

記 録

文書番号	SCJ 第 20 期 200910-20600104-017
委員会等名	日本学術会議 環境学委員会・地球惑星科学委員会 IGBP・WCRP 分科会 IGAC 小委員会
表 題	今後の日本の大気化学研究 IGAC小委員会の提言
作成日	平成 20 年(2008 年) 9 月 10 日

※ 本資料は、日本学術会議会則第二条に定める意思の表出ではない。

掲載されたデータ等には、確認を要するものが含まれる可能性がある。

この記録は、日本学術会議 環境学委員会・地球惑星科学委員会 IGBP・WCRP 分科会 IGAC 小委員会における審議の結果をとりまとめ、記録として公表するものである。

日本学術会議 環境学委員会・地球惑星科学委員会 IGBP・WCRP 分科会
IGAC 小委員会

委員長	小池真 (特任連携会員)	東京大学 大学院理学系研究科
幹事	竹川暢之	東京大学 先端科学技術研究センター
委員	秋元肇	海洋研究開発機構・地球環境フロンティア研究センター
委員	植松光夫	東京大学 海洋研究所 海洋科学国際共同研究センター
委員	鶴野伊津志	九州大学 応用力学研究所
委員	大原利真	国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ
委員	金谷有剛	海洋研究開発機構・地球環境フロンティア研究センター
委員	兼保直樹	(独)産業技術総合研究所 環境管理研究部門
委員	河村公隆	北海道大学 低温科学研究所
委員	北和之	茨城大学 理学部理学科
委員	近藤豊	東京大学 先端科学技術研究センター
委員	須藤健悟	名古屋大学 大学院 環境学研究科
委員	高見昭憲	国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ
委員	竹村俊彦	九州大学 応用力学研究所
委員	谷本浩志	国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ
委員	中澤高清	東北大学 大学院理学研究科
委員	中根英昭	国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ
委員	畠山史郎	東京農工大学 大学院共生科学技術研究院
委員	林田佐智子	奈良女子大学 理学部情報科学科
委員	松枝秀和	気象研究所 地球化学研究部
委員	松見豊	名古屋大学 太陽地球環境研究所
委員	村山泰啓	情報通信研究機構第3研究部門電磁波計測研究センター
委員	持田陸宏	名古屋大学高等研究院
委員	八木一行 (連携会員)	農業環境技術研究所
委員	山内恭	情報・システム研究機構 国立極地研究所
委員	横内陽子	国立環境研究所 化学環境研究領域
委員	吉田尚弘 (連携会員)	東京工業大学 フロンティア創造共同研究センター

報告書及び参考資料の作成にあたり、以下の方々に御協力いただきました。

小林和彦	東京大学大学院農学生命科学研究科
塩谷雅人	京都大学 生存圏研究所
滝川雅之	海洋研究開発機構・地球環境フロンティア研究センター
藤原正智	北海道大学地球環境科学研究所

はじめに

大気汚染や地球温暖化など、都市規模からグローバルスケールまでのさまざま空間スケールにおいて大気環境変動の科学的理解がますます重要となってきた。人間活動が地球システム・大気環境に対して主要な強制力となり、その結果として人間が生存基盤とする大気質、水資源、食糧生産などに対する影響が顕在化しつつあるからである。このような大気環境変動の理解において、大気化学の果たす役割がおおきい。大気化学は大気質 (air quality) や放射収支に影響をあたえる温室効果気体、オゾン、そしてエアロゾル (大気中に浮遊する微粒子) の大気中での振る舞い (behavior) と地球システムへの影響 (impact) を研究し予測する研究分野であるからである。

国際的なIGACすなわち、International Global Atmospheric Chemistry project (国際グローバル大気化学研究プロジェクト) は、IGBP (International Geosphere Biosphere Programme、国際地球圏生物圏プログラム) のコアプロジェクトとして、大気中の物質科学研究を推し進め、また将来の研究計画について検討をおこなってきた。日本学術会議の WCRP/IGBP 合同分科会の下部組織として設置されたIGAC小委員会でも、平成18-20年の第20期の活動期間において、今後の日本の大気化学研究のあり方について議論を重ねてきた。本報告書では、今後の中期 (約5年間) から長期 (約10年間) にわたる、対流圏を中心とした日本の大気化学研究のあり方についての議論をまとめたものである。大気化学研究の社会的な使命を十分に果たし、世界の地球科学研究に貢献するためには、ここにまとめられた研究が実現することが必要である。

2008年8月

IGAC小委員会委員長

小池 真

目次

はじめに	3
1. 概要	5
2. 国際IGACと大気化学研究の動向	12
2. 1. 国際IGAC	12
2. 2. 国際的な研究動向	16
3. 研究課題	19
3. 1. アジアの対流圏オゾンとその影響	20
3. 2. アジアのエアロゾルとその気候変動影響	24
3. 3. 越境大気汚染	27
3. 4. 極域の大気環境変動	32
3. 5. 熱帯のオゾンと熱帯対流圏界層(TTL)	38
3. 6. 化学気候モデル研究	49
3. 7. 有機エアロゾルの組成と起源	55
3. 8. 長寿命温室効果気体	67
3. 9. 海洋との相互作用(SOLASとの連携)	75
3. 10. 陸上生態系との相互作用(iLEAPSとの連携)	79
3. 11. 成層圏との相互作用(SPARCとの連携)	82
3. 12. 静止衛星による大気環境観測	86
3. 13. 測定手法の開発と室内実験	92
3. 14. アジアの排出インベントリ	98
3. 15. アジアにおける測定の標準化とトレーサビリティネットワーク	105
3. 16. アジア大気化学データベース構築	109
4. 研究計画	113
4. 1. アジアのエアロゾル研究の新たな展開	113
4. 2. 化学気候モデル研究の新たな展開	125
4. 3. 有機エアロゾル研究の新たな展開	136
おわりに	143
執筆者	144

1. 概要

大気化学は、大気を構成する気体と大気中に浮遊する微粒子であるエアロゾルについて、その振る舞い(behavior)と地球システムへの影響(impact)を、物理・化学過程に基づき研究する学問分野である。IGACが研究対象とする対流圏においては、二酸化炭素などの長寿命温室効果気体、オゾン、エアロゾルがその鍵となる成分であり、大気質(air quality)と気候影響がその影響に関する課題である(図1-1)。大気中での振る舞いについては、各物質の分布(時空間変動)と収支を明らかとするとともに、その分布を決めている物質の発生源、輸送過程、大気中での変容過程(素過程や化学反応速度定数の決定を含む)、大気からの除去過程の解明が主な研究対象である。また地球システムへの影響については、地球の放射収支、雲物理、人体(健康)、陸上生態系や海洋などへの影響に関わる大気化学のプロセスが主な研究対象となる。

大気化学は従来の大気中の化学反応のみを研究する研究分野の枠を超えて、地球システムへの影響をその研究範囲とし、地球科学の中で重要な位置づけをもつにいたっている。その中で、従来の大気中での化学反応の研究をより深く推進するとともに、地球システムを構成する他の様々な要素とを結びつける新たな広範な研究を推進していく必要がある。

大気化学は、地球科学の他の分野と同様に、自然現象の理解という純粋理学的な側面と、様々な環境問題に対し理学的根拠を与える応用科学的側面を合わせ持つ。大気汚染や地球温暖化など、都市規模からグローバルスケールまでのさまざま空間スケールにおいて大気環境変動が顕在化しつつある今日、大気化学の応用科学的研究はより大きな社会的な使命となってきた。しかし同時にこれらの応用科学を支える純粋理学を地道に推進することが学問の根源的な発展に不可欠である。

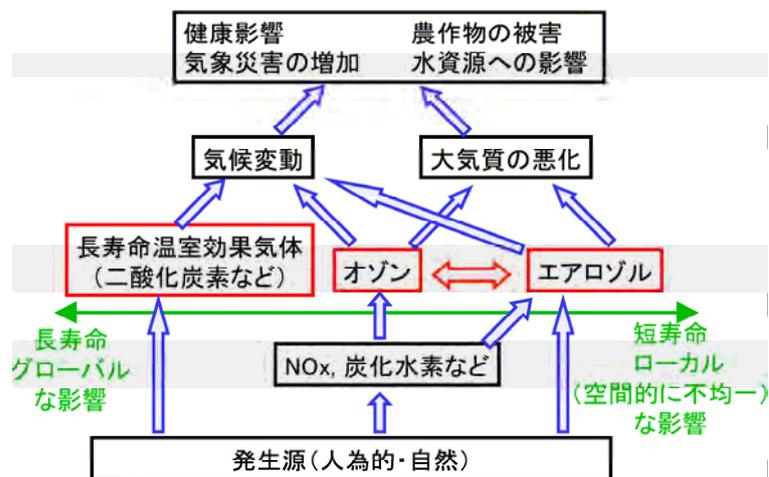


図 1-1. 大気化学研究の枠組み

日本は純粋理学と応用科学のふたつの側面において国際的に貢献してきたが、特に現在そして今後10年間にわたり大気環境変動が大きく変化すると予測されるアジアに位置する日本としては、今後一層、国際的な大気化学研究をリードする使命がある。

これまでの日本の大気化学研究の進展と、今後の大気化学研究の課題は以下のようにまとめられる。

(1) 対流圏のオゾン

対流圏のオゾンは水酸基(OH)を通じて大気の酸化能力(oxidizing capacity)を支配するとともに、その毒性により農作物を含む陸上生態系に悪影響を与える(図 1-2)。このことより、大気質(air quality)に多大な影響を与える対流圏大気化学の鍵となる成分である。また産業革命以降の経年的な増加により、オゾンは正の放射強制力をもつ。

オゾンを生成する光化学反応過程は比較的良く理解されているため、これまで日本をはじめとする世界各地の地上観測や航空機観測においては、詳細かつ定量的なオゾンやオゾンの前駆気体に関する時空間変動、発生源、輸送過程、光化学反応過程の研究が実施されてきた。これらの研究から、日本のオゾンの経年的増加傾向、アジア大陸での前駆気体排出の影響、各種炭化水素類のオゾン生成への寄与、窒素酸化物の各種発生源の寄与と化学変化・消失過程、OH ラジカルの動態、アジア大陸から西太平洋さらには北アメリカへの汚染大気の流出過程、バイオマス燃焼の影響などが明らかとなってきた。これらの研究は、高精度・高時間分解の各種測定器の開発によって支えられてきたことも特筆すべき事項である。一方において、三次元化学輸送モデルを使った研究により、これらの諸過程の定量的な見積もりがおこなわれてきた。

今後のオゾン研究においては、以下の研究の発展が必要である。

- A> 中国などアジア大陸内やその流出領域でのオゾンや前駆気体の観測ネットワークの確立による実態把握が必要である。これまで都市域では観測が行なわれてきているが、より空間代表性の高い場所での連続観測データの取得が必要である。将来的には静止衛星による観測が強く望まれる。
- B> オゾン化学において最も理解が遅れている課題のひとつである各種揮発性有機化合物(VOC)の動態把握が必要である。各種のVOCはそのオゾン生成能力が大きく異なっているにもかかわらず、日本国内でも継続的な観測がなされていないため、観測体制の確立が必要である。
- C> オゾン化学に影響するハロゲン化合物や各種の不均一反応についても研究が必要である。
- D> 地表のオゾン濃度変動や、温室効果として重要な上部対流圏オゾンの濃度変動は、境界層内の大気の鉛直混合や境界層から自由対流圏へのオゾン・前駆気体の鉛直輸送過程が重要な役割を果たしている。これらの過程の定量的な理解が必要である。
- E> オゾンや前駆気体の化学反応過程・輸送過程を取り入れた、数値モデル計算により、より

詳細かつ信頼性の高い各種発生源とオゾン濃度との関係の評価が必要である。特に、アジア内や大陸間での越境汚染に関する研究が必要である。

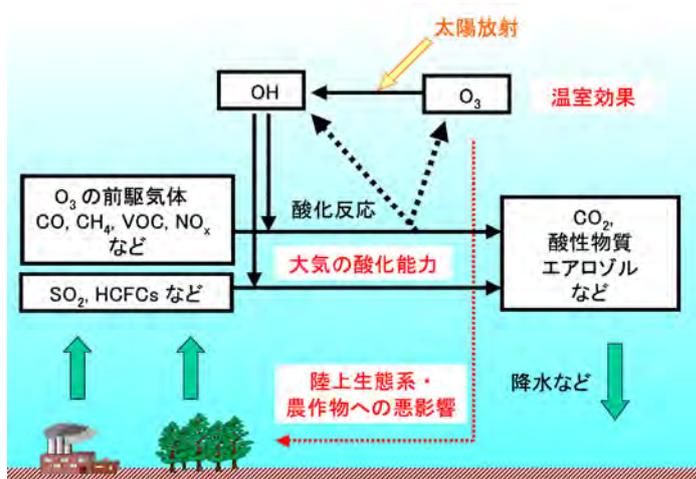


図 1-2. 対流圏オゾンの重要性

(2) 対流圏エアロゾル

対流圏のエアロゾルは、直接効果(エアロゾルの太陽放射の吸収・散乱)および間接効果(エアロゾルの雲粒生成過程を通じて引き起こす、雲の反射率や雲量の変化による放射効果)により地球の放射収支に影響をおよぼしている(図 1-3)。後者は雲のライフサイクルにも影響しており、降水の変調も引き起こすことが予想されている。また雪氷に沈着した光吸収性エアロゾルによる雪氷の融解促進作用もある。これらの効果はエアロゾルの物質特性が深く関わっており、エアロゾルは放射および雲過程を介して、気候に対して大きな影響をもつと考えられている(図 1-4)。またエアロゾルは健康(呼吸器など)や視程に悪影響をおよぼすため、大気質の観点からも重要である。

エアロゾルの動態とその気候影響に関しては、近年、著しくその研究が進展してきている。その原動力のひとつは実時間型(オンライン)のエアロゾル測定器などの高精度・高時間分解能エアロゾル測定器の開発と観測である。またもうひとつはエアロゾルの気候影響に関する詳細かつ大規模な数値モデル計算の開発と実行がある。さらに、人工衛星データによるエアロゾルや雲の解析研究の進展もあげることができる。これらの研究の結果、日本や西太平洋域の無機・有機・ブラックカーボン(BC)・ダストエアロゾルの動態、エアロゾルの物理化学特性と吸湿特性・雲凝結特性との関係、BC エアロゾルの混合状態(他のエアロゾル成分により被覆されているかどうか)、エアロゾルの粒径分布と新粒子生成イベントの様相、アジアのエアロゾルの光学的な厚み・単一散乱アルベド、ライダー観測による光消散係数の高度分布、ダストの発生過程と輸送過程、アジアにおけるエアロゾルの直接・間接放射強制力の地上観測・衛星観測・数値モデル計算からの推定など

が実施されてきた。

今後のエアロゾル研究においては、以下の研究の発展が必要である。

- A> エアロゾル(化学組成、粒径、混合状態など)とその光学特性(消散係数、単一散乱アルベドなど)、そして鉛直積算の光学的物理量(光学的な厚みなど)の同時観測による、三者の統合的な理解が必要である。沖縄県の辺戸岬観測所がこの条件を満たしており、今後も継続したデータの蓄積が必要である。また、緯度による不均一性の把握のため、九州の福江島での観測体制の確立も望ましい。さらにこれまで観測がほとんどおこなわれてきていない観測の空白域である、アジア大陸内での観測ネットワークの確立が必要である。国連環境計画(UNEP)のABC-Asiaと連動して推し進める必要がある。
- B> 大気上端での放射強制力は温室効果気体と散乱性エアロゾルの直接効果と間接効果により主として決まる一方、地表面での放射強制力はBCなどの光吸収性エアロゾルの影響が大きい。このBCの光吸収効率や大気中の寿命はBCの粒径や混合状態に依存している。従って、BCの総量とともに、BCの粒径分布や混合状態の把握が必要である。また光吸収に対するダスト粒子の影響の評価も必要である。
- C> 有機エアロゾルは微小エアロゾル質量の約20-50%程度をしめているにもかかわらずその組成や生成過程の理解が大きく遅れている。その動態の把握と共に、二次有機エアロゾル生成過程におけるエアロゾル相や液相での反応の役割などの解明が必要である。また吸湿・雲凝結核特性、あるいは光吸収特性や新粒子生成イベントでの役割など、気候影響に関係する特性の把握が必要である。
- D> 気候モデルによるエアロゾル間接効果の推定の不確定性は、エアロゾルからの雲粒生成と、その結果が影響する雲水から雨水への変換(オートコンバージョン)のパラメタリゼーションに起因するところが大きい。有機エアロゾル成分の雲凝結核・氷晶核特性への影響に関する実験・観測による評価、エアロゾル・雲同時観測による両者の関係の把握、数値モデルによるエアロゾルの粒径分布の再現性の向上、詳細なモデルを駆使したパラメタリゼーション手法の確立などが必要である。
- E> アジア内や大陸間での越境汚染に関する研究が必要である。このために、境界層から自由対流圏へのエアロゾル・前駆気体の鉛直輸送過程や湿性沈着過程の定量的な理解も必要である。
- F> これらの諸過程を取り入れた数値モデル計算により、より詳細かつ信頼性の高いエアロゾルの放射強制力の推定と、雲過程など各種のフィードバックを含めた気候システムの中での役割に関する研究が必要である。

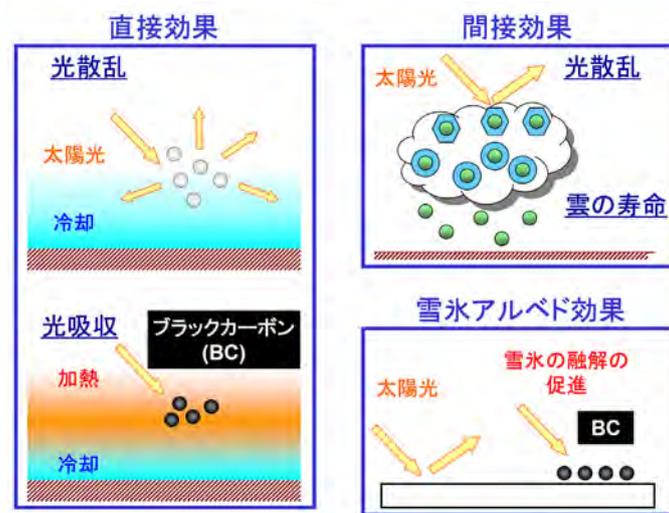


図 1-3. エアロゾルの直接・間接効果および雪氷アルベド効果

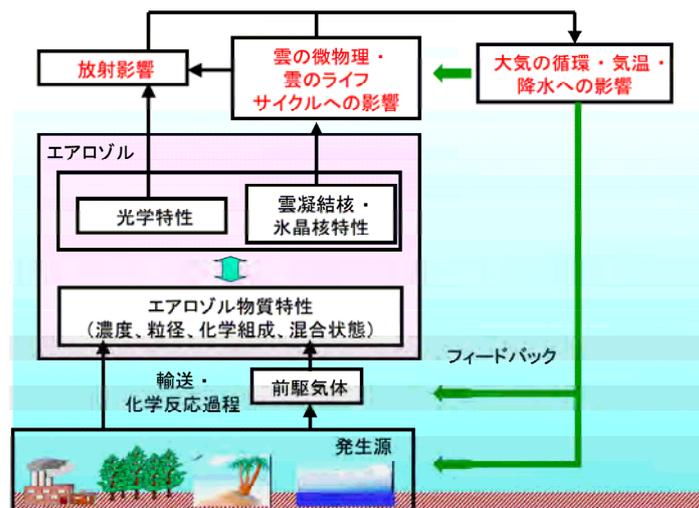


図 1-4. 対流圏エアロゾルの重要性

(3) 長寿命温室効果気体

人間活動に伴う長寿命温室効果気体(二酸化炭素(CO₂)、メタン(CH₄)、一酸化二窒素(N₂O)、ハロカーボン類)の放出による地球温暖化は、人類が直面する最も深刻な環境問題である。これらの成分の濃度増加の原因とそれを支配する地球規模の循環メカニズムを解明し、将来の濃度予測と濃度増加の抑制対策を可能にすることが大気化学に課せられた大きな研究課題となっている。

わが国における大気中温室効果気体の研究は 1970 年代後半に開始され、大学、国立試験研究機関、現業官庁によって拡大が進められた結果、世界的にみても特徴ある多くの成果が得られている。温室効果気体を長期にわたって連続モニタリングするための地上観測所が国内・国外に設置され、また船舶、航空機、気球など機動性に富んだ観測プラットフォームにより広域にわたる立体的な観測も積極的に展開されてきた。このような観測により世界トップレベルの精度のデータが取得され、それを大気輸送モデルなどで解析することにより、人間活動による CO₂ の大気への蓄積と陸上生物圏および海洋による吸収の年々変動を推定することが可能となった。さらに CO₂ や CH₄、N₂O の全球循環をよりよく理解するために、それらの同位体比の精密観測も進められ、また CO₂ 循環については大気中酸素の高精度観測も実施され、発生・消滅過程の解明と量的評価に有効に利用されてきた。温室効果気体の循環や気候との係わりを理解するために南極やグリーンランドで掘削された氷床コアの分析も精力的に実施されてきた。

