M. et al. (2008), J. Geophys. Res., 113: D24210, doi:10.1029/2008JD010546
- Shiraiwa, M. et al. Aerosol Sci. and Technol., in press.
- Shiraiwa, M. et al. (2009), Atmos. Chem. and Phys. Discuss., 9, 18021–18063.



図：エアロゾル化学反応モデルの概略図



ヨーロッパエアロゾル学会にてベストポスター賞を受賞

発行：大気化学研究会ニューズレター編集委員会 (高橋けんし、入江仁士、定永靖宗)  
 連絡先：〒464-8601 名古屋市千種区不老町 名古屋大学太陽地球環境研究所 松見研究室気付 大気化学研究会事務局  
 電話：052-747-6414、ファックス：052-789-5787、電子メール：taikiken@stelab.nagoya-u.ac.jp  
 ホームページ：http://www.stelab.nagoya-u.ac.jp/ste-www1/div1/taikiken/