しかしながら依然として人為起源気体の収支の量的評価には大きな不確定があり、また気候変動に伴う循環の変化や、近年の CH₄ 増加の頭打ちなど、理解できていない現象が多々あるのが現状である。これらの課題を解決するためには、濃度のみならず各種の同位体比および関連要素など、多成分の同時観測を長期間にわたって実施していくことが不可欠である。また、連続測定装置を搭載した CO₂ の定期旅客機観測や、地球全体をカバーできる温室効果ガス技術衛星 (GOSAT) によって得られる大量の濃度データの解析にも大きな期待が寄せられる。さらに、観測結果を基にして全球規模の循環を高い信頼度で定量解析するためには、より高度な大気輸送モデルの開発とそれを基にした収支・循環解析法の高度化が不可欠である。将来の気候変化に対する温室効果気体循環の応答に関する研究も今後の重要な科学的課題である。

(4) 陸上生態系・海洋への影響および成層圏大気化学との連携

大気化学は従来の大気中の化学反応のみを研究する研究分野の枠を超えて、地球システムへの影響をその研究範囲とし、地球科学の中で重要な位置づけをもつにいたっている。その中で、海洋や陸上生態系とのインターフェースに関する研究が、新たな研究領域として発展し始めている。海洋は二酸化炭素のリザーバのみならず、多くの気体成分や海塩エアロゾルの発生源である。また大気から海洋への栄養塩の沈着は海洋の生物生産性に大きな影響を及ぼしている可能性がある。オゾン層は農作物など陸上の植生に悪影響を及ぼす一方において、陸上の植生は各種の VOC や有機エアロゾルの主要な発生源である。これらの多圏相互作用の研究が今後必要である。

IGAC では対流圏大気化学を扱うが、成層圏大気化学とは放射や物質交換により密接に関連している。地球の気候変動にともなう大気環境変化の推定などにおいては、両者を一体として扱う研究が必要である。

また全ての項目に共通するが、大気物質の水平・鉛直輸送(境界層内、境界層と自由対流圏、対流圏と成層圏、低緯度と中高緯度)や物質の拡散・混合(乱流や層流によるもの)は、物質分布に対して多大な影響を与えている。また逆に、温室効果気体やエアロゾルは大気のさまざまなス

ケールの循環や雲・降水過程に影響を及ぼす可能性がある。これらの課題の解明のため、今後より密接に大気力学研究グループとの共同研究を推進していくことが必要である。

2. 国際 IGAC と大気化学研究の動向

2. 1. 国際 IGAC

国際 IGAC は、1980 年代後半に、IGBP(International Geosphere Biosphere Programme、国際地球圏生物圏プログラム)と、IAMAS(International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences、国際気象学大気科学協会)の下に CACGP(Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution)の共同のプロジェクトとして立ち上げられた(<http://www.igac.noaa.gov/>)。2002 年より第二期にはいった IGAC は、その大気化学研究の目的として、地球システムにおける大気化学の果たしている役割を理解することと、各地域の排出源や沈着量の変化、長距離輸送、そして化学的変容過程が大気質(air quality)におよぼす影響を定量すること、をあげている。そして今後10年間の研究課題として、以下のものを設定した。

1. 大気化学がはたしている気候変動の増長／減少効果の解明

- (1)オゾンとその気候変動への影響解明
- (2)エアロゾルの分布、物理・化学的特性、直接的放射効果の気候影響の解明
- (3)エアロゾルの雲、降水、領域的な水循環への影響解明
- (4)気体やエアロゾルの大気中への放出や沈着がはたしている、気候強制力の地域的なパターンへの影響解明

2. 各種物質の排出／沈着、輸送過程、化学的変容過程が大気質や対流圏の大気化学組成に与えている影響の解明

- (1)オキシダント、エアロゾル、エアロゾルの前駆気体の排出輸送量、輸送過程、化学的変容過程の解明
- (2)地表面における大気質に対する大陸間規模での輸送影響の解明
- (3)大気の浄化能力(酸化能)への人間活動の影響解明

これらの第二期 IGAC の研究課題は、それまでのIGACの研究課題と異なり、気候変動と大気質という 2 点を軸として絞り込んでいることが特徴である。これは幅広く展開されている個々の大気化学研究を、人間社会との接点という座標系から位置づけなおしたことによる。これらの課題の主要な研究対象はオゾンとエアロゾルである。またこの第二期のIGACでは、それまでのIGACに含まれていた海洋や陸上生態系とのインターフェースに関する研究課題が、それぞれIGBPの他のコアプロジェクトである SOLAS および iLEAPS に独立したことが違いとしてあげられる。これは、それぞれの分野が発展・成熟したことに対応するものであるが、同時に複数のコアプロジェクトに横断した研究活動を実施することにより、総合的に研究を発展させる工夫がとられている。

これらの研究課題の実施において、第二期IGACでは以下のような研究が必要であるとしてい

る。

- (1)大気中の短・長寿命化学成分のグローバル分布を正確に把握すること。そしてそれらの濃度変動の時間変化を把握すること。
- (2)大気中の化学成分の分布をコントロールしている諸過程と、これらの諸過程が気候変動や大気質に果たしている役割について本質的な理解をすること。
- (3)大気中での各種プロセスに関する知見を地球システムの応答やフィードバックとともに統合化することにより、今後数十年の大気化学成分の濃度変動を予測する能力を向上させること。

国際IGACの活動は18人よりなる委員会(SSC, science steering committee)を中心として実施されている。IGAC SSCはCACGPと交互に2年毎に600人規模の国際研究集会を開催している。またこれらの定期的な研究集会とは別にテーマを特化した各種のワークショップを開催したり、ニュースレターの発行して情報の発信をおこなっている。さらにタスク(task)とイニシアティブ(initiative)と呼ぶ研究活動の認定と援助を通じて、IGACの研究課題の実施をおこなっている。タスクは世界の大気化学研究者から申請された研究計画のうち、SSCメンバーによって認定したもので、毎年、研究活動・成果のレビューを行っている。タスクの認定は、その研究課題のレベルや国際性、データの質とコントロール維持体制(QA/QC)、データ公開原則など、7項目にわたる審査基準に基づいて実施されている。現在、表 2.1-1 のように10個のタスクが実施されている。またイニシアティブは、今後の研究が必要とされる判断した分野の研究を促進するために、トップダウン的に組織される、既存の研究活動を統合化するフレームワークである。現在、表 2.1-2 のように3つのイニシアティブが実施されている。

日本からはIGAC創立当初からSSCメンバーを一人出してきており、その運営に携わってきた。また現在、日本が関わるタスクはMega-cities: Asiaだけであるが、このタスクでは近藤豊氏(東京大学)が研究代表者を務めている。このタスクに関係した研究については、後述の複数の研究課題に対して貢献をおこなってきている。またイニシアティブのうち、AC&Cについては日本から複数の研究者が参加し、貢献をおこなってきている。

表 2.1-1 国際 IGAC で実施されているタスク

- **Mega-cities: Asia**

研究代表者: Y. Kondo (日本・東京大学), Y. J. Kim (韓国・GIST)

アジアのメガシティから排出される人為起源物質によるオゾン・エアロゾルへの影響と、その結果として生ずる気候や大気質への影響をアジアでの地上観測を中心に研究。

- **AICI: Air-Ice Chemical Interactions** (IGBP/SOLAS でも認定済み)

雪氷と大気との相互作用(春季極域の境界層内でのハロゲンによるオゾン破壊等)を研究。

- **ITCT-Lagrangian-2k4: Intercontinental Transport and Chemical Transformation**

NASA(INTEX), NOAA, DLR, CNRS 等が協力して、北米とヨーロッパの間のオゾン・エアロゾル等の大陸間輸送を研究(2004年に観測を実施し、2007年に終了)。

- **AMMA-AC: African Monsoon Multidisciplinary Analysis - Atmospheric Chemistry**

(WCRP/CLIVAR でも認定済み)

西アフリカにおける気候変動と大気質(バイオマス燃焼、雷、人間活動のオゾンやエアロゾルへの影響)を航空機観測を中心に研究。

- **DEBITS: Deposition of Biogeochemically Important Trace Species**

大気中のガス・エアロゾルの地表面への乾性・湿性沈着量を、アジア、アフリカ、アマゾンを中心にネットワーク観測により研究。

- **POLARCAT: Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate Chemistry, Aerosols and Transport**

2007-2009年のInternational Polar Yearに北極域で実施する研究。北極ヘイズ、ヨーロッパやアジアからの汚染大気の輸送、森林火災の影響などを航空機・地上・衛星観測を中心に研究。

- **HitT: Halogens in the Troposphere** (IGBP/SOLAS でも認定済み)

大気中ハロゲンの動態や、その大気の酸化能力、オゾン収支、エアロゾルの生成や成長への影響など、対流圏大気化学や気候影響の中での役割を明らかとする研究。

表 2.1-2 国際 IGAC で実施されているイニシアティブ

- **AC & C: Atmospheric Chemistry and Climate** (WCRP/SPARC との共同)

第一期(2006-2009年)の研究計画においては、大気化学と気候の相互作用に関する数値モデルの表現の改善を目指す。各種のグローバルモデルの比較活動(CCMVal, AeroCom, ACCENT - MIP)の支援とともに、今後の研究の方向と鍵となるプロセスを明確化することを目指す。

- **ACPC: Aerosols, Clouds, Precipitation, and Climate** (IGBP/iLEAPS および WCRP/GEWEX との共同)

大気中のエアロゾル、雲、降水、気候の相互作用について、現在の知見を整理し、今後の研究の

方向を明確化することを目指す。長期データのデータベース作成、気候変動モデルのパラメタリゼーションを改善するための高時空間分解能モデルの開発、観測戦略の策定などを実施する。

- **Improving Representation of Wet Deposition**

液相化学反応や湿性沈着など、液相のプロセスの理解を深め領域モデルやグローバルモデルの表現を改善することを目指す。

2. 2. 国際的な研究動向

(1) IPCC レポートと気候変動

人間活動に起因する地球温暖化問題については、1990 年以降ほぼ5～6 年毎に科学的な研究成果に基づいたレビューが気候変動に関する政府間パネル(IPCC)によって行われ、これまでに第1次～第4次の評価報告書が発表されてきている。これらの報告書は数千人の専門家による査読を経たもので、最新の科学的知見の集約となっている。2007年に発表された第4次報告書では、20世紀後半以降の地球温暖化は、人為起源温室効果気体が原因である可能性が非常に高い、との結論が示されている。

地球温暖化を引き起こす原因となる正の放射強制力(グローバル平均)について見てみると、二酸化炭素(CO₂)、メタン(CH₄)、一酸化二窒素(N₂O)、ハロカーボンなどの大気中に直接放出される長寿命の温室効果気体の寄与が大きい。これらの成分は長寿命であるがためにグローバルに比較的一様な濃度で存在し、またその放射強制力推定の不確定性も小さい。これに対し、大気中で前駆気体から光化学反応により生成するオゾン(O₃)は、二酸化炭素、メタンについて3番目に大きな正の放射強制力をもつとされながらも、大気中の寿命が短い(数週間から数ヶ月)ためその影響は空間的に不均一(人為的な前駆気体の放出量の大きい領域付近で影響も大きい)であり、またその不確定性もやや大きい。さらに大気中のエアロゾルは太陽放射を散乱し(直接効果)、負の放射強制力をもつことにより、温室効果気体による地球の温暖化を一部打ち消しているとされているが、その寿命はさらに短く(数日から数週間)、またその不確定性も大きい。エアロゾルはまた雲凝結核や氷晶核として働くことにより雲物理に影響すると考えられているが、エアロゾルによる雲のアルベド(反射率)効果は第4次IPCC報告書の放射強制力の中で最も不確定性が高く、さらに雲の寿命効果についてはその不確定性などのために今回の報告書では評価が見送られた。エアロゾルの直接効果とアルベド効果だけでも、グローバル平均すると長寿命温室効果気体の放射強制力の半分を打ち消していると見積もられている。このように、長寿命の温室効果気体の振る舞いや収支については比較的良く理解が進んでいる一方において、短寿命の温室効果気体(オゾンなど)とエアロゾルは東アジアなど人為的な影響が大きい領域ではグローバル平均よりも大きな放射強制力をもたらす可能性があり、その不確定性の高さから今後重点的な研究が必要とされている。

オゾンは大気中で光化学的に生成されるが、エアロゾルも大気中に直接放出される1次エアロゾル(ブラックカーボンや、黄砂などの土壌粒子など)とともに大気中で前駆気体から光化学的に生成される2次エアロゾル(無機・有機エアロゾル)が存在する。このように気候変動のメカニズムを理解し、数値モデルによる将来の予測精度を向上させるためには、長寿命の温室効果気体の動態の理解と共に、オゾンやエアロゾルに関する大気化学の知見が必要であることは明らかである。しかしながら一方において、大気化学は多種多様な物質や物理化学プロセスが関与するため、理解の進展が容易ではなく、また数値モデル計算を実行する上で計算機コストが高い。このような中で、地球の気候変動予測に対してどこまでの大気化学の理解が必要であるのか、また限られ

た計算機資源の中で例えば計算の空間分解能を向上するのとある種の大気化学プロセスを入れるのとではどちらの方が精度が向上するのか、といった点を判断し優先順位をつけることが必要である。これは気候変動予測に直結しない各種プロセスの純粋理学的探求を否定するものではない。しかし気候変動予測という地球システム全体の理解の進展の中で成り立つ予測研究において、さまざまなプロセスの中での大気化学プロセスの果たしている役割の重要性を示していくこと、そのような重要なプロセスを発見していくことが大気化学研究者の使命のひとつである。

(2) HTAPと越境汚染

地球規模での越境汚染もまた人類の活動に直接影響する大気質の問題において重要課題である。大陸間規模での中距離輸送越境汚染については、国連の欧州経済委員会が中心となったTFHTAP (Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution) の中間報告が2007年に発表された。その中では、オゾンやエアロゾルの大陸間規模・半球規模での輸送が各大陸での濃度に影響を与えていることが観測から示されていること、そして数値モデル計算によりこれらの輸送を支配しているプロセスの理解が進んできていることが報告されている。しかし一方において、輸送もとと輸送先の輸送量の関係、いわゆるソース・レセプター (source-receptor) 関係については、評価に使用されるモデル間に結果のばらつきがあることも報告されている。TFHTAPでは、2010年の最終報告へ向けて、モデル間の比較研究や、これらの差異を生み出している輸送や化学反応過程の特定などをしていくことになっている。

オゾンやエアロゾルの大陸間規模・半球規模での輸送量の評価は、これらの空間スケールでの大気化学研究の知見を直接的に必要とする分野である。またアジアにおいては、大陸内規模での越境汚染に対する研究もその必要性が増している。さまざまな対策を策定する上においては、正確な科学的知見が不可欠である。大気化学はこのような知見の提供に対しても、大きな責務をおっている。

(3) ABCと統合的環境影響研究

国連環境計画 (UNEP) のABC (Atmospheric Brown Clouds) プロジェクトでは、エアロゾルを中心に、長寿命温室効果気体 (CO₂など) や短寿命温室効果・大気汚染気体 (O₃など) も含めた3者の総合的な影響を評価し、その水資源、農業、健康影響などを統合的に研究することを目指している。Brown Cloudsとは人為的に発生した光吸収性のエアロゾル (ブラックカーボンなど) を象徴したもので、太陽放射エネルギーの再分配 (地表過熱に使われていた太陽放射が光吸収性エアロゾルの存在により大気加熱) を引き起こす重要な役割を果たしている。光吸収性のエアロゾルの重要性は1999年を中心にインド洋周辺で実施されたINDOEX観測を通じて明らかとなり、2001年春季の西太平洋域でのACE-Asiaでもその重要性が確認された。

第1期のABCプロジェクト (2002 - 2007) ではアジアを中心に研究を展開してきており、地表でのエアロゾルの化学組成や粒径分布およびエアロゾルの光学特性、そして鉛直積算されたエアロゾルの光学的厚みや単一散乱アルベドなどの継続的な観測ネットワークの立ち上げを実施してきた。

モルジブ島と韓国のチェジュ島の観測所は、これら全ての観測を実施する南アジアおよび東アジアのスーパーサイトとして位置づけ、これを補うサイトをアジア各地に準備してきている。日本では沖縄の辺戸岬観測所をスーパーサイトに匹敵する観測拠点として整備してきている。2005年にはモルジブ島とチェジュ島の各サイトを中心に集中観測も実施された。アジアにおける継続的なネットワーク観測は、エアロゾルなどの動態を把握し、また数値モデル計算の検証・改良にも不可欠なものである。今後、測定の標準化とトレーサビリティの確立およびデータベースの整備などが必要となっている。

2008年から開始された第2期では世界の他の領域でのBrown Cloudsも対象とされることとなり、アフリカも別のABCプロジェクトとして研究を進めていくことになっている。

3. 研究課題

国際的な IGAC は、対流圏中の化学成分(気体、エアロゾル)のグローバルな分布を正確に把握し、その濃度分布の時空間変動を支配する基本プロセスを解明し、その気候変動および大気質 (air quality) への影響を理解・予測する能力を向上させることを、活動の目的としている。また海洋や陸上生態系と大気圏との相互作用については、国際 SOLAS や iLEAPS との連携により研究を実施してきている。

日本学術会議の IGAC 小委員会ではこの方向性を検討した結果、日本の大気化学研究の今後の中期(約5年)から長期(約10年)の研究目的として、「気候変動」、「大気質」、「陸上生態系・海洋への影響」の3課題を基本課題として位置づけた。

また日本が位置する東アジアを中心とした研究の発展と、日本国内の研究連携の強化が重要であることが確認された。極域や熱帯などの研究も東アジアを取り巻く環境としての位置づけとして研究されることが必要である。

次章以降では、日本で今後推し進めていくべき大気化学研究について示した。

3. 1. アジアの対流圏オゾンとその影響

対流圏におけるオゾンは、高濃度で存在すると人体や生態系にとって有害な働きをすることはよく知られている。一方で成層圏におけるオゾンが、生物に有害な紫外線が地表面に届くのを防ぐ役割を果たしており、同じオゾンでも成層圏と対流圏で役割が対照的であることから、成層圏オゾンは“Good Ozone”、対流圏オゾンは“Bad Ozone”と呼ばれてきた。

(1) 領域化学輸送モデルを用いた地域規模オゾンの動態

“Bad Ozone”である対流圏オゾンが、人間社会の工業化とともに地球規模で増加しているのではないか、という懸念がもたれている。ヨーロッパの山岳地帯で得られた観測データからは、過去100年間のうちにオゾン濃度が ~ 10 ppbv から ~ 45 ppbv にも増加している様子が見られる[Marenco et al., 1994]。日本においても同様で、1970年代以降減少してきた高濃度オキシダント現象(光化学スモッグ)の増加が顕在化するようになった。その要因として、アジアにおけるオゾン前駆物質の排出量が急増していることが示唆されており、その地域的な影響を定量化することが課題であった。図 3.1-1 に、4月の地表オゾンの平均分布と、そのうちの北東アジア起源のオゾンの寄与を示した。北東アジアからのオゾン前駆物質を起源とするオゾンは 5-10 ppbv 程度の寄与を占め、特に本州以南でオゾンの越境輸送の寄与は大きい。本州付近のオゾン濃度が約 50-60 ppbvであることを考慮すると、平均で約 1/10 \sim 1/6 が東アジア起源であり、これは日本において特に都市以外での環境基準超過に寄与していることが考えられる[Tanimoto et al., 2005]。

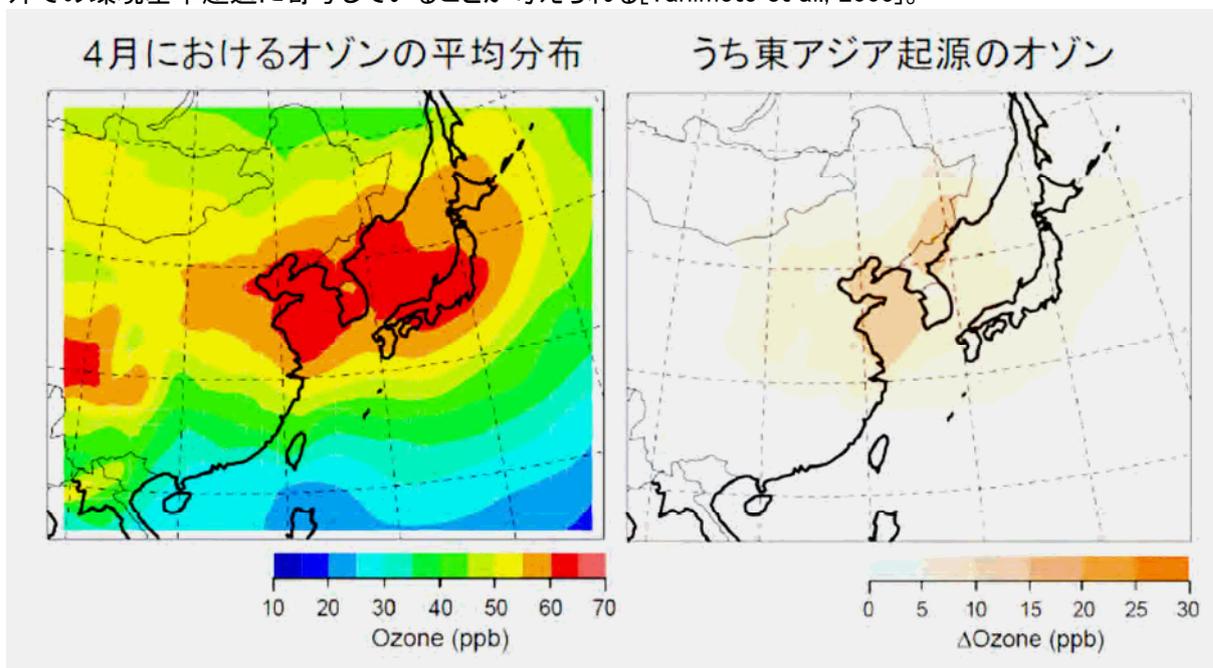


図 3.1-1. 4月の地表オゾン濃度の平均分布と北東アジア起源のオゾンの寄与 [Tanimoto et al., 2005]。

(2) オゾン汚染の半球規模長距離輸送

光化学オキシダントなどの大気質の問題は、都市や領域規模の汚染だけでなく、他の汚染領域からの長距離輸送も無視できない。とくに冬季から春季にかけては、オゾンや前駆気体の大気中寿命が長く、遠方からの輸送の影響があると考えられる。どの領域からどれくらい汚染物質が輸送されるかというソース・レセプターの問題については、現在研究が活発に進められており、とくにモデル研究の側面では、大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース HTAP (WCRP と IGBP の cross cutting プログラムである AC&C: Atmospheric Chemistry and Climate の活動の一部)にて、大陸～半球規模の輸送過程を中心に詳細な議論が行なわれているところである。このタスクフォースにおける活動は、全世界の種々の全球化学輸送モデルが参加するモデル間相互比較実験であり、各モデル間のグリッドスケールおよびサブグリッドスケールの輸送過程や沈着過程の違いなどを検討している。日本へのオゾン汚染の輸送については、化学輸送モデルを用いたタグ・トレーサー実験 (Sudo et al., 2007) が行われており (図 3.1-2)、春季にヨーロッパや北米領域起源のオゾンが効率的に日本の地表付近に輸送されて来る様子が計算されている。また、夏季の日本の高濃度オゾンの発生に対しては、中国域からの輸送だけでなく、韓国からの輸送の寄与も顕著であることが確認されている。今後は、このようにモデルにより計算されているアジア域への輸送過程を観測と融合して、オゾンだけでなく他の汚染物質も含めて評価していくことが求められる。

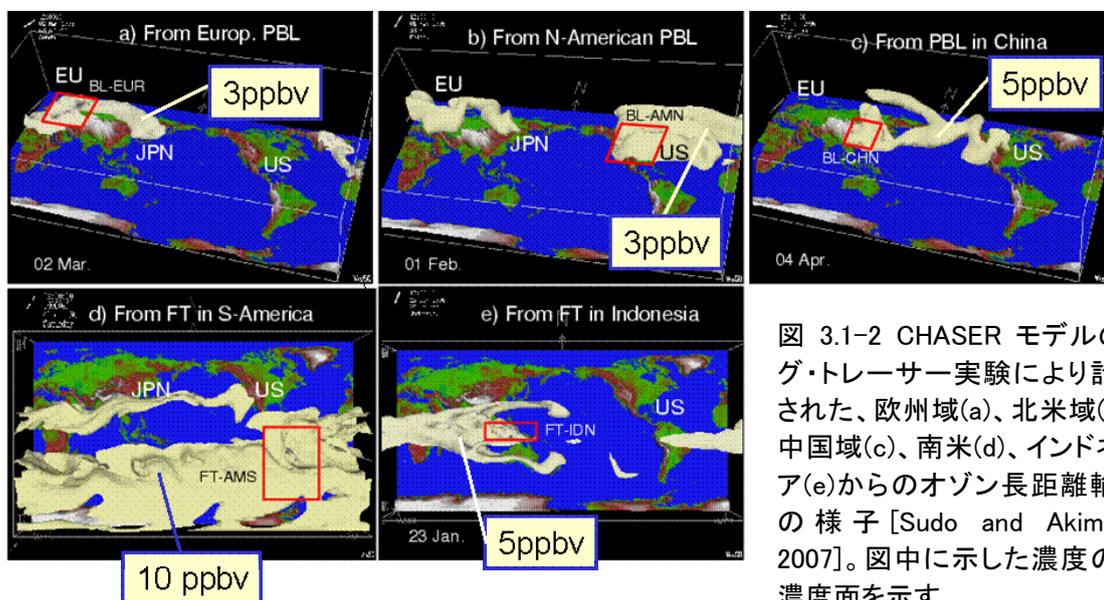


図 3.1-2 CHASER モデルのタグ・トレーサー実験により計算された、欧州域(a)、北米域(b)、中国域(c)、南米(d)、インドネシア(e)からのオゾン長距離輸送の様子 [Sudo and Akimoto, 2007]。図中に示した濃度の等濃度面を示す。

(3) 都市大気における高濃度オゾンの予測: 化学天気予報

近年日本では、とくに春先に光化学オキシダント注意報レベルを超えるような高濃度オゾンが観測されており、大気汚染に関する社会的関心も再び高まりつつある。複数の領域化学輸送モデルを用いた大気質予測計算の相互比較の結果、現在のモデルは境界層内の鉛直混合を正しく評価できておらず、とくに下部自由対流圏付近の高度での誤差が大きくなる傾向にあることが示された [McKeen et al., 2007]。つくばにおけるオゾンライダーによる観測では高度2km 付近に高濃度オゾンが存在する場合があります、モデル計算の結果夏季においてもこの高度域には中国大陸から汚染気塊が流入する可能性がある示唆された [Niwano et al., 2007]。東アジア域における汚染物質の分布は、人為起源エミッション、森林火災、積乱雲等による鉛直拡散などのさまざまな影響を受けているため、域内大気汚染物質の輸送過程のさらなる理解のため、鉛直構造まで含めた観測との比較が今後さらに重要になってくると思われる。

(4) 地表オゾンが植物に及ぼす影響

東アジアでは、オゾン前駆物質の排出量増加に伴って地表オゾン濃度が上昇し、近い将来農作物生産に深刻な影響を及ぼすと予想される [Wang & Mauzerall, 2004]。特に中国は、米と小麦の世界最大の生産国であり、世界の食料供給に影響する恐れがある。ただし、影響の予測結果はなお不確かで、以下のように改良の余地が多い。従来は、オゾン濃度から直接農作物の減収を推定したが、葉に吸収されたオゾン量から減収を推定するほうが良い [Pleijel et al., 2007]。また、減収量の推定は、小型の温室を用いた実験結果に基づいているが、屋外に比べて温室内はオゾン濃度のわりにオゾン取り込み量が多い [Nussbaum & Fuhrer, 2000]。従って、温室実験はオゾンの影響を過大に見積もるはずだが、温室を使わずに圃場のオゾン濃度を高める、開放系オゾン暴露実験の結果、逆に温室実験よりも大きな減収が見られた [Morgan et al., 2006]。アジアで最重要の農作物であるイネについては、温室を使った実験すらも少ない。従来、イネはオゾン感受性が低いとされてきたが、最近のメタアナリシスによると、ダイズなど感受性の高い種類と大差が無い [Ainsworth, 2008]。現在、中国で実施中の、イネとコムギの開放系オゾン暴露実験の結果が待たれる。

Marenco, A., H. Gouget, P. Nédélec, J.-P. Pagés, F. Karcher, Evidence of a long-term increase in tropospheric ozone from Pic du Midi data series: Consequences: Positive radiative forcing (1994), *J. Geophys. Res.*, 99(D8), 16617–16632, 10.1029/94JD00021.

Tanimoto, H., Y. Sawa, H. Matsueda, I. Uno, T. Ohara, K. Yamaji, J. Kurokawa, and S. Yonemura (2005), Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514.

IPCC (2007), *Climate Change 2007: The Physical Science Basis*. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Edited by S. Solomon et al., 996 pp., Cambridge Univ. Press, Cambridge, United Kingdom and New

York, NY, USA.

- 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.
- McKeen, S., et al. (2007), Evaluation of several PM_{2.5} forecast models using data collected during the ICARTT/NEAQS 2004 field study, *J. Geophys. Res.*, 112, D10S20, doi:10.1029/2006JD007608.
- Masanori Niwano, Masayuki Takigawa, Masaaki Takahashi, Hajime Akimoto, Masahisa Nakazato, Tomohiro Nagai, Tetsu Sakai and Yuzo Mano; "Evaluation of Vertical Ozone Profiles Simulated by WRF/Chem Using Lidar-Observed Data", *SOLA*, Vol. 3, pp.133-136 (2007) .
- Ainsworth, E.A. (2008), Rice production in a changing climate: a meta-analysis of responses to elevated carbon dioxide and elevated ozone concentration, *Glob. Change. Biol.*, 14, 1642-1650, doi: 10.1111/j.1365-2486.2008.01594.x
- Morgan, P.B., T.A. Mies, G.A. Bollero, R.L. Nelson, and S.P. Long (2006), Season-long elevation of ozone concentration to projected 2050 levels under fully open-air conditions substantially decreases the growth and production of soybean, *New Phytol.*, 170, 333-343.
- Nussbaum, S. and J. Fuhrer (2000). Difference in ozone uptake in grassland species between open-top chambers and ambient air, *Environ. Pollut.*, 109, 463-471.
- Pleijel, H., H. Danielsson, L. Emberson, M.R. Ashmore, and G. Mills (2007), Ozone risk assessment for agricultural crops in Europe: Further development of stomatal flux and flux-response relationships for European wheat and potato, *Atmos. Environ.*, 41, 3022-3040.
- Wang, X. and D.L. Mauzerall (2004), Characterizing distributions of surface ozone and its impact on grain production in China, Japan and South Korea: 1990 and 2020, *Atmos. Environ.*, 38, 4383-4402.

3. 2. アジアのエアロゾルとその気候変動影響

(1) アジア研究の位置づけ

アジアは世界的に見ても人為起源エアロゾルの濃度が高く、またさらに今後20年間は増加することが予想されている。またアジアのエアロゾルは、人為起源エアロゾル以外にもダスト粒子も多く存在し多様性が大きい地域である。これらのエアロゾルは、直接的・間接的にアジアの放射場や気候に対して少なからず影響をおよぼしていると考えられる。アジアのエアロゾルの動態把握、変動過程の解明、気候影響評価、そして将来予測能力の獲得は、純粋な理学的な見地からも必要であるとともに社会的使命でもある。

このようなアジアの大気環境変動の重要性から、各種の国際的な研究の枠組みが作られ、研究が実施されてきている。国際的なIGACの研究タスクとしてはMega-cities: Asiaがあり、2008年度からの第二期研究活動では、メガシティなどから排出された物質のアジアスケールでの大気質・気候影響の評価を目指している。また国連環境計画(UNEP)／IGBPのABC-Asia(Atmospheric Brown Cloud - Asia)では、大気中の物質とその放射・気候影響を扱うが、さらに第二期ABC-Asiaでは健康影響や食糧生産などへのインパクトも含む計画となっている。アジアモンスーンの研究としては、WCRP(世界気候研究計画)／GEWEX(全球エネルギー・水循環観測計画)のMAHASRI(Monsoon Asian Hydro-Atmosphere Scientific Research and Prediction Initiative: モンスーンアジア水文気候研究計画)があり、大気エアロゾルの大気循環への影響もその視野に入れた研究が実施されている。

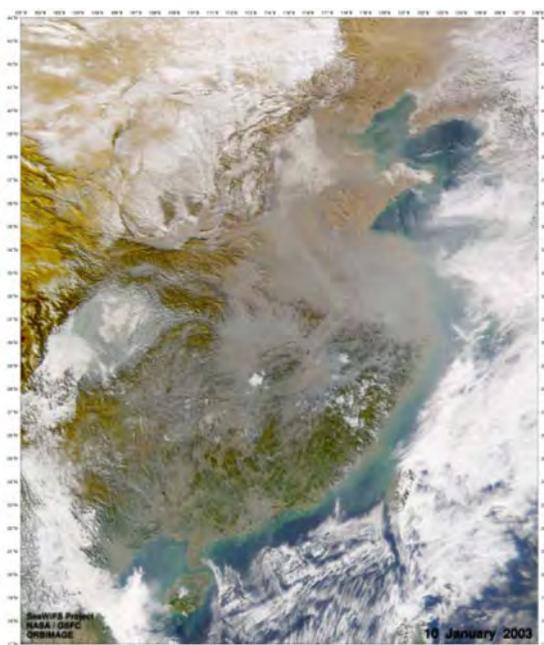


図 3.2-1 アジアのエアロゾル大気汚染(ヘイズ)。大気質の悪化と領域気候影響の2つの原因となる(画像提供:NASA)。

(2)これまでの研究

これまでの東アジアのエアロゾルの研究は、航空機を中心とした大型の観測キャンペーン研究 (NASA TRACE-P, IGAC/ACE-Asia など)、日本人を中心とした比較的小規模のキャンペーン観測 (APEX, ADEC, PEACE, IMPACT など)、地上観測ネットワークによる研究 (ABC-Asia など)、そして数値モデル計算研究により推し進められてきた。これらの研究ではまた、人工衛星データも活用されてきている。これらの研究により、アジアのエアロゾルの動態やその放射強制力の推定がなされてきた。一方において、エアロゾルによる領域的な気候変動への影響、すなわち大気の循環、雲量、降水、気温、放射量などの変動はグローバルモデルによる計算によりその評価が試みられている。これらの研究のレビューについては、4.1 章を参照のこと。

(3)今後の研究の展開

アジアのエアロゾルと領域的な気候変動の研究の発展においては、以下の幾つかの課題がある。より詳しい内容は 4.1 章で述べることとし、ここでは要約のみを示す。

A> エアロゾル (化学組成、粒径、混合状態など) とその光学特性 (消散係数、単一散乱アルベドなど)、そして鉛直積算の光学的物理量 (光学的な厚みなど) の同時観測による、三者の統合的理解:

エアロゾルと放射はこれまで必ずしも統合的な研究が十分にはおこなわれてこなかった。今後、沖縄の辺戸岬観測所を中心に、地上・航空機観測などによる統合的な観測・研究が必要である。特に放射の観点から重要な BC エアロゾルとダスト粒子およびその混合状態の研究、動態がほとんど理解されていない有機エアロゾルの研究の進展が必要である。またエアロゾルと雲との高度方向の相対的な位置関係が放射の観点から重要であり、航空機観測や衛星観測データの解析が必要である。

B> エアロゾルの時空間変動を決めている発生源、化学的変容、輸送、除去過程の理解:

アジアのエアロゾルやその前駆気体の発生量の推定にはまだ大きな不確実性があり、発生量から積み上げるボトムアップ的推計と広域観測から総量を検証するトップダウン手法による精度向上が必要である。また輸送過程については特に境界層の大気を自由対流圏へと輸送させる温暖コンベヤーベルト (WCB, 寒冷前線の温暖側での暖気の上昇) や積雲対流活動での正味の気体物質の輸送量・輸送効率、この上昇過程における降水に伴う水溶性気体や雲凝結核特性をもつエアロゾルの除去の理解が必要である。有機エアロゾルの動態把握や生成過程については理解が大きく遅れており、二次有機エアロゾル生成過程におけるエアロゾル相や液相での反応の役割などの解明が必要である。また吸湿・雲凝結核特性、あるいは光吸収特性や新粒子生成イベントでの役割など、気候影響に関係する特性の把握が必要である。また、そもそも気候影響理解のためにどこまでの理解が必要なのかという研究戦略を含めた研究が必要である。雲凝結核数濃度にも影響する新粒子生成メカニズムの解明も研究が遅れており、進展

が必要である。

C> エアロゾルの雲物理・雲のライフサイクルへの影響の理解:

エアロゾルの気候影響評価の最も大きな不確定性のひとつは、エアロゾルの雲微物理への影響と、その影響を通じた雲のライフサイクルや雲の集団としての振る舞いへの影響評価である。このプロセスのグローバルモデルにおける表現(パラメタリゼーション)の差異が、エアロゾルの間接効果推定に大きなばらつきを生んでいる。従って、複雑かつ非線形なプロセスを経験則ではなく物理化学法則を基盤にしていかに表現する(パラメタライズする)ことが、必要である。エアロゾルそのものの物理化学特性についてみると、雲凝結核特性における有機エアロゾルの影響の解明、また BC エアロゾルや有機エアロゾルも含めたエアロゾルの氷晶核特性の体系的研究が必要である。上昇する空気塊中でのエアロゾルの雲粒への活性化については、巨大エアロゾルや有機成分の存在による動力学的な活性化制限(kinetic limitation)効果の理解とそのパラメタリゼーションなどが必要である。またこのようにして決まった粒径分布をもつ雲粒からの雨水への変換(オートコンバージョン)は第2種間接効果の鍵であり、衝突併合過程に関する詳細なモデル研究に基づくパラメタリゼーションが必要である。さらにこれらの雲微物理の雲のライフサイクルや雲の集団としての振る舞いへの影響についても、詳細な数値モデル研究が必要である。エアロゾルの物理化学特性と、雲物理・雲力学という異なった要素が関連しているため、両者の効果を分離するような統合的な航空機観測による実証を行なう必要がある。

D> エアロゾルの直接・間接効果と大気の大循環への影響の理解:

アジアにおける直接効果の影響評価の鍵は BC エアロゾルであるが、その放射効果は雲層の上か下かにより大きく変わるため、エアロゾルと共に雲の3次元分布も数値モデル計算により正しくシミュレートする必要がある。また間接効果については、大規模凝結による層状雲などの水雲に対しては、エアロゾルから雲粒生成や雲粒から雨水へのオートコンバージョンなどのパラメタリゼーションが重要である。氷晶を生成する深い対流や上部対流圏での巻雲(cirrus cloud)についてはエアロゾルの影響やその放射強制力の大きさに大きな不確定性があるため、素過程の理解からの積み上げが必要である。エアロゾルの気候影響評価においては、海洋混合層との結合により、大きな熱容量と応答時定数をもつ海洋の効果を含めた評価が今後より一層重要となる。また気候感度においても雲過程は最も大きな不確定要素であるため、より高い空間分解能での数値モデル計算が望まれる。これらのモデルにより、さまざまなフィードバック過程を含めた気候影響評価を進めていく必要がある。

3. 3. 越境大気汚染

(1) 国内外における越境大気汚染研究の動向

我が国における越境大気汚染問題は、従来酸性雨問題としての取り組みが成されてきた。しかし、大規模発生源である中国の急速な経済発展にともない、従来主に問題とされてきた SO_x だけではなく、自動車保有台数の増加にともなう NO_x 放出量の増加やこれによる対流圏オゾンの濃度増加と広域化、砂漠化の進展による黄砂の激化や広域化など、必ずしも酸性雨にとどまらない大気環境問題の顕在化があり、また影響の及ぶ範囲も太平洋を越えた北米から、広く北半球全体

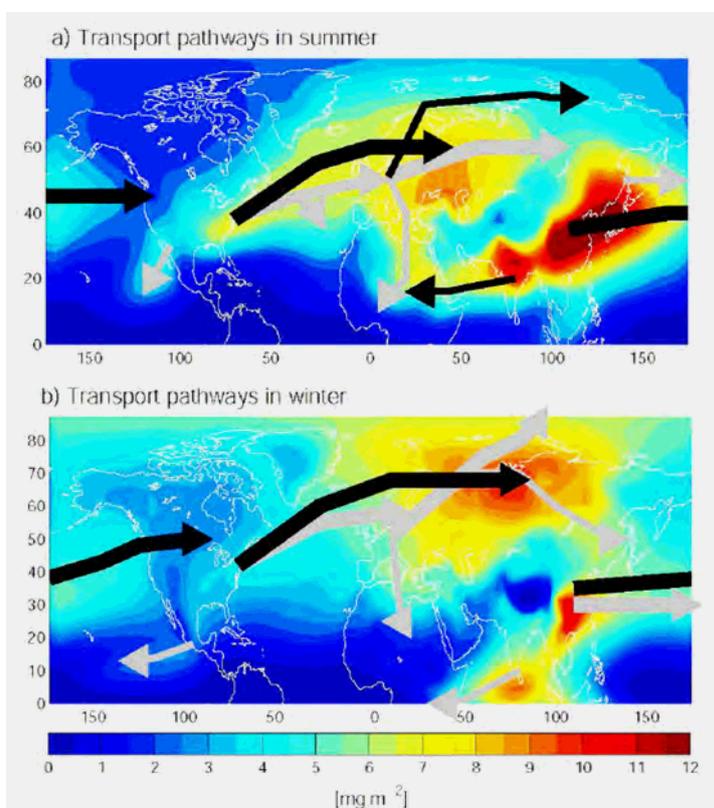


図 3.3-1：大陸間大気汚染の輸送経路 (UN/ECE, 2007)。色分けは北半球の大陸上で放出された人為起源 CO の放出から 8~10 日後のトータルカラムの 15 年平均値。灰色の矢印は 3km 以下の低層での輸送、黒の矢印は 3km 以上の中・高層での輸送を示す。

にも広がりを見せ、広域越境大気汚染として捉えられることが一般的となってきた。したがって、研究の対象となる領域も従来のアジアのみにとどまらず、アジア~北米~欧州~アジアという大陸間の長距離輸送も視野に入れたものとなっている。このような大陸間の長距離越境大気汚染については、国際的にもその重要性に関する意識が高まり、UN/ECE (United Nations/ Economic Commission for Europe) が中心となって TFHTAP (Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution) が形成され、様々な角度から検討が加えられている。同

Task Force では 2009 年に Assessment Report をまとめることを計画しているが、それに先立ち、2007 年末に Interim Report (UN/ECE, 2007) が発表された。その中では、オゾンやエアロゾル

の大陸間さらには北半球内での輸送が北半球全体にも大きな影響を与えていると指摘している。

このような長距離輸送で問題となるのは寿命が 1 週間程度以上の大気汚染物質であり、対流圏オゾン、エアロゾル、水銀、残留性有機汚染物質 (POPs) である。中でもオゾンとエアロゾルは東アジアにおいて特に重要な環境問題である。オゾンについては 3.1 章で報告されているので、

Climatologists seek clear view of Asia's smog

David Cyranski and Ichiko Fuyuno, Tokyo

An international team gathered in South Korea this week to kick off a research project on Asia's persistent brown clouds of smog. The effort is the first long-term study into the effects of the haze on local and global climate.

The brown clouds frequently envelop vast portions of Asia. They wax and wane with the seasons but can be kilometers thick, causing respiratory disease and interrupting climate cycles.

Researchers on Project Atmospheric Brown Clouds, run by the United Nations Environment Programme (UNEP), are hoping that their study of the smog will help to spur preventative measures against the pollution. This could be especially important in the face of China's accelerating industrial boom.

The clouds consist of ash, acidic chemicals and carbon, which come from the burning of fossil fuels and wildfires. One of the most intensely polluted and most studied brown clouds, which hangs over the Indian Ocean, has recently been found to consist largely of the smoke from dried manure used for cooking (C. Venkataraman *et al.* *Science* 307, 1454-1456:2005).

Previous research has shown that the haze over the Indian Ocean blocks up to 15% of the Sun's radiation (S. K. Satheesh and V. Ramanathan *Nature* 405, 60-63:2000). Such clouds are thought to cause the ground to cool and the atmosphere to warm, which can affect monsoons and other rainfall patterns. Particulate matter can also alter rain formation. But little is known about the details of how the clouds change over time, or how this alters the climate, says Venkataraman



Foggy notion: Asia's hazy smog comprises fumes from forest fires (yellow) and pollution from populated areas (white).

Ramanathan, an atmospheric scientist at the Scripps Institution of Oceanography in La Jolla, California, who is involved with the UNEP project. "We need to watch the whole seasonal cycle for several years," he says. "There have been many theories about how this affects global climate. We have to observe it."

The UNEP project aims to follow the Asian clouds for at least five years; funding of US\$10 million has been secured for this period from the US National Oceanic and Atmospheric Administration and the National Science Foundation. The programme has two main observatories: one in the Maldives and one on the Korean island of Jeju. Each is stocked with more than 30 instruments that can measure incoming sunlight, temperature and the chemical

composition of the clouds. Tens of smaller labs throughout the region will also contribute data.

The scientists involved say they are particularly concerned that the industrial boom and desertification currently going on in China are throwing ever more smog ingredients into the atmosphere. "East Asia might have more surprises than India — it is of a greater concern," says Ramanathan.

But the attempt to study China's impact on the clouds could become politically sensitive. Japanese scientists estimate that some 30% of the soot falling on their country comes from China, whereas Chinese researchers place the estimate as low as 5%. "There is no consensus," says Yuanhang Zhang, an atmospheric chemist at Peking University who is representing China in the UNEP project.

Shiro Hatakeyama, a specialist in atmospheric chemistry at the National Institute for Environmental Studies in Tsukuba, north of Tokyo, says that China has not provided sufficient information about its emissions to feed into models that predict the effects of the smog. "So far, China's efforts are not satisfactory," says Hatakeyama.

Zhang admits that there is a lack of data for most pollutants other than sulphur dioxide in China, making it hard to assess their contribution to the haze. Hatakeyama hopes that the project will put pressure on China to collect and provide more information.

That may already be happening. Zhang says that there are plans to set up about ten observatories in the country to contribute to the programme — a meeting is scheduled for April to work out the details.

ここでは主にエアロゾルについて報告することにする。

東アジアを含むアジア地域におけるエアロゾルの観測研究では特に UNEP の主導による ABC (Atmospheric Brown Clouds) プロジェクトの果たした役割が大きい。我が国からも秋元肇 (海洋開発研究機構地球環境フロンティア研究センター)、中島映至 (東京大学気候システム研究センター) の両氏が委員として参加し、東アジアを中心とする観測研究 EAREX2005 (East Asian

Regional Experiment 2005) が 2005 年 3~4 月に日本を初めとして韓国、中国、台湾などの

図 3.3-2 : ABC/EAREX2005 に関する Nature 誌の報道 (2005 年 3 月 10 日号、p.128、ネイチャー社)。

研究者によって行われた。その結果は *J. Geophys. Res.*, の集成版 "Asian Aerosol Studies from the First Phase Regional Experiments of Atmospheric Brown Cloud (ABC) Project" (2008) としてまとめられている。

越境大気汚染を長期にわたって正確かつ多角的にモニタリングするためには、近隣におけるローカルな排出の影響をあまり受けないバックグラウンド地に観測施設を設け、多くの大学、研究機関などが一致協力して観測にあたるのが不可欠である。UNEP ではモルジブと韓国済州島の Gosan ステーションをスーパーサイトと認定し、上記 EAREX2005 も Gosan ステーションを中心に観測が行われた。我が国ではこれまで、観測施設が設置されても、その設置主体の所有する観測装置のみが置かれて観測がおこなわれることが多く、多角的な観測を行うことが困難であった。国立環境研究所では 2005 年 6 月に沖縄県の沖縄本島北端辺戸岬に「国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション (CHAAMS)」を設置し (畠山、2005)、広く大学や研究機関の研究者に門戸を開放して、大気化学、大気物理、放射など様々な観点からの観測が可能となった。同ステーションは UNEP/ABC のメジャーサイトに指定され、また文部科学省科学技術・学術審議会研究計画・評価分科会地球観測推進部会により分野間・機関間連携を図る具体的施策の一つ「アジア地域の対流圏大気変化把握のための辺戸岬スーパーサイトの共同運用」として指定された。2007 年には同ステーションが更に拡充され、より一層多くの研究機関が観測に参加している (高見、2008)。

一方、富士山頂に設置されている気象庁の富士山測候所は、対流圏中部における物質の越境

汚染を捉えるうえで有利な地点にあると考えられるが、その利用はこれまで専ら気象庁および関係する研究機関に限られていた。2001～2005年に実施された研究において初めて多機関の研究者による観測に使用され、SO₂の長距離輸送の解析(Igarashi et al., 2006)などが行われたが、同測候所は2004年夏をもって人員の非常駐化がなされ、廃止も検討された。そこで、国内の研究者を中心として組織されたNPO法人が夏季のみ限定ではあるが気象庁より同施設を借り上げることとなり、多くの研究機関に開かれた(他の研究分野を含む)観測施設として2007年より利用が開始されている。

(2) 越境大気汚染に関する研究実績

我が国における越境大気汚染研究の実績例として、ここでは主に2005年以降発表の論文から代表的ないくつかを紹介することにする。

① 越境大気汚染の輸送パターンおよび長距離輸送にともなう硝酸塩、硫酸塩の変質(Takami et al., 2007; Takiguchi et al., 2008)

ABC/EAREX2005期間中沖縄辺戸岬でエアロゾル質量分析計を用いて硫酸塩などの輸送パターンを検討した。その結果、前線が東シナ海を通過しその後高気圧が上海付近に東進してくるときに、まず、人為起源汚染と考えられるサルフェートや有機物が観測され、引き続き、ダストが観測されることを見出した。後方流跡線解析によると、中国東シナ海沿岸部の上海～青島付近からの気塊が到達していた。

また、沖縄辺戸岬において行われたエアロゾル質量分析計やナイトレートモニターによるエアロゾルのイオン成分や、NO_yなどの観測結果と、中国で行われた地上観測データとの比較から、NO₃⁻が中国の発生源近傍では80%以上粒径1 μm以下の微小粒子に含まれているのに対して、沖縄では80%以上が2.5～10 μmの粗大粒子に含まれていることを見だし、流跡線に基づいた解析から、輸送途上で微小粒子→粗大粒子への移行が起こっていることを見いだした。

② アジアからの気塊に含まれる水溶性有機炭素(WSOC)の化学的性質(Miyazaki et al., 2007)

EAREX2005期間に韓国Gosanステーションで行われた集中観測において、エアロゾル中の水溶性有機炭素の観測が行われた。観測期間中のWSOC/OC比は0.30±0.12であり、WSOCは中国から輸送される気塊においてはCOと良い相関があり、WSOC又はその前駆体が燃焼起源であることを示唆していた。熱分析の結果は高反射率の物質のかなりの部分が高分子量の物質であることを示した。

③ 辺戸岬ではかられたオゾンおよびCO濃度と、長距離輸送の影響(Suthawaree et al., 2008)

2002年から2004年にかけて沖縄辺戸岬でオゾンとCOを連続的に測定したところ、冬～春に最大値(それぞれ平均52ppbおよび280ppb)、夏に最小値(それぞれ平均15ppbおよび81ppb)が見られた。流跡線解析からは、気塊のオリジンが中国ないしは韓国のときに濃度が高く、太平

洋から来るときには低いことを示した。CO とオゾンの間には春と夏に正の相関があり、この領域でオゾンの光化学生成が原因であることを示している。

④ 冬季九州で見られる高濃度に対する中国メガシティの影響(片山ら、2007)

RAMS と組み合わせた化学輸送モデル CMAQ により、1999 年 2 月に九州で観測された高濃度エピソードを対象に、硫黄および窒素の化合物に対する北京と上海の寄与を解析した。西日本における、北京起源と上海起源の濃度を地域別に比較すると、SO_x と NO_y とともに北京起源は中国地域で最も高く、上海起源は九州地域で最も高い。北京起源と上海起源を合わせた寄与率は、西日本地域で SO_x 18%、NO_y 12%に達し、北京と上海からの排出物質は西日本の大気質に大きな影響を与えていることが明らかとなった。

⑤ アジア大陸に由来する光化学オゾン汚染(大原ら、2008)

2007 年 5 月に発生した広域的な高濃度オゾン(O₃)エピソードの特徴と発生原因について、日本全国の大気汚染測定データと東アジアスケール化学輸送モデルを用いて解析した。モデルで計算された地上付近の O₃ 濃度分布によると、空間スケールが 500 km を越える 80ppbv 以上の高濃度 O₃ を含む気塊が、東シナ海上の移動性高気圧の北側の強い西風によって、中国北部沿岸から日本列島に輸送されたことを示す。2007 年 5 月に日本で観測された高濃度 O₃ には、中国や韓国で排出された O₃ 前駆物質によって生成された光化学 O₃ に起因する越境大気汚染の影響が大きい。また、モデル計算結果ならびに地上大気汚染測定局とライダーの観測結果から、O₃ とともに SO₄ や人為起源エアロゾルも越境汚染していたこと、これらの物質は高度 1500m 以下の混合層の中を輸送されたことが明らかとなった。

⑥ 対流圏中層における SO₂ の長距離輸送 (Igarashi et al., 2006)

富士山頂において SO₂ など微量気体を通年観測し、対流圏中層での長距離輸送の季節変動を調べた。その結果、晩秋から春までの寒候季には、大陸汚染気塊による高濃度事象が数日おき程度で発生することがわかった。ところが、春季になると、SO₂ の輸送の頻度と強度は減少した。これは、この時季に西南からの風系が卓越してきて、同時に気塊の相対湿度が高くなるためと考えられた。すなわち、暖候季には雲過程が活発化して SO₂ の除去が生じるため、対流圏中層高度では大陸からの長距離輸送の頻度、強度が共に低下することがわかった。

(3) 今後、必要とされる研究

主に酸性雨の発生源の追究から始まったといっても過言ではない越境大気汚染の問題は、今や酸性雨問題にとどまらない、より広域・広範囲の問題を含む大気環境問題となってきた。このような問題の解明にあたっては、今後より一層の国際協力に基づく研究が重要となるであろう。Sky_net やライダーネットワークのような国際的な取り組みが既に始められているが、より多方面での取り組みが行われて、広域をカバーする他種類・多成分のデータが得られるようになることが

望ましい。国内の観測という観点からすると、辺戸岬ステーションのように組織の枠組みを取り払って、様々な角度から観測が行えるような観測サイトが複数設置され、データの蓄積が行われることが必要である。

広域をカバーするという観点からは、衛星による観測も重要である。オゾンから NO_x まで測れるようになったが、より低濃度かつ分布の局在性の高いものまで測れるようにしていくべきであろう。

飛行機や船舶などのプラットフォームを利用した観測はまだまだその重要性を失ってはいない。発生源地域における観測と組み合わせて、気塊の流れに沿った観測を行い、輸送途上における化学変化をより詳細に解析していくべきである。このような研究はやっと緒に着いたところであり、今後の発展が期待される場所である。

HTAP で指摘されているように、大陸間の汚染問題は今後更に深刻さをましていく可能性がある。我が国ではまだ、東アジアスケールの越境汚染がクローズアップされているだけといってもよいが、今後はヨーロッパや南アジアからの東アジアへの輸送とその影響、東アジアから太平洋を越えて北米への輸送とその影響なども、地球規模の環境問題として研究を始めていくべきである。

これらの研究が観測とモデルの両面から進められていくことが望ましいのは言を俟たない。

畠山史郎、国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション開設のお知らせ、エアロゾル研究, **20**, 262 (2005).

Igarashi Y., et al., Seasonal variations in SO₂ plume transport over Japan: Observations at the summit of Mt. Fuji from winter to summer, *Atmos. Environ.*, **40**, 7018–7033 (2006).

片山学他、冬季/九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響、大気環境学会誌、**42**, 175–187 (2007).

Miyazaki Y., et al., Chemical characteristics of water-soluble organic carbon in the Asian outflow, *J. Geophys. Res.*, **112**, D22S30, doi:10.1029/2007JD009116. (2007).

大原利真他、2007年5月8、9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染—オーバービュー—、大気環境学会誌、**43**, 198–208 (2008).

Suthawaree J., et al., Observation of ozone and carbon monoxide at Cape Hedo, Japan, Seasonal variation and influence of long-range transport, *Atmos. Environ.*, **42**, 2971–2981 (2008).

高見昭憲、国立環境研究所の辺戸岬観測ステーションの紹介、大気化学研究会ニュースレター、No.19, 3–4 (2008).

Takami, A., et al., Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation, *J. Geophys. Res.*, **112**, D22S31 doi:10.1029/2006JD008120 (2007).

Takiguchi Y., et al., Transport and transformation of total reactive nitrogen over the East China Sea, *J. Geophys. Res.*, **113**, D10306, doi:10.1029/2007JD009462 (2008).

UN/ECE, Hemispheric Transport of Air Pollution 2007 —Air Pollution Studies No. 16—, United Nations (2007).

3. 4. 極域の大気環境変動

(1) 研究の背景

人類未踏の地で探検の対象であった辺境の北極、南極であるが、その後の観測活動の蓄積から、近年の温暖化等の地球環境変動に敏感に反応する場所であるとともに、様々な気候システム、フィードバックシステムを内包し、地球規模、グローバルな気候・環境に重要な影響を与える場所として、認識されるようになった。50年前の1957年/58年の国際地球観測年(IGY)を契機に各国は科学的な南極観測を本格化し、様々な知見を得てきた。南極における科学研究を議論する国際的な場である南極研究科学委員会(SCAR;ICSUの組織)は、1965年の第8回会議において、それまでのIGYでの成果をもとに、今後の南極気象学の課題として上げた8項目の中で、「大気微量成分、エアロゾル、火山活動との関係」、「対流圏・成層圏・中間圏の相互作用」「雲と降水の物理」など、大気化学に関係する新しい課題を提起している。これらを背景に、観測基地における地上観測を中心に対流圏の大気化学が議論されてきたほか、オゾンホールを契機に成層圏オゾンとその関連現象が大きな課題となったとともに、過去の地球環境を明らかにする氷床コアの解析と呼応した現在の大气中物質の輸送や雪氷-大気相互作用に関する研究も盛んに進められた。

一方、北極域は同じ極地でもその中に領土をもつ国々があり、人為起源物質に関わる研究課題が多くみられた。冬期、極渦・ポーラフロントにより隔絶された北極大気には、注入された人為起源汚染物質が蓄積し、降水過程が少ないことから除去作用も乏しく、汚染物質が滞留し「北極ヘイズ」となっている(夏に向かって極渦の崩壊、降水現象などとともに消滅する)。1950年代に初めて指摘されて以後、多くの研究が進められた。また、極地特有の日射の無い極夜から日の出を迎えて太陽光が現れることによる大気化学への影響がPolar Sunrise ExperimentとしてIGAC計画の一つとして実施された。特異な春先の地表オゾンの急減現象(SOD;Bottenheim et al., 1986)もその一つの課題であった。

こうして、今年(2007)は国際極年2007-2008のさなかにある。成層圏オゾンを扱ったORACLE-O3から、北極エアロゾルの航空機観測を中心に据えたPOLARCAT (POLar Study using Aircraft, Remote sensing, surface measurements and modeling of Climate, chemistry, Aerosols and Transport)、大気中エアロゾルの光学的厚さの観測ネットワーク構築を目指したPOLAR-AOD (a network to characterize the means, variability, and trends of the climate-forcing properties of aerosols in polar regions)、汚染物質を扱った幾つかの課題など、大気化学に関連するいくつかの計画が実施中である。

(2) これまでのわが国の実績

南極は人間活動の活発な北半球中・高緯度から最も遠い場所として、人為的影響の少ない地球のバックグラウンドレベルの観測ができることが期待されてきた。1984年に開始された二酸化炭素をはじめ気候に影響する温室効果気体の大気中濃度の長期連続観測がその中心で、清浄大

気中での世界にほこる高精度の観測が実現し(図 3.4-1; 微妙な増加傾向の変動の議論が可能; Morimoto et al., 2003 等)、その後 1997 年(第 38 次南極地域観測隊)以降「モニタリング観測」の位置づけで、重要な課題として続けられている。南極域における変動には大気中の輸送過程が重要であり、その解明も含め成層圏までの鉛直分布を調べるクライオジェニック・サンプラーを搭載した回収気球実験が行われ、初の南極成層圏大気採取が行われている(Aoki et al., 2003)。大気中のエアロゾルについても、気候影響の観点からの長期的な継続観測と(サンフォトメータ観測; Tomasi et al., 2007)、物質循環の解明の立場からの短期的な集中観測が行われてきた。第 38 次観測隊から実施した「南極大気物質循環観測」も後者の立場から、物質変動と大気循環の関わりに焦点を当てた観測・研究を行っており(Hara et al., 2006 等)、43 次観測隊からは「南極における地球規模大気変化観測」と称して、広範囲の観測を実施した(例えば Hara et al., 2008)。北極での共同研究の成果を受けた、49 次夏隊による 2006/07 年の南極における日本-ドイツ共同航空機観測(ANTSYO-II)もその一環で、北極と対比した清浄な南極大気のエアロゾルの特徴を明らかにしようという観測であった(Minikin et al., 2008 等)。

成層圏オゾンとは古くから極域の興味ある課題であり気象定常観測に位置づけられ観測が続けられてきたが、1984 年の南極オゾンホールが発見以来、極成層圏雲(PSCs)を含む、その成因や回復機構の解明のための重点観測が精力的に行われてきた(Sato et al., 2008 等)。第 48 次隊(2007 年)で行われた高分解能赤外分光計によるオゾン破壊関連物質の鉛直分布や 9 基地で共同したオゾンゾンデ Match 観測は、国際的に推進中の「国際極年(IPY)2007-2008」の一環である。

北極における大気化学研究・観測は、わが国でも、冷戦体制の崩壊以降、多くの大学や研究機関でカナダ、アラスカ、シベリヤ、北極海等で精力的に実施されるようになってきた。国立極地研究所では、大西洋側北極であるスバルバル諸島ニーオルスンに 1991 年以降観測基地を設置し、北極観測の拠点としている。ここでは、両極対比(bi-polar)の立場から、温室効果気体分析用大気サンプリングやエアロゾルのリモートセンシング・現場観測を続けてきた。同位体分析によるメタン放出減の寄与解明(Morimoto et al., 2006)、雲・エアロゾル衛星ライダー観測の地上検証(Shiobara et al., 2006)、エアロゾルゾンデやライダーによる北極 PSCs の観測(Shibata et al., 1997)、対流圏エアロゾル組成(Wada et al., 2004)や降水変動(Konishi and Wada, 2008)解析などが行われてきた。これらの地上観測を核に、同じくニーオルスンで活発に大気観測を実施しているドイツ、アルフレッド・ウェーゲナー極地海洋研究所(AWI)と共同で、上空大気を調べる一連の航空機観測(AAMP 98; ASTAR 2000; AAMP 2002; ASTAR 2004; ASTAR 2007)を実施し、人為汚染の影響の大きい春季北極ヘイズの実態や(図 3.4-2; Hara et al., 2003; Yamanouchi et al., 2005)、春から夏にかけての、その浄化過程が明らかになった(Matsuki et al., 2008; Yamagata et al., 2008)。

(3) これからの課題

国立極地研究所では、南極観測 50 年を経て、新しい観測船「新しらせ」が 2009 年度に就航する

のを機に、第 51 次隊以降、新しい南極観測の構築を目指している。観測計画策定から実施に至る手続きのこれまで以上の公開性の確保、長期計画にとらわれない自由な観測計画の提案と自由な参加(科学研究費等による観測)、新しい先進的科学的実現などである。後者に関して大きな課題の一つは昭和基地大型大気レーダ(PANSY)計画の実現である。直接観測されるものは対流圏から成層圏、中間圏、熱圏の大気の3次元の流れであるが(MSTとして;さらにISとして電離圏)、カタバ風と大気循環のつながり、大気鉛直流、成層圏-対流圏交換、重力波の寄与、成層圏極渦、成層圏・中間圏循環など、大気中の物質、オゾンホール、PSCs、極中間圏雲(PMSE)等、大気化学に密接に関連する研究課題である。研究経費が莫大であることから、予算的な実現可能性に難点があるが、広い分野からの密接な協力が求められている。

これまでの研究の延長発展としては、温室効果気体やエアロゾル・雲、放射(BSRNとして実施中)のモニタリング観測を安定的に継続するとともに、新しいきっかけが得られた、海洋表面での大気・海洋交換に関連する課題があげられている。即ち、季節的には大きなシンクになり得る南大洋の二酸化炭素の大気・海洋交換(Nakaoka et al., 2008)や極域で深刻な二酸化炭素吸収に伴う海洋の酸性化の問題、また、大気中エアロゾル、ひいては雲の核として働き得る海洋生物起源硫化ジメチル(DMS)の振る舞い等、いずれも新しらせや専用観測船(海鷹丸、白鳳丸等で実績)の運用によって進められるべき観測課題である。その他、AWIとの共同による航空機内陸ドーム接続観測、49次隊で新規実現した小型のサンプラー(JTクーラ利用)搭載回収気球観測などがあげられている。

北極域では、最近の激しい温暖化と海氷減少に端を発する「北極温暖化-過去・現在・未来」研究計画が提案され、これまでの個別分野、個別研究機関による研究を乗り越え、大気・海洋・雪氷・化学・水文・生態系といった分野融合、観測から解析・モデリング・データ同化による北極システム再解析まで含んだ、学際的・オールジャパン体制の研究が指向されている。この中でも、大気中エアロゾルの動態、ブラックカーボンの雪氷沈着(アルベド増加)、メタンの発生、海氷・雪氷面化学反応、大気・海洋交換と、大気化学の役割は大きい。

先にIPYが実施中であることに触れたが、2009年の3月にとりあえずの期間は終了してしまうものの、その後いかにレガシー(遺産)が残せるかが問われており、新しい極域観測システムの構築やデータベースが求められている。さらに、この間に醸成された国際協同の精神をさらに発展させ、国際協同観測・研究が本質的である極域科学のさらなる発展が期されている。極域科学におけるアジア諸国との連携もわが国の大きな課題であり、既にアジア極地科学フォーラム(AFoPS;現在、日本、中国、韓国、インド、マレーシア5カ国が加盟)としてスタートした協力関係をさらに充実発展させることが求められている。

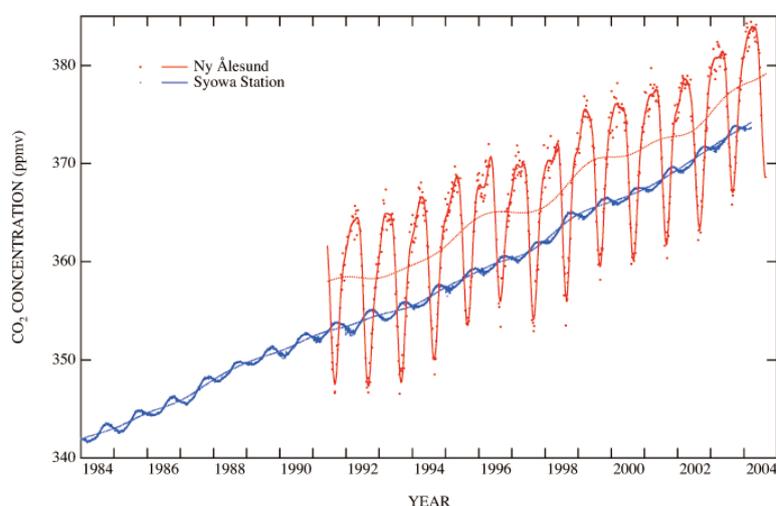


図 3.4-1. 南極昭和基地および北極スバルバル・ニーオルスンにおける大気中二酸化炭素濃度の変動(森本真司氏提供)

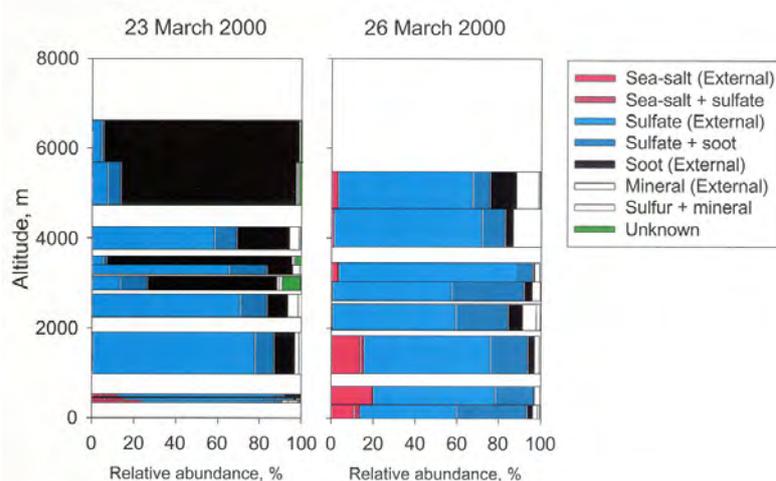


図 3.4-2. ASTAR 2000 航空機観測によるエアロゾル組成(個々の粒子の相対比率)の鉛直分布、北極ヘイズの濃い 3 月 23 日とバッククラウド状態の 3 月 26 日(Hara et al., 2003)

Aoki, S., T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Morimoto, G. Hashida, T. Yamanouchi, K. Kawamura and H. Honda (2003): Carbon Dioxide Variations in the Stratosphere Over Japan, Scandinavia and Antarctic. *Tellus*, **55B**, 178-186.

Hara, K., S. Yamagata, T. Yamanouchi, K. Sato, A. Herber, Y. Iwasaka, M. Nagatani and H. Nakata (2003): Mixing states of individual aerosol particles in spring Arctic troposphere during ASTAR 2000 campaign. *J. Geophys. Res.*, **108** (D7), 4209, doi:10.1029/2002JD002513.

Hara, K., Y. Iwasaka, M. Wada, T. Ihara, H. Shiba, K. Osada and T. Yamanouchi (2006): Aerosol constituents and their spatial distribution in the free troposphere of coastal Antarctic regions. *J. Geophys. Res.*, **111**, D15216, doi: 10.1029/2005JD006591.

- Hara, K., K. Osada, M. Yabuki, M. Hayashi, T. Yamanouchi, M. Shiobara and M. Wada (2008): Measurement of black carbon at Syowa Station, Antarctica: Seasonal variation, transport processes and pathways. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 1–47.
- Ishidoya, S., S. Morimoto, S. Sugawara, T. Watai, T. Machida, S. Aoki, T. Nakazawa, and T. Yamanouchi (2008), Gravitational separation suggested by O₂/N₂, $\delta^{15}\text{N}$ of N₂, $\delta^{18}\text{O}$ of O₂, Ar/N₂ observed in the lowermost part of the stratosphere at northern middle and high latitudes in the early spring of 2002, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03812, doi:10.1029/2007GL031526.
- Konishi, H. and M. Wada (2008): Seasonal variation of precipitating clouds at Ny-Alesund in Svalbard, Arctic. SCAR/IASC Open Science Conference, 8–11 July 2008, St. Petersburg, Russia, A1.6/P14.
- Matsuki, A., K. Hara, S. Yamagata, T. Yamanouchi, A. Herber, Y. Iwasaka and D. Trochkin (2008): Mixing states of individual aerosol particles in the Arctic troposphere in late-spring: ASTAR 2004 aircraft campaign. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, submitted.
- Minikin, A., R. Krejci, R. Treffeisen, K. Hara, T. Yamanouchi, A. Herber, M. Wada and N. Hirasawa (2008): AGAMES 2006/07 Antarctic Trace Gas and Aerosol Airborne Measurement Study overview and first results of the aerosol microphysical observations. SCAR/IASC Open Science Conference, 8–11 July 2008, St. Petersburg, Russia, A4.1/P14.
- Morimoto, S., T. Nakazawa, S. Aoki, G. Hashida and T. Yamanouchi (2003): Concentration variations of atmospheric CO₂ observed at Syowa Station, Antarctica from 1984 to 2000. *Tellus*, **55B**, 170–177.
- Morimoto, S., S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi (2006): Temporal variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric methane observed at Ny-Alesund, Svalbard from 1996 to 2004. *Geophys. Res. Lett.*, 33, L01807, doi: 10.1029/2005GL024648.
- Nakaoka, S., T. Nakazawa, H. Yoshikawa-Inoue, S. Aoki, G. Hashida, B. Tilbrook, M. Ishii, T. Yamanouchi, T. Odate and M. Fukuchi (2008): Summertime variations of oceanic pCO₂ and air-sea CO₂ flux in the eastern Indian sector of the Southern Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, submitted.
- Sato, K., Y. Tomikawa, G. Hashida, T. Yamanouchi, H. Nakajima and T. Sugita (2008): Longitudinal dependence of ozone recovery in the Antarctic polar vortex revealed by balloon and satellite observations. *J. Atmos. Sci.*, submitted.
- Shibata, T., Y. Iwasaka, M. Fujiwara, M. Hayashi, M. Nagatani, K. Shiraishi, H. Aachi, T. Sakai, K. Susumu and Y. Nakura (1997): Polar stratospheric clouds observed by lidar over Spitsbergen in the winter of 1994/1995: Liquid particles and vertical “sandwich” structure. *J. Geophys. Res.*, 102, 10829–10840.
- Shiobara, M., M. Yabuki, R. Neuber, J. D. Spinhirne, E. J. Welton, J. R. Campbell, W. D. Hart and T. A.

- Berkoff (2006): Arctic experiment for ICESat/GLAS ground validation with a Micro-Pulse Lidar at Ny- Alesund, Svalbard. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **20**, 28–39.
- Thomason, L. W., A. B. Herber, K. Sato and T. Yamanouchi (2003): Arctic Study on Tropospheric Aerosol and Radiation: Comparison of tropospheric aerosol extinction profiles measured by airborne photometer and SAGE II. *Geophys. Res. Lett.*, **30** (6), 1328, doi: 10.1029/2002GL016453.
- Tomasi, C., T. Yamanouchi et al. (2007): Aerosols on polar regions: An historical overview on the basis of optical depth and in-situ observations. *J. Geophys. Res.*, **112**, D16205, doi: 10.1029/2007JD008432.
- Wada, M., H. Konishi, S. Morimoto and T. Yamanouchi (2004): Size distributions of snow and aerosol particles in a continuous precipitation with a change of surface ozone concentration at Ny-Alesund, Arctic. *Proceedings of 14th Int. Conference Cloud and Precipitation*, **3**, 1765–1768.
- Yamagata, S., D. Kobayashi, S. Ohta, N. Muraio, M. Shiobara, M. Wada, M. Yabuki, H. Konishi and T. Yamanouchi (2008): Properties of aerosol and their wet deposition in the Arctic spring during ASTAR 2004 at Ny- Alesund, Svalbard. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, submitted.
- Yamanouchi, T., Treffeisen, R., Herber, A., Shiobara, M., Yamagata, S., Hara, K., Sato, K., Yabuki, M., Tomikawa, Y., Rinke, A., Neuber, R., Schumachter, R., Kriews, M., Strom, J., Schrems, O. and Gernandt, H. (2005): Arctic Study of Tropospheric Aerosol and Radiation (ASTAR) 2000: Arctic haze case study. *Tellus* **57B**, 141–152.

3. 5. 熱帯のオゾンと熱帯対流圏界層(TTL)

対流圏のオゾンは、都市～越境大気汚染の原因物質・指標物質、大気酸化能(気体状有機化合物の除去能)の指標物質、そして、地球温暖化物質である。従って、その変動および変動メカニズムに関する研究が世界的に精力的に行われてきている。熱帯域の対流圏オゾンについては、そこに位置する国々の事情により、研究の歴史は比較的浅い。人工衛星によるグローバルなオゾン全量観測が始まったのは1970年代であるが、それらのデータから熱帯域の対流圏積分量を推定する試みが始まったのは1980年代後半である。一方、航空機を用いたオゾンを中心とする反応性大気成分のその場観測キャンペーンが、主として欧米の研究者を中心として1980年代～1990年代に精力的に行われている。なかでも、NASA(米国航空宇宙局)によるGlobal Tropospheric Experiment(GTE)プログラムにより、南米、大西洋、アフリカ南部、太平洋各領域において、多成分の大気化学測定が実施された。これらの観測研究により、特に南米とアフリカにおけるバイオマス燃焼が熱帯全域の大気化学に重大な影響を与えていることが認識されるようになった。一方、日本の研究者は、人工衛星データ解析においてエポックメイキングな貢献をすると同時に、GTE等の欧米の観測プログラムではカバーされていなかったインドネシア海洋大陸・東南アジア域において、航空機観測キャンペーン(Biomass Burning and Lightning Experiment, BIBL)やオゾンゾンデ観測を精力的に実施してきている。本節の熱帯オゾンに関連する項目では、これら日本の研究者の貢献を中心に紹介する。

熱帯対流圏界層(Tropical Tropopause Layer, TTL)は、対流圏の空気が成層圏へ侵入する主たる領域であり、従って、成層圏オゾン光化学の初期条件を与える領域である(図3.5-1)。歴史的に、成層圏の極端低濃度状態にまで水蒸気濃度を絞る“脱水過程”を伴うような輸送過程が重要なはずである、との認識のもとに、輸送に関わる力学過程に関する研究がなされてきた。研究の歴史に関する詳しい解説については、藤原(2001)、藤原・山崎(2007)を参照されたい。研究を主導してきたのは主に米国の研究者たちで、航空機観測、気象場解析、理論研究などの手法が用いられてきていた。一方、1990年代より、日本人研究者による熱帯太平洋域(西のインドネシア海洋大陸・東南アジア域から東のガラパゴス諸島まで)における各種ゾンデ集中観測キャンペーンを契機として、大規模擾乱の重要な役割がはじめて明らかになってきている。本節の熱帯対流圏界層に関連する項目では、これら日本の貢献に関わる観測活動を中心に紹介する。

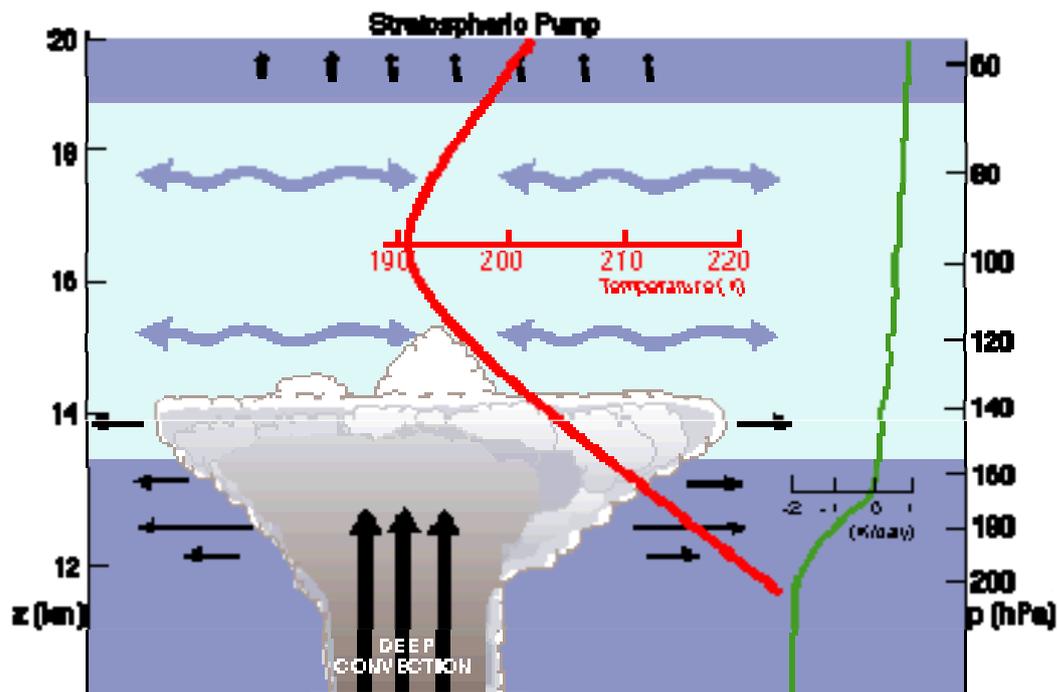


図 3.5-1. 熱帯対流圏界層 (Tropical Tropopause Layer, TTL) の概念図 (J. R. Holton 氏の website より)。赤線は気温プロファイル、緑線は放射加熱率プロファイルを示す。この領域は、活発な積雲活動に代表される対流圏と、Brewer-Dobson 平均子午面循環が支配的になる成層圏との遷移領域として把握される。

(1) 人工衛星によるオゾン観測データの解析: オゾン QBO、オゾン全量の季節変動、東西波数 1 構造

赤道下部成層圏の東西風には準二年周期の振動 (Quasi-Biennial Oscillation, QBO) があることが知られているが、QBO に伴うオゾン濃度変動 (いわゆるオゾン QBO) を人工衛星データに基づき明らかにしメカニズムを議論した研究に、Hasebe (e.g., 1994)、大気大循環モデルを用いた研究に Nagashima et al. (1998) などがある。一方、熱帯域のオゾン全量の衛星観測データにより、Shiotani (1992) は一年を通じて東西波数 1 構造 (大西洋に極大、太平洋に極小) が存在することを見出し、つづく Shiotani and Hasebe (1994) は複数の衛星観測データを組み合わせることで、この構造が成層圏ではなく対流圏に存在することを示唆した。この東西波数 1 構造の高度範囲や形成メカニズムを明らかにするためには、オゾンゾンデ観測網が必要不可欠であるが、当時、熱帯域には定常的なオゾンゾンデ観測地点がほとんどなかった。このことが、のちの長谷部文雄・塩谷雅人両氏によるプロジェクト Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region (SOWER) (後述)、および Anne M. Thompson 氏によるプロジェクト Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) (後述) の動機となっていく。

(2) 東南アジアにおけるオゾンゾンデ観測

日本の人工衛星観測計画(ADEOS)に関連し、宇宙開発事業団(NASDA、当時)と東京大学がインドネシア航空宇宙庁(LAPAN)と協力して、1992年にインドネシア・東ジャワ・ワトコセ LAPAN 気球観測所にオゾンゾンデ観測システムを導入した。1993年5月から月1~2回の定常的な観測が開始され、現在(2008年)にいたるまで維持されている(e.g., Fujiwara et al., 2000)。1999年からは SHADOZ プロジェクト(後述)に参画し、また、2003年ごろからは、北海道大学・京都大学が日本側の運営責任を担うようになっている。エルニーニョに伴う対流圏オゾン増大現象の発見(Fujiwara et al., 1999)、および、赤道ケルビン波による成層圏オゾンの対流圏への輸送現象の発見(Fujiwara et al., 1998)が、初期の大きな科学的成果である。また、農業環境技術研究所のグループは、マレーシア気象局やシンガポール気象局のオゾンゾンデ定常観測をサポートしてきている(e.g., Yonemura et al., 2002)。このうち、マレーシアのクアラルンプールにおけるオゾンゾンデ定常観測は、インドネシア・ワトコセ同様、1993年から現在まで観測を継続しており、SHADOZ プロジェクトにも参画している。さらに、2003年にはタイでオゾンゾンデ集中観測がおこなわれている(Kita et al.)。2004年9月からは、SOWER プロジェクト(後述)のもと、ベトナム・ハノイにおいてもオゾンゾンデ定常観測がおこなわれてきている。東南アジア域の大気質長期変動の監視や、モンスーン循環に伴う物質輸送過程の解明がその目的である。なお、インドネシアやタイなどにおいて、名古屋大学・福岡大学による Optical Particle Counter エアロゾルゾンデ観測が多数実施されており、対流圏と下部成層圏におけるエアロゾルの貴重なデータが蓄積されている(e.g., Iwasaki et al., 2007)。

(3) エルニーニョおよびインド洋ダイポールモード現象に伴うインドネシア海洋大陸域での対流圏オゾン増大現象

エルニーニョ南方振動(ENSO)とは、太平洋における数年以上の周期を持つ大気海洋相互作用現象であり、エルニーニョが生じるとインドネシア域は半年程度にわたって少雨・乾燥状態となる。具体的には、雨季の開始が極端に遅れたり、乾季の乾燥度が増したりするなどし、森林火災、泥炭地火災などのバイオマス燃焼が極端化・長期化する。一方、インド洋ダイポールモードとはインド洋における ENSO 同様の現象であり、ダイポールモード現象が生じると、インドネシア域は少雨・乾燥状態となる。1982/83年のエルニーニョ時にカリマンタン等で大規模森林火災が生じたころから、東南アジア諸国では越境大気汚染問題として認識されていたようである。しかし、大気化学の観点で本格的な研究が行われ始めたのは、前項目にあるように日本人が積極的に東南アジアで大気化学研究を始めた1990年代、特に、1994年、1997年の事例(いずれも、エルニーニョとダイポールモードの同時発生とみなせる)からである(e.g., Fujiwara et al., 1999)。特に、1997年の事例については、既出のオゾンゾンデ観測による対流圏オゾン増大現象の把握のみならず、気象庁気象研究所のグループが現地入りして各種微量成分に関する航空機観測を実施したり(e.g., Tsutsumi et al., 1999; Matsueda and Inoue, 1999)、衛星観測によるオゾンやエアロゾルの水平分布の解析が行われたり(Nakajima et al., 1999; Thompson et al., 2001)と、様々な観点から、インドネ

シア森林火災の大気化学への影響が研究された。なお、中島映至氏が中心となり Geophysical Research Letters の 1999 年 8 月 15 日号に INFOS-97 特集号が組まれている。さらに、Sudo and Takahashi (2001)は大気化学過程を考慮した大気大循環モデルを用いて 1997 年の事例を検討した上で、森林火災のみならず、乾燥化による水蒸気濃度減少自体が対流圏オゾン増大に寄与していたことを示唆した。また、Kita et al. (2000)は衛星データを用いて 1979 年以降のインドネシア域における対流圏オゾン増大現象を調べ、1982/83 年、1987 年、1991 年にもエルニーニョと同期した増大があったことを見出している。

(4) Biomass Burning and Lightning Experiment (BIBLE) A、B、C (日本の大規模な大気化学航空機観測)

1998 年から 2000 年にかけて、JAXA (当時 NASDA) / EORC が中心となり、インドネシア海洋大陸～北部オーストラリアにおける対流圏オゾンの光化学過程の解明を目的とした航空機観測、Biomass Burning and Lightning Experiment (BIBLE) プロジェクトが実施された (Kondo et al., 2002; 近藤他, 2007)。この観測では、限られた期間・領域ではあるが、オゾンの光化学に関わる多成分の同時観測を、航空機を使って立体的に実施することにより、発生源・輸送過程・化学反応過程の定量化をおこなった。この結果、9-10月においては、太平洋から運ばれてくる清浄な大気がインドネシア上空を通過すると、強い積雲対流活動に伴う雷による窒素酸化物の生成と、下層の化石燃料やバイオマス燃焼の影響を受けた空気の上方輸送により、オゾンの前駆気体 (光化学生成の材料となる物質) の濃度が増大し、数日の時定数でオゾン生成を引き起こしていることが明らかとなった (Koike et al., 2002; Kita et al., 2002; 図 3.5-2)。また 8-9月の北部オーストラリアでは安定した逆転層の存在により、バイオマス燃焼で放出された各主成分は境界層内に閉じ込められ、東風によりゆるやかに輸送されながら、アマゾンやアフリカのバイオマス燃焼と同程度の効率で光化学的なオゾン生成を引き起こしていることが分った (Takegawa et al., 2003)。また北部オーストラリアのバイオマス燃焼での各種大気成分の放出比 (Shirai et al., 2003) や、熱帯での雷の 1 フラッシュあたりの窒素酸化物の生成量 (Koike et al., 2007) など世界に先駆けて推定がおこなわれた。BIBLE プロジェクトで得られた結果は、この地域の体系的な観測として衛星観測や数値モデル計算の検証などにも広く使用されている。

この研究ではエアロゾルの観測がほとんど実施されなかった。近年の数値モデル計算研究では大気中の光吸収性エアロゾルの大気加熱により、アジアモンスーン循環が影響を受ける可能性を示唆するものもある。今後、熱帯域において、エアロゾルやさらには雲物理に焦点をあてた研究が必要である。

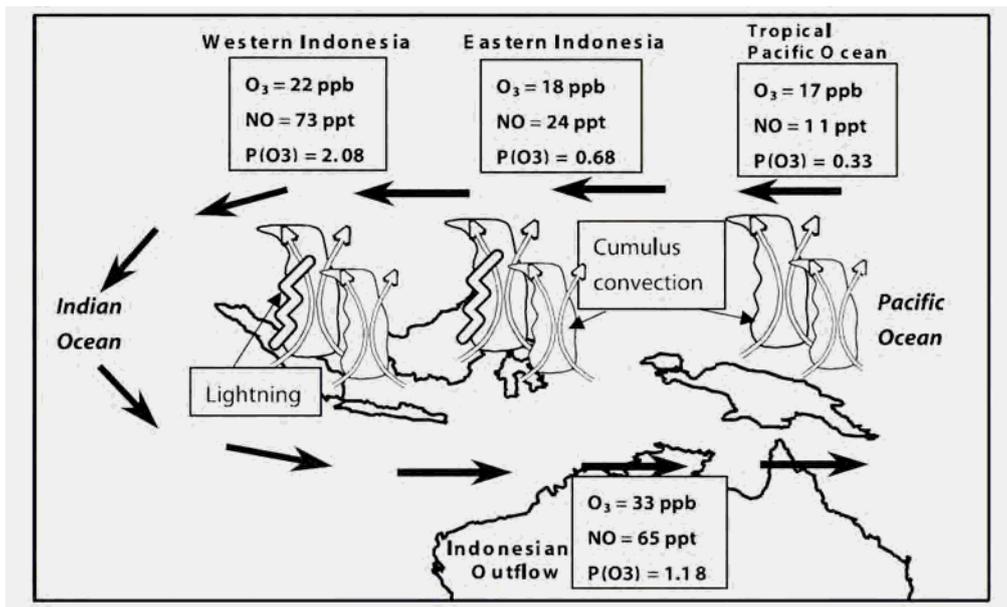


図 3.5-2. インドネシア上空での対流活動が上部対流圏オゾンに与える影響の模式図。上部対流圏での水平移流を黒い矢印で示す。1998 年 9-10 月 BIBLE-A 観測に基づくもの[Kita et al., 2002]。

(5) Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region(SOWER)プロジェクト

このプロジェクトは、(1)に述べたように、熱帯対流圏のオゾンの東西波数1構造の解明をひとつの大きな動機として、長谷部・塩谷両氏により計画され、1998 年 3 月、ガラパゴス諸島におけるオゾンゾンデ・水蒸気ゾンデ集中観測の形で始まり、以後、年に1、2回程度の集中観測を実施するという形で現在(2008 年)にいたるまで継続している。NOAA/CMDL(当時)の協力を得て、オゾンだけでなく上部対流圏・下部成層圏の水蒸気測定も実施してきている。当初の問題意識は太平洋におけるオゾンや他の気象要素の東西分布の解明であったが、その後、対流圏界面領域における水蒸気濃度決定メカニズム(脱水メカニズム)の解明に重きが置かれるようになってきた。観測領域も、東・中央太平洋のガラパゴス諸島とキリバス・クリスマス島(およびハワイ-メキシコ間の船舶観測)から、西太平洋域(インドネシアを中心として、東はキリバス・タラワ島から北西のベトナム・ハノイまで)に重点を変えてきている。赤道ケルビン波による水蒸気除去過程の世界初の観測(Fujiwara et al., 2001)、熱帯太平洋の上部対流圏・下部成層圏の水蒸気の東西分布の解明(Voemel et al., 2002)、観測空白域であった熱帯東・中央太平洋のオゾン分布とその変動の解明(Shiotani et al., 2002; Takashima et al., 2008)などが、第一期の主たる成果である。また、科学的研究と並行して、高精度水蒸気ゾンデの検証・改良にも世界的に重要な役割を果たしてきている(e.g., Fujiwara et al., 2003)。最近では、対流圏界面領域における大規模な準水平輸送における脱水過程が注目されており、大気大循環モデルを用いた研究(Hatsushika and Yamazaki, 2003)や衛星データを用いた研究(Eguchi and Shiotani, 2004)がある。SOWER ではこれらの研究を踏まえ、そ

の場観測による脱水過程の定量化を目指し、近年、多地点準同時観測(いわゆる“MATCH”観測)を実施してきている(Hasebe et al., 2007)。さらに、ライダーによる雲粒子観測を組み合わせ、脱水過程の雲物理学の解明にも力を入れている(Shibata et al., 2007)。

(6) Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) プロジェクト

(1)に述べたように、SOWER とは別に熱帯対流圏オゾンの東西波数1構造の問題をひとつの動機としたプロジェクト、Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ)が NASA(当時)の Anne M. Thompson を中心として計画され、1998年から始まっている。個別のグループにより維持されてきていた既存の熱帯のオゾンゾンデ観測地点にゾンデや気球を供給し、データアーカイブ・配布用の website を運営するという形で、熱帯オゾンゾンデ観測ネットワークを構築した。常時10~14の地点がこのプロジェクトに参加して現在(2008年)に至っている。既出のインドネシア・ワトコセ、マレーシア・クアラルンプールも参加しており、日本人グループの貢献も大きい。SHADOZのデータセットは、東西波数1構造の解明(Thompson et al., 2003)のほかに、特に熱帯対流圏界層(Tropical Tropopause Layer, TTL)の構造解明に重要な貢献をした。日本人によるSHADOZデータを用いたTTLの研究としては Takashima and Shiotani (2007)がある。

(7) 今後の課題

1990年代から2000年代の15年あまり、日本人研究者は熱帯の国々と密接な研究協力体制を築きながら、大気化学に関する多くの観測的研究をおこなってきた。特に、東南アジア域においては、世界的に重要な貢献をしてきたといえる。気候変動および大気質変動の問題が重要視されるようになってきた現在、この地域の大気質変動の監視、およびプロセスの解明はますます重要となってきたといえる。一部については長期間に渡ってデータが蓄積してきたので、長期変動の問題に真正面から取り組むべきである。また、日本人研究者の活動により、現地研究者の活動のレベルも向上してきたといえる。これまでの継続観測の部分を徐々に現地研究者の主導に切り替えていくと同時に、日本人研究者はエアロゾル測定などより高度な研究の方向性を模索するべきである。数値モデルを用いたプロセスの定量的解明は不十分であるので、今後力を入れていくべきである。以下にいくつかの具体的な研究課題について言及する。

A) 熱帯対流圏・下部成層圏オゾン：年々変動から、10年規模変動・長期トレンドへ

インドネシアにおけるオゾンゾンデ定常観測は今年(2008年)で16年目を迎えた。また、SHADOZプロジェクトも11年目を迎えた。エルニーニョ・南方振動や、インド洋ダイポールモード現象に伴う顕著な年々変動の問題は依然として重要であるが(特に、メカニズム解明、モデルによる定量的再現、自然起源によるものと人間活動の影響との分離)、さらに、対流圏・下部成層圏の各高度領域における10年規模変動、および、長期トレンドを議論できる状況に入りつつあると考えられる。こういった気候変動の問題に、現場観測の立場から取り組むことが必要である。

B> “発展する”熱帯の国々と越境大気汚染～全球大気質

日本人研究者が強い研究協力体制を築いてきた東南アジア域は、世界的に見ても経済発展が著しい。これに伴い、越境大気汚染、全球大気質変動の問題はますます重要となっている。気体成分の定常観測をさらに強化するとともに、エアロゾルの定常観測点の確立を検討するべきである。また、この地域には日本の気象力学の観測研究者も精力的に展開してきている(京都大学のグループ等)。今後さらに連携を強化し、物質輸送過程の総合的理解を目指すべきである。

C> アジアモンスーンと大気化学

アジアモンスーン循環に伴う大気質変動の研究は、不思議なことにいまだ立ち遅れている。対流圏下層中層においては、雨季・乾季、バイオマス燃焼が絡んだオゾン変動、エアロゾル変動の実態把握が必要であるし、上部対流圏・下部成層圏については、モンスーン循環とその変動に伴う特有の成層圏対流圏大気交換過程が存在しており、その観測的研究およびメカニズム解明が必要である。

D> 熱帯対流圏界層(TTL)のサイエンス

世界的には、水蒸気の問題から、雲物理学の問題へと進んでいる。また、世界的にみても現場観測を継続しているグループは大変少ない。したがって、現場観測の立場からこの問題に取り組んでいくことが、世界の TTL サイエンスコミュニティへの大きな貢献である。また、モデリングの観点からは、短寿命ハロゲン種等の TTL への鉛直輸送とその成層圏光化学へのインパクトが議論されるようになってきている。成層圏オゾンの経年変化に重要な役割を果たしているのではないかと考えられるようになってきているからである。この問題についても現場観測の立場からの貢献を考えていく必要がある。

E> モデリング、および、対流圏と中層大気との相互作用

熱帯の大気化学のモデリングはいまだ充分であるとは言えない。1997 年のエルニーニョに伴うオゾン変動の事例についても、定量的に十分に詰められたとはいえない。対流圏オゾン変動のモデリングの際には、各種物質の地表からのフラックス量のデータが不可欠であり、これらのデータ収集・整備の努力も必要である。現地との協力体制を持つ強みを活かしたい。また、成層圏と対流圏との間の大気交換過程(Stratosphere-Troposphere Exchange、STE)およびその定量化についても不十分である。成層圏側については、Chemistry-Climate Model Validation Activity (CCMVal)という枠組みの一部という形でモデル間の STE の比較の取り組みが始まっており、日本としても積極的な貢献が求められている。対流圏側については STE はオゾンフラックスの観点で非常に重要である。モデリングのコミュニティでは、対流圏と成層圏・中間圏を同時に扱う大気化学・気候モデリングという新しい方向性が提示されている。成層圏対流圏大気交換過程の問題を契機として、日本でも、モデリングに限らず、対流圏と成層圏の垣根を越えるような研究活動

が期待される。

- Eguchi N., M. Shiotani (2004), Intraseasonal variations of water vapor and cirrus clouds in the tropical upper troposphere, *J. Geophys. Res.*, 109, D12106, doi:10.1029/2003JD004314.
- Fujiwara, M., K. Kita, and T. Ogawa (1998), Stratosphere–troposphere exchange of ozone associated with the equatorial Kelvin wave as observed with ozonesondes and rawinsondes, *J. Geophys. Res.*, 103(D15), 19173–19182.
- Fujiwara, M., K. Kita, S. Kawakami, T. Ogawa, N. Komala, S. Saraspriya, and A. Suropto (1999), Tropospheric Ozone Enhancements During the Indonesian Forest Fire Events in 1994 and in 1997 as Revealed by Ground–Based Observations, *Geophys. Res. Lett.*, 26(16), 2417–2420.
- Fujiwara, M., K. Kita, T. Ogawa, S. Kawakami, T. Sano, N. Komala, S. Saraspriya, and A. Suropto (2000), Seasonal variation of tropospheric ozone in Indonesia revealed by 5–year ground–based observations, *J. Geophys. Res.*, 105(D2), 1879–1888.
- Fujiwara, M., F. Hasebe, M. Shiotani, N. Nishi, H. Vömel, and S. J. Oltmans (2001), Water vapor control at the tropopause by equatorial Kelvin waves observed over the Galápagos, *Geophysical Research Letters*, 28, No. 16, 3143–3146.
- 藤原正智, 赤道ケルビン波に伴う成層圏対流圏大気交換と熱帯対流圏界面領域の研究—2000年度山本・正野論文賞受賞記念講演—, *天気*, 48(11), 801–810.
- Fujiwara, M., M. Shiotani, F. Hasebe, H. Vömel, S. J. Oltmans, P. W. Ruppert, T. Horinouchi, and T. Tsuda (2003), Performance of the Meteolabor “Snow White” chilled–mirror hygrometer in the tropical troposphere: Comparisons with the Vaisala RS80 A/H–Humicap sensors, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 20, Issue 11, 1534–1542.
- 藤原正智, 山崎孝治, 成層圏対流圏結合, *天気*, 54(7), 597–600.
- Hasebe, F. (1994), Quasi–Biennial Oscillations of Ozone and Diabatic Circulation in the Equatorial Stratosphere. *J. Atmos. Sci.*, 51, 729–745.
- Hasebe, F., M. Fujiwara, N. Nishi, M. Shiotani, H. Vömel, S. Oltmans, H. Takashima, S. Saraspriya, N. Komala, and Y. Inai (2007), In situ observations of dehydrated air parcels advected horizontally in the Tropical Tropopause Layer of the western Pacific, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 803–813.
- Hatsushika H., K. Yamazaki (2003), Stratospheric drain over Indonesia and dehydration within the tropical tropopause layer diagnosed by air parcel trajectories, *J. Geophys. Res.*, 108 (D19), 4610, doi:10.1029/2002JD002986.
- Iwasaki, S., Maruyama, K., Hayashi, M., Ogino, S.–Y., Ishimoto, H., Tachibana, Y., Shimizu, A., Matsui, I., Sugimoto, N., Yamashita, K., Saga, K., Iwamoto, K., Kamiakito, Y., Chabangborn, A., Thana, B., Hashizume, M., Koike, T., and Oki, T. (2007), Characteristics of aerosol and cloud

- particle size distributions in the tropical tropopause layer measured with optical particle counter and lidar, *Atmos. Chem. Phys.*, *7*, 3507–3518.
- Kita, K., M. Fujiwara, and S. Kawakami (2000), Total ozone increase associated with forest fires over the Indonesian region and its relation to the El Niño–Southern oscillation, *Atmospheric Environment*, *34*, Issue 17, 2681–2690.
- Kita, K., S. Kawakami, Y. Miyazaki, Y. Higashi, Y. Kondo, N. Nishi, M. Koike, D.R. Blake, T. Machida, T. Sano, W. Hu, M. Ko, and T. Ogawa (2002), Photochemical production of ozone in the upper troposphere in association with cumulus convection over Indonesia, *J. Geophys. Res.*, *107*, 8400, doi: 10.1029/2001JD000844.
- Koike, M., Y. Kondo, D. Akutagawa, K. Kita, N. Nishi, S.C. Liu, D.R. Blake, S. Kawakami, N. Takegawa, M. Ko, Y. Zhao, and T. Ogawa (2002), Reactive nitrogen over the tropical Western Pacific: Influence from lightning and biomass burning, *J. Geophys. Res.*, *107*, 8403, doi: 10.1029/2001JD000823.
- Koike, M., Y. Kondo, K. Kita, N. Takegawa, N. Nishi, B. Liley, T. Kashihara, S. Kudoh, S. Kawakami, D. Blake, T. Shirai, M. Ko, Y. Miyazaki, Z. Kawasaki, and T. Ogawa (2007), Measurements of Reactive Nitrogen Produce by Tropical Thunderstorms during BIBLE–C, *J. Geophys. Res.*, *112*, D18304, doi:10.1029/2006JD008193.
- Kondo, Y., M. Ko, M. Koike, S. Kawakami, and T. Ogawa (2002), Preface to special section on Biomass Burning and Lightning Experiment (BIBLE), *J. Geophys. Res.*, *107*, 8397, doi:10.1029/2001JD002401.
- 近藤豊、竹川 暢之、小池 真、白井知子、北和之、小川利紘 (2007)、大型航空機による大気化学観測 –BIBLE/PEACE 計画–、*気象研究ノート*、215, 67 – 79.
- Matsueda, H., and H. Inoue (1999), Aircraft Measurements of Trace Gases Between Japan and Singapore in October of 1993, 1996, and 1997, *Geophys. Res. Lett.*, *26*(16), 2413–2416.
- Nagashima, T., M. Takahashi, and F. Hasebe (1998), The First Simulation of an Ozone QBO in a General Circulation Model, *Geophys. Res. Lett.*, *25*(16), 3131–3134.
- Nakajima, T., A. Higurashi, N. Takeuchi, and J. Herman (1999), Satellite and Ground–Based Study of Optical Properties of 1997 Indonesian Forest Fire Aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, *26*(16), 2421–2424.
- Shibata, T., H. Vömel, S. Hamdi, S. Kaloka, F. Hasebe, M. Fujiwara, and M. Shiotani (2007), Tropical cirrus clouds near cold point tropopause under ice supersaturated conditions observed by lidar and balloon–borne cryogenic frost point hygrometer, *Journal of Geophysical Research*, *112*, D03210, doi:10.1029/2006JD007361.
- Shiotani, M. (1992), Annual, Quasi–Biennial, and El Niño–Southern Oscillation (ENSO) Time–Scale Variations in Equatorial Total Ozone, *J. Geophys. Res.*, *97*(D7), 7625–7633.
- Shiotani, M., and F. Hasebe (1994), Stratospheric ozone variations in the equatorial region as seen

- in Stratospheric Aerosol and Gas Experiment data, *J. Geophys. Res.*, 99(D7), 14575–14584.
- Shiotani, M., M. Fujiwara, F. Hasebe, H. Hashizume, H. Vömel, S. J. Oltmans, and T. Watanabe (2002), Ozone-sonde observations in the equatorial Eastern Pacific – the Shoyo-maru survey –, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 80, No. 4B, 897–909.
- Shirai, T., D.R. Blake, S. Meinardi, F.S. Rowland, J. Russel-Smith, A. Edwards, Y. Kondo, M. Koike, K. Kita, T. Machida, N. Takegawa, N. Nishi, S. Kawakami, and T. Ogawa, et al. (2003), Emission estimates of selected volatile organic compounds from tropical savanna burning in northern Australia, *J. Geophys. Res.*, 108, doi: 10.1029/2001JD000841.
- Sudo, K., and M. Takahashi (2001), Simulation of Tropospheric Ozone Changes During 1997–1998 El Niño: Meteorological Impact on Tropospheric Photochemistry, *Geophys. Res. Lett.*, 28(21), 4091–4094.
- Takashima H., M. Shiotani (2007), Ozone variation in the tropical tropopause layer as seen from ozone-sonde data, *J. Geophys. Res.*, 112, D11123, doi:10.1029/2006JD008322.
- Takashima, H., M. Shiotani, M. Fujiwara, N. Nishi, and F. Hasebe (2008), Ozone-sonde observations at Christmas Island (2N, 157W) in the equatorial central Pacific, *Journal of Geophysical Research*, 113, D10112, doi:10.1029/2007JD009374.
- Takegawa, N., Y. Kondo, M. Ko, M. Koike, K. Kita, D. R. Blake, W. Hu, C. Scott, S. Kawakami, J. Russell-Smith, and T. Ogawa (2003), Photochemical production of O₃ in biomass burning plumes in the boundary layer over northern Australia, *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi:10.1029/2003GL017017.
- Thompson, A. M., J. C. Witte, R. D. Hudson, H. Guo, J. R. Herman, and M. Fujiwara (2001), Tropical tropospheric ozone and biomass burning, *Science*, 291, No. 5511, 2128–2132.
- Thompson, A. M., J. C. Witte, S. J. Oltmans, F. J. Schmidlin, J. A. Logan, M. Fujiwara, V. W. J. H. Kirchhoff, F. Posny, G. J. R. Coetzee, B. Hoegger, S. Kawakami, T. Ogawa, J. P. F. Fortuin, and H. M. Kelder (2003), The 1998–2000 SHADOZ (Southern Hemisphere ADditional OZone sondes) tropical ozone climatology. 2. Tropospheric variability and the zonal wave-one, *Journal of Geophysical Research*, 108, No. D2, 8241, doi:10.1029/2002JD002241.
- Tsutsumi, Y., Y. Sawa, Y. Makino, J. Jensen, J. Gras, B. Ryan, S. Diharjo, and H. Harjanto (1999), Aircraft Measurements of Ozone, NO_x, CO, and Aerosol Concentrations in Biomass Burning Smoke Over Indonesia and Australia in October 1997: Depleted Ozone Layer at Low Altitude Over Indonesia, *Geophys. Res. Lett.*, 26(5), 595–598.
- Vömel, H., S. J. Oltmans, B. J. Johnson, F. Hasebe, M. Shiotani, M. Fujiwara, N. Nishi, M. Agama, J. Cornejo, F. Paredes, and H. Enriquez (2002), Balloon-borne observations of water vapor and ozone in the tropical upper troposphere and lower stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, 107, No. D14, 4210, doi:10.1029/2001JD000707.

Yonemura S., H. Tsuruta, S. Kawashima, S. Sudo, L. C. Peng, L. S. Fook, Z. Johar, and M. Hayashi (2002), Tropospheric ozone climatology over Peninsular Malaysia from 1992 to 1999, *J. Geophys. Res.*, 107 (D15), 4229, doi:10.1029/2001JD000993.

3. 6. 化学気候モデル研究

(1) はじめに

大気中のエアロゾル(微粒子)や人為起源の気体の一部(光化学オゾン(O_3)、窒素酸化物(NO_x)、一酸化炭素(CO)など)は、大気環境悪化や健康被害をもたらすだけでなく、気候変動因子の 1 つと考えられている。気象学・環境学・医学等の観点から、エアロゾルやオゾン、 NO_x 、CO 等の広域的な動態を把握することは重要であるため、観測網を展開したり人工衛星搭載センサによるリモートセンシングを用いたりすることにより、それらの特性や分布に関するデータが蓄積され、解析が行われている。しかし、時空間的に連続的な分布の把握・予測、および観測からは得られないパラメータの見積もりなどを行なう場合には、モデリング研究によるシミュレーションが有効である。本節では、これまでに日本で開発が進められ、世界的に認められている全球エアロゾル気候モデル SPRINTARS (Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species)と全球化学気候モデル CHASER (CHemical AGCM for Study of atmospheric Environment and Radiative forcing)を紹介し、気候変動に関する政府間パネル(IPCC)において気候変動評価を大きく左右すると位置づけられているエアロゾルの気候影響評価や、大気化学モデルによる化学・気候モデリング研究に関して、これまでの研究を振り返る。それを踏まえた上で、エアロゾル・化学気候モデルを用いた研究に関する今後の課題・展望を述べる。

(2) SPRINTARS と CHASER の概要

SPRINTARS (Takemura et al., 2000, 2002, 2005)は、東京大学気候システム研究センター(CCSR)/国立環境研究所(NIES)/地球環境フロンティア研究センター(FRCGC)共有の全球大気海洋結合モデル MIROC をベースとしている全球 3 次元エアロゾル気候モデルである。標準的な水平分解能は T42(約 2.8 度×約 2.8 度)もしくは T106(約 1.1 度×約 1.1 度)、鉛直分解能は 20 層もしくは 56 層である。扱っている物質は、対流圏主要エアロゾルである土壌・海塩・黒色炭素(すす)・有機物・硫酸塩の他、硫酸塩エアロゾルの前駆物質気体である二酸化硫黄(SO_2)と硫化ジメチル(DMS)である。エアロゾル輸送過程は、発生・移流・拡散・化学反応・除去に大別される。気候に対するエアロゾルの効果として、直接効果・準直接効果・間接効果があると言われている。直接効果とは、エアロゾルが太陽放射や赤外放射を散乱・吸収することにより大気のエネルギー収支に変化をもたらし、気候変動を引き起こすことである。準直接効果は、放射を吸収するエアロゾル(黒色炭素・土壌エアロゾル等)により大気が加熱され、大気の安定度が変化することや、それに伴い雲生成が変化することにより気候変動を引き起こすことである。また、凝結核や氷晶核の役割をするエアロゾルが存在しないと、雲は生成されない。したがって、エアロゾルが増減することにより雲の性質が変化することになり、これが間接効果と呼ばれている。これらエアロゾルの気候に対する影響が、SPRINTARS には含まれている。

CHASER (Sudo et al., 2002a, 2002b)も、MIROC をベースとした全球 3 次元化学モデルである。標準的な水平分解能は T42、鉛直分解能は 32 層である。対流圏化学版では 53 の化学種を扱い、

152 の化学反応を考慮し、オゾン、メタン(CH₄)、CO、NO_x、NMVOCs、および硫酸塩・硝酸塩エアロゾルのシミュレーションを行なう。モデル内では、大気中の光化学反応・人為および自然起源気体放出過程・地表面および降水による沈着過程等の詳細な化学過程が計算される。CHASER により計算されるオゾン(O₃)や前駆気体(NO_x, CO, 炭化水素類 VOCs 等)および重要関連気体の分布は、人工衛星や航空機を利用した各種観測データと定量的にも良い一致を見せており、対流圏オゾン化学のシミュレーション能力としては世界的にも最先端をいくものである。CHASER モデルは対流圏オゾン化学を主眼として開発されたものであるが、現在は成層圏オゾン化学のシミュレーションも同時に行なえるよう、開発・改良が継続されており、気候と成層圏・対流圏化学の相互作用の研究を目指している。さらに、エアロゾルモデル SPRINTARS と結合し、大気化学・エアロゾルの結合シミュレーションが行なえるようになってきており、地球環境フロンティアが中心となって実施している地球システムモデリングの一部として研究・開発が進められている。

(3) モデルによるエアロゾルの分布の再現および気候影響の評価

図 3.6-1 には、SPRINTARS によるエアロゾル光学的厚さ・オンゲストローム指数・1 次散乱アルベドの年平均分布を示す。光学的厚さとは、大気放射のある波長(ここでは太陽光の領域である波長 0.55 ミクロン)における「光」から見た該当物質の大気中の積算値であり、エネルギーが 1/e に減衰する場合に光学的厚さは 1 となる。オンゲストローム指数は、ある 2 波長間の光学的厚さの対数の傾きであり、エアロゾルの粒径の指標となる。1 次散乱アルベドは、消散(散乱+吸収)に対する散乱の比である。光学的厚さ・オンゲストローム指数・1 次散乱アルベドのこれらの特徴は、地上や衛星からのリモートセンシングによる解析結果と類似していることが確認されている(Takemura et al., 2002)。

図 3.6-2 は、産業革命以前を基準に取った場合の、現在におけるエアロゾルの直接・間接効果放射強制力である。すなわち、人為起源エアロゾルによる放射強制力と考えられる。放射強制力とは、該当する気候強制因子による大気放射収支の変化であり、重要な気候変動の指標である。IPCC での定義に則り、対流圏界面での計算結果を示している。直接効果は、北半球中緯度の都市域で工業・生活燃料起源、アフリカ中南部や南アメリカで森林火災・焼き畑起源の硫酸塩エアロゾルや有機物エアロゾルにより、負の放射強制力が -1 W m^{-2} を超える地域が広範囲に渡っている。一方、それらの流出域では、正の強制力を持つ地域が多くなっており、特に北太平洋・アフリカ南部沖・ペルー沖といった低層雲が広がる地域で顕著である。これは、低層雲により多重散乱された太陽放射が都市域や森林火災地域から流出した黒色炭素により吸収されるためであり、雲の高度がエアロゾルの高度と同程度か低い場合に、この現象が起こる(Takemura et al., 2002)。したがって、直接効果を精度良く評価するには、雲の 3 次元分布も正しくシミュレートする必要があることが分かる。間接効果には、大別して、雲水量を固定して考えた場合、エアロゾル数の増減により雲粒径が増減し、雲アルベドが変化して大気放射収支が変調する第 1 種間接効果と、雲粒径の増減に伴い雲から降水への成長過程速度に変化が生じ、降水効率や雲寿命が変調する第 2 種間接効果とがある。図は第 1 種・第 2 種間接効果合計の結果を示しているが、全球的に負の強

制力を持つ領域が大部分を占める。特に、人為起源エアロゾルの影響が強いアジア・ユーラシア・南北アメリカ・アフリカ中南部で負の強制力が強いことを示している。対流圏界面での人為起源エアロゾルの直接・間接効果放射強制力の全球平均値は、それぞれ -0.1 、 -0.9 W m^{-2} と見積もられている。

SPRINTARS によるエアロゾル放射強制力の評価は、IPCC 第 4 次評価報告書(IPCC, 2007)に引用された。また、CHASER による対流圏オゾンの放射強制力の評価も同報告書に引用された。

(4) モデルによる全球オゾン変動とその気候影響の評価

CHASER によるオゾンおよび関連化学種のシミュレーションについては、地上、ゾンデ、航空機、衛星による各種観測値を用い、詳細に評価されている(Sudo et al., 2002b)。これらの化学種が持つ直接的な気候影響としては、特にオゾンの放射強制力が重要であり、産業革命以前から現在までの全球的なオゾン分布変動とともにその評価が行なわれている。産業革命以前(1850 年)から現在(2000 年)までの全球オゾン分布の変化について、CHASER により再現計算を行なうと、汚染起源の前駆気体の増加により中上部対流圏および対流圏界面領域で顕著にオゾンが増加したことが分かる。さらに、ハロゲン化学種(フロンなど)に起因する成層圏オゾン破壊も考慮すると、成層圏で著しくオゾンが減少する様子が見られるだけでなく、このオゾン減少により対流圏へのオゾン流入量も減少し、対流圏でのオゾン増加が抑制されることが計算されている。このような20世紀中の複合的な全球オゾン変動の計算は、オゾンゾンデによる観測データと比較され、概ね整合的であることが確認されている。図 3.6-3 は対流圏オゾン増加(成層圏オゾン減少の影響は含まず)による放射強制力分布を示す。北半球夏季では、ユーラシア大陸中央部や中米付近に顕著な強制力($>1.5 \text{ W m}^{-2}$)が計算されている。これは、オゾン増加の水平分布だけでなく、雲の分布などに起因する長波・短波放射の水平分布も反映したものであることが判明している。全球平均の強制力としては、 4.8 W m^{-2} と計算され、このうち、長波放射によるものが 4.0 W m^{-2} 、短波放射が 0.8 W m^{-2} である。このような放射強制力計算は、IPCC-AR4 (IPCC, 2007)に関連するモデル間相互比較プロジェクト(ACCENT-MIP)でも行なわれ、各モデルによる放射強制力の平均や偏差について詳しく議論された(Gauss et al., 2006; IPCC, 2007)。

(5) エアロゾル・化学気候モデルの今後の課題および展望

CHASER と SPRINTARS の結合は、文部科学省新世紀重点研究創生プラン「人・自然・地球共生プロジェクト」第 2 課題および、21 世紀気候変動予測革新プログラムの「地球システム統合モデルによる長期気候変動予測実験」の下に進められ、フレームワークは完成している。この結合モデルを用いることにより、例えば、硫酸塩エアロゾル生成に必要な過酸化水素(H_2O_2)・水酸化ラジカル(OH)・および O_3 との相互依存性が陽に計算可能となる。さらに、CHASER-SPRINTARS 結合モデルは、炭素循環モデル等も含まれる、いわゆる「地球システムモデル」にも組み込まれており、今後は地球システムモデルを用いた統合的なシミュレーションによる研究という方向性が具体化していくものと思われる。

国際的な動向としては、Atmospheric Chemistry and Climate (AC&C)の活動が重要となってきている。これは、IGBP/IGAC および WCRP/SPARC の連携プロジェクトであり、これまでに活動が進展している Aerosol Model Intercomparison Project (AeroCom), Chemistry-Climate Model Validation Activity (CCM-Val), Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP) 等の研究グループを取り込みながら、IPCC 第 5 次評価報告書 (AR5) への貢献を目指している。AC&C では、化学種およびエアロゾルに関する過去 20～30 年の再現、鉛直分布の検証、雲の化学、将来予測といった活動を行っていくことになっている。また、2008 年下半期には、IPCC AR5 へ向けた次期排出量予測シナリオが公表予定となっている。今後、このシナリオに沿って気候変動の将来予測実験が行われることになる。

エアロゾル気候モデルおよび化学モデルは、最近約 10 年間で著しく高度化してきており、その気候影響評価の不確実性が小さくなっていることが期待される。しかし一方で、モデリングによる研究が多くのグループでなされるようになり、評価が分散する傾向にあることも否めない。モデルによるシミュレーションの不確実性を小さくするために、適切な排出量の推定値データベースの構築をさらに進めることはもちろんのこと、モデルを検証するという側面から、以下のような事項が観測に求められる。

- モデルを用いて化学種やエアロゾルの「気候」に対する影響を研究する場合には、基本的なパラメータのみでも構わないので、空間代表性の高い長期間の観測データが非常に有用である
- 大気汚染の研究をする場合やプロセス研究をする場合には、長期間の観測データと短期間でも詳細な観測データの両方が必要である
- 能動センサによるエアロゾル・雲の鉛直分布観測に関して、空間代表性の高い長期間のデータが気候研究・大気汚染研究両者に重要である

また、データ同化手法を用いたモデルの精度向上及びエアロゾル・化学種排出量の推定が今後進められていくであろう。

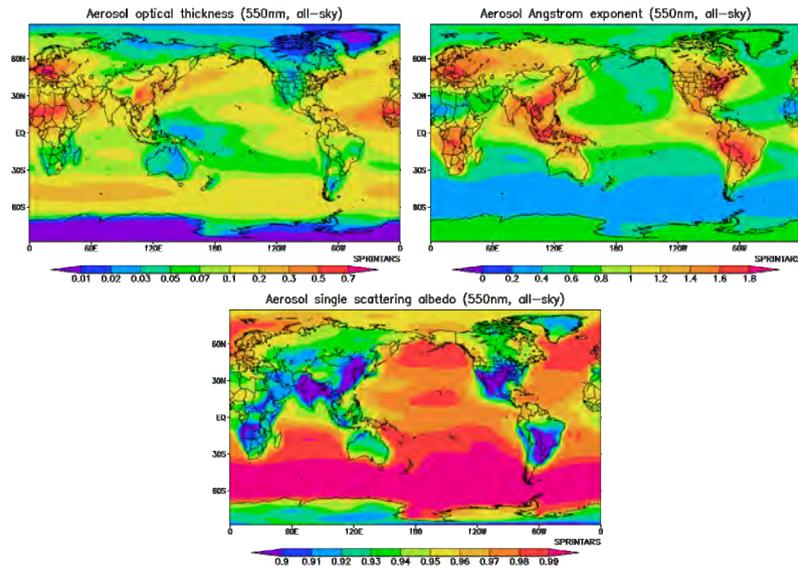


図 3.6-1 SPRINTARS によりシミュレートされたエアロゾルの光学的厚さ(550nm) (左上)・オンゲストローム指数(右上)・1次散乱アルベド(550nm) (下)の年平均分布(Takemura et al., 2002a)。

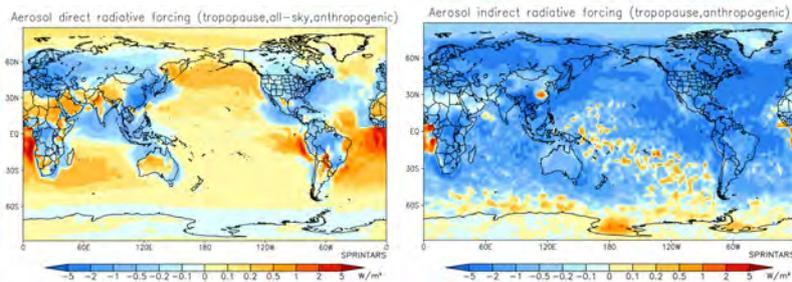


図 3.6-2 SPRINTARS によりシミュレートされた人為起源エアロゾルによる直接効果放射強制力(左)と間接効果放射強制力(右)の年平均分布(Takemura et al., 2005)。

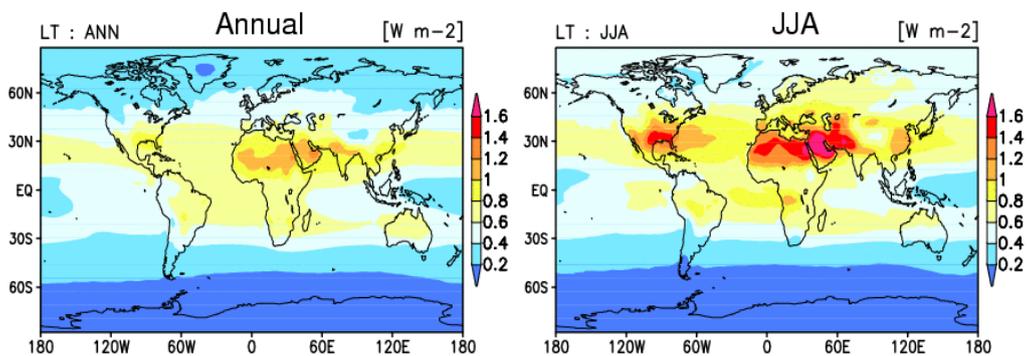


図 3.6-3 CHASER により計算された対流圏オゾン増加による放射強制力。年間平均(左)と北半球夏季(右)。

- Gauss M., G. Myhre, I. S. A. Isaksen, W. J. Collins, F. J. Dentener, K. Ellingsen, L. K. Gohar, V. Grewe, D. A. Hauglustaine, D. Iachetti, J.-F. Lamarque, E. Mancini, L. J. Mickley, G. Pitari, M. J. Prather, J. A. Pyle, M. G. Sanderson, K. P. Shine, D. S. Stevenson, K. Sudo, S. Szopa, O. Wild, and G. Zeng, 2006: Radiative forcing since preindustrial times due to ozone change in the troposphere and the lower stratosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 575–599.
- Sudo K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto, 2002a: CHASER: A global chemical model of the troposphere, 1. Model description. *J. Geophys. Res.*, 107 (D17), 4339, doi:10.1029/2001JD001113.
- Sudo K., M. Takahashi, and H. Akimoto, 2002b: CHASER: A global chemical model of the troposphere, 2, Model results and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 107 (D21), 4586, doi:10.1029/2001JD001114.
- Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima, 2000: Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins. *J. Geophys. Res.*, 105, 17853–17873.
- Takemura, T., T. Nakajima, O. Dubovik, B. N. Holben, and S. Kinne, 2002: Single-scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model. *J. Climate*, 15, 333–352.
- Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima, 2005: Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model. *J. Geophys. Res.*, 110, D02202, doi:10.1029/2004JD005029.
- Takemura, T., Y. Tsushima, T. Yokohata, T. Nozawa, T. Nagashima, and T. Nakajima, 2006: Time evolutions of various radiative forcings for the past 150 years estimated by a general circulation model. *Geophys. Res. Lett.*, 33, L19705, doi:10.1029/2006GL026666.

3. 7. 有機エアロゾル

(1) 有機エアロゾルの分子レベル組成、分布、起源

大気粒子中に存在する有機物は、エアロゾル質量の数%から数十%を占める重要な画分である。一般に、微粒子ほど有機物を濃集しており、粒径 1 μm 以下の微粒子ではその割合はしばしば 50%を超える。エアロゾルを構成する有機物は、疎水性の炭化水素から親水性の低分子ジカルボン酸に至るまで多岐にわたる。有機エアロゾルには、一次生成されるものと(排出源から直接放出)、二次生成されるもの(大気中の反応によって生成)に大別できる。それぞれが、自然および人為起源を持っており、それらは更に大気中の酸化反応によって変質する。これらの過程により有機エアロゾルの化学組成は大きく変動し、エアロゾル粒子の吸湿特性・雲凝結核特性、放射特性、健康被害などに多大な影響を及ぼす。例えば、極性成分に富む有機エアロゾルは、雲核とし

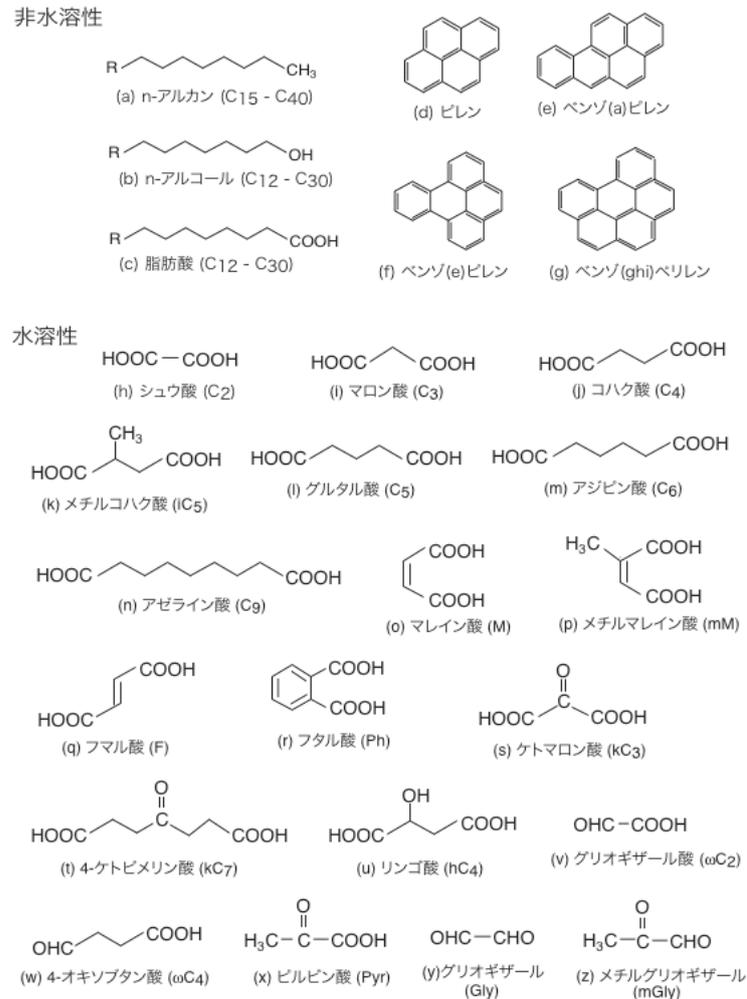


図 3.7-1. 大気エアロゾル中に検出される非水溶性(有機溶媒で抽出可能)および水溶性(水で抽出可能)な代表的有機化合物

て水蒸気の凝結・雲生成を促進する。一方、粒子表面が疎水性有機物で覆われると、エアロゾルの凝結核特性は低下し、雲はできにくくなる。このように有機エアロゾルは雲形成・放射・気候変動に深く関与する(Kanakidou et al., 2005)。

有機物の極性は、官能基の種類と炭素鎖の長さ、すなわち、有機物の化学構造によって決まる。図 3.7-1 に、エアロゾル中に報告されている代表的な水溶性および非水溶性有機化合物を示す。非水溶性有機物として、直鎖炭化水素(ノルマルアルカン)が最も一般的である。通常の大気環境下では、炭素数が C_{12} 以下のアルカンがほとんどが気相中に存在する。しかし、 C_{12} 以上のアルカンでも一部はガス相として存在し、ガス・粒子の分配は炭素数と気温に大きく支配される。都市大気中にガス相として存在するアルカンの濃度は粒子相のアルカンに対して数十から数百倍高いと考えられる。植物の葉の表面には、 C_{27} , C_{29} , C_{31} , C_{33} など奇数炭素からなる長鎖 n -アルカンがワックス成分として存在する。ワックス表面は、一見なめらかに見えるが、顕微鏡で拡大すると鱗状または針状の結晶からなっていることがわかる。それらワックスは、風により葉と葉、葉と枝が擦れることにより、葉の表面からはがれ落ち大気エアロゾル粒子となる。

一方、石油・石炭起源の n -アルカンでは奇数と偶数の n -アルカンの濃度比は 1 となる。それらは、不完全燃焼生成物(排気ガス)として大気中に放出され、大気中で冷却の過程でエアロゾル粒子となる。これら炭化水素は、水との親和性が弱いため大気中の水蒸気を凝結させる能力は低いため、エアロゾル表面がアルカンで覆われると粒子の吸湿特性は抑えられることになる。原油中には、分枝および環状の炭化水素の位置異性体が数多く存在するが、その数が多いために高分解能ガスクロマトグラフ(GC)でも相互に分離することができない。そのために、GC クロマトグラム上に Unresolved Complex Mixture (UCM)としてなだらかな山として現れる。UCM 炭化水素の濃度は、都市域では高 n -アルカンの約 10 倍にも達する。これらの UCM は、もともと、原油中でバクテリアが n -アルカンを分解する際に生成し、微生物の変質を受けた原油中で広く存在する。UCM 炭化水素は潤滑油画分にも存在し、大気中の UCM 炭化水素は燃焼過程で潤滑油の一部が大気中に放出されたものも含まれる。原油起源のトリテルペノイド炭化水素(ホパン、 C_{27} - C_{35})は、内燃機関の潤滑油を通して大気中に放出される。

ピレン、ベンゾピレンなどの多環芳香族炭化水素(PAH)は(図 3.7-1)、化石燃料やバイオマス燃焼の過程で生成し大気中に放出される。PAH はベンゼン環を持つために n -アルカンにくらべてやや極性を持つが、水には溶けにくい。都市大気中での PAH の濃度は比較的高く n -アルカンの数分の一程度である。しかし、水酸基(OH)ラジカルによる酸化反応を受けるため分解しやすい。そのために長距離輸送の間に PAH は分解を受け、含酸素有機物へと変化する。ガソリン燃料中には、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素とそのアルキル誘導体がオクタン価をあげる成分(アンチノック剤)として添加されており、それらの一部は燃焼過程で酸化を受けることなく大気中に放出される。これらの芳香族炭化水素やその燃焼過程での酸化中間生成物(芳香族アルデヒド、フェノール類など)は大気中での光化学的反応により低分子のカルボン酸などに変換され、その一部が有機エアロゾルとなる。

高級アルコールおよび脂肪酸も有機エアロゾルの主要な成分である(図 3.7-1)。これらは、もと

もと陸上植物の葉のワックス成分として存在し、ノルマルアルカンの場合と同様に風による作用によって大気中に移行する。しかし、アルカンとは異なり、強い偶数優位性を示す。植物の葉は土壤中で分解され、土壤有機物を形成するが、炭素数が 20 以上のアルコール・脂肪酸は土壤中での微生物活動によっても完全には分解されず土壤有機物として長期にわたり残存する。そのため、黄砂粒子など土壤由来のエアロゾル中には、高い濃度のアルコールや脂肪酸が検出される。これらの有機物は、炭素鎖が長くなるほど水に対する溶解度は減少する。特に、脂肪酸では、エアロゾルの液滴表面で界面活性を示し、カルボキシル基は液相中に、アルキル基は大気に接する状態で存在することになる。このような成分は、液滴の表面で単分子膜を形成しエアロゾルの凝結やその後の成長過程に大きな影響を及ぼす。

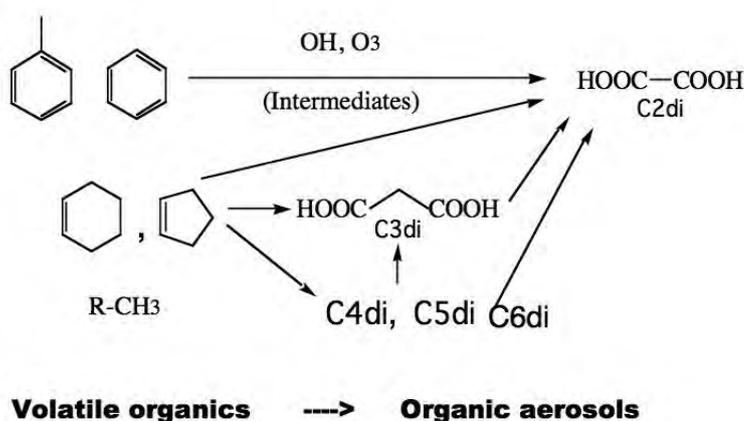


図 3.7-2. 汚染性の炭化水素からの低分子ジカルボン酸の生成[Hatakeyama et al., 1987; Kawamura et al., 1996]

エアロゾル炭素の約半分は、水に溶ける(水溶性)成分からなっている。そのうちで、最も濃度が高い化合物群が低分子ジカルボン酸(C₂-C₁₀)である。ジカルボン酸は、分子の両端にカルボキシル基を持っておりその極性は極めて高く、水によく溶ける。シュウ酸(C₂)は、大気エアロゾル中で最も濃度の高いジカルボン酸であり、マロン酸(C₃)、コハク酸(C₄)がこれに続く。ジカルボン酸の濃度は、一般に、炭素数が長くなるとともに濃度は減少する。これらジカルボン酸は車の排気ガス中に高い濃度で存在するが[Kawamura and Kaplan, 1985]、大部分は大気中で光化学的反応により二次的に生成するものである[Kawamura and Ikushima, 1993]。シュウ酸の前駆体とその生成機構についてはよくわかっていないところが多いが、ベンゼン、トルエンなど芳香族炭化水素の OH ラジカルによる反応によって開始され様々な反応中間体を経て最終的にシュウ酸になると考えられている(図 3.7-2)。ジカルボン酸の中には、二重結合を持ったマレイン酸、メチルマレイン酸、フマル酸も存在する。これらは、芳香族炭化水素の酸化反応中間体であるが、大気中で更にシュウ酸にまで酸化される(図 3.7-2)。

一方、アゼライン酸(C₉)は、比較的高い濃度で検出される。その理由は、アゼライン酸は植物起源の不飽和脂肪酸のオゾン酸化によって選択的に生成するからである(図 3.7-3)。ア

ゼライン酸は海洋エアロゾル中に比較的高い濃度で存在する。また、オレイン酸のもう一つの酸化生成物である 9-オキシノナン酸も海洋大気中に報告されている[Kawamura and Gagosian, 1990]。

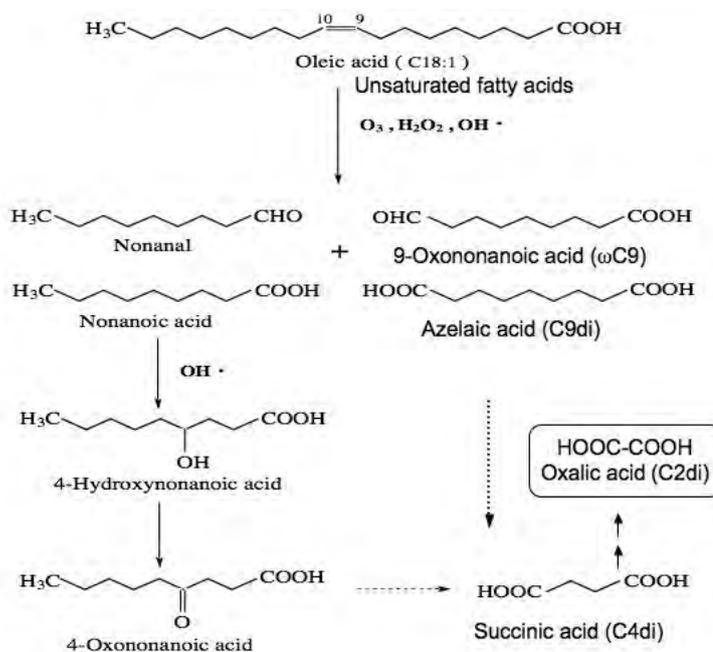


図 3.7-3. 不飽和脂肪酸からのジカルボン酸の生成[Kawamura and Gagosian, 1990 を改変]

分子の末端にアルデヒド基を持つオメガオキシ酸や、ケト酸であるピルビン酸、ジカルボニルであるグリオキサールなども大気中で高い濃度で存在する。これらは、芳香族炭化水素のオゾン、OH ラジカルによる酸化反応で生成され[Bandow et al., 1985]、シュウ酸の生成反応における中間体と考えられている[Kawamura et al., 1996]。これらオキシ酸やジカルボニルの酸化は雲粒の中でおこるとの報告もある[Warneck, 2003]。雲粒は、エアロゾル表面と同様に、有機物の酸化反応を促進し、有機物を更に極性のものに変換する場であると考えられる。ケト酸やジカルボニルの一部は、気相中にも存在する。ガス・粒子の分配は気温に大きく依存する。また、一部のカルボニルは水の付加反応やアルドール縮合によりポリマーとなり、エアロゾル相に濃集されることが近年報告されている[Kalberer et al., 2004; Kroll et al., 2005; Ligio et al., 2007]。

分子レベルでの有機エアロゾルの研究は、中国の主要都市[Wang and Kawamura, 2005; Fu et al., 2006; Wang et al., 2006a;], 中国上空における航空機観測[Wang et al., 2007]、太平洋など海洋大気[Kawamura et al., 2004; Simoneit et al., 2004; Wang et al., 2006b; Mochida et al., 2007; Bendle et al., 2007]において展開された。また、北極圏大気においても低分子ジカルボン酸などの研究が行われた[Kawamura et al., 2007; Narukawa et al., 2003, 2008]。

(2) 質量分析計による有機エアロゾルの組成と起源

オンライン質量分析計を用いた有機エアロゾル計測は多くの革新的な知見を生み出した。レーザーアブレーションイオン化質量分析計 (PALMS) を用いた単一粒子計測では、対流圏の様々な領域で有機物が粒子の主要成分であり、多くの場合硫酸塩と内部混合していることが見出された [Murphy et al., 2006]。また、エアロダイン社のエアロゾル質量分析計 (AMS) [Jayne et al., 2000] を用いた観測により、世界の多くの場所で含酸素有機エアロゾル (OOA) が炭化水素タイプ有機エアロゾル (HOA) に比べて支配的であることが分かってきた (図 3.7-4) [Zhang et al., 2007]。これら質量分析計を用いた観測では、有機物の化合物レベルの同定は特殊な場合を除いて難しいが、混合状態解析や OOA/HOA 分類を高時間分解能で行うことが可能である。このような特徴は、発生源近傍など数時間スケールの変動を解明する目的において、あるいは航空機による水平・鉛直分布の観測において非常に有力である。

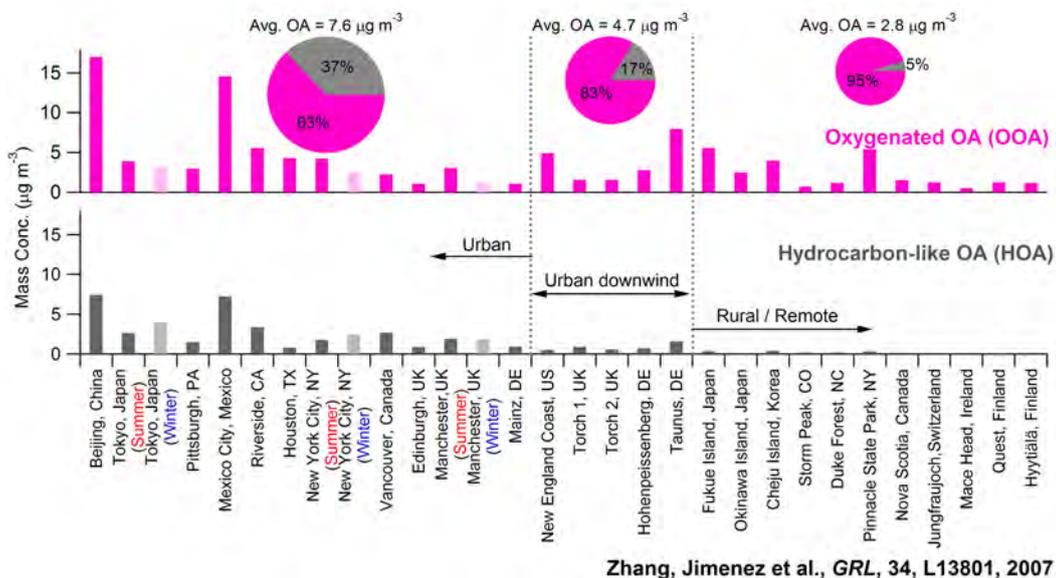


図 3.7-4. AMS による PM₁ 有機エアロゾルの分類 [Zhang et al., 2007]

(3) 有機エアロゾルの吸湿特性

大気エアロゾル粒子が空気中の水蒸気を取り込む性質(吸湿特性)は、粒子の光学的な特性や雲凝結核活性と密接に関係しており、地球の放射収支や雲形成を理解する上で重要な因子のひとつに挙げられる。有機エアロゾルの吸湿特性を物理化学的な側面から解明する取組みとして、気相/粒子間の水の分配を扱う熱力学モデルにおいて有機物の寄与を考慮する試み [e.g., Clegg et al., 2001] や、有機物粒子・有機/無機混合粒子を用いた吸湿特性の測定 [e.g., Cruz and Pandis, 2000; Mochida et al., 2004] などが行われている。複雑な組成を持つ大気エアロゾル粒子の吸湿特性を理解するには、これらのモデル開発や検証が今後も課題として残されている。エアロゾルの吸湿特性を対象とした大気観測研究では、様々な発生源・大気環境下におけるエアロゾル粒子の吸湿特性の特徴が明らかになりつつある [e.g., McFiggans et al., 2006]。しかし、有

機物の寄与についての理解は未だ十分ではない。近年、粒子態の主要な有機成分の一つであるフミン様物質とエアロゾルの吸湿特性の関係に焦点をあてた研究が始められており[e.g., Gysel et al., 2004]、実大気中の粒子態有機物の吸湿特性について、今後の研究の進展が期待される。

(4) 有機エアロゾルの酸化過程研究: 粒子表面での不均一反応とエアロゾル特性変化の解明

OH ラジカルは大気中において最も重要な酸化剤であり、窒素酸化物(NO_x)、一酸化炭素(CO)、メタン、揮発性有機化合物(Volatile Organic Compounds, VOC)などの気相分子の酸化反応を開始し、それらを水溶性の高い物質に変換し大気から除去しやすくする「大気中の洗剤」の役割を果たしている。この気相反応からの類推で、有機エアロゾル粒子の表面でも OH による不均一反応酸化が起こっていると考えられる。この反応は、有機エアロゾルの組成や揮発性の変化に対して重要なだけでなく、吸湿特性や雲凝結核(CCN)能といった放射に関わる特性を変化させるメカニズムの一つとして近年注目されており、エアロゾルの放射影響をモデル化する上で欠かせない過程として近年活発に研究が進められている。

OH ラジカルによる有機エアロゾル模擬粒子への取り込み係数 γ (OH が表面に衝突する頻度に対する、反応によって不可逆的にラジカルが消失される頻度の割合)は 0.2 以上と大きな値となることが、固体膜表面[Bertram et al., 2001]や液滴粒子 [George et al., 2007]を用いた実験から報告されている。この反応を有機エアロゾル粒子側から見たとき、 γ 値が 0.1-0.9 の範囲の大きい値である場合、夏季日中の典型的な OH ラジカル濃度値 $3 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$ を考慮すると、100-1000nm のサイズの液滴粒子に含まれる有機分子は内部まで含めて 1-10 日の時間スケールで完全に酸化される計算となる[Robinson et al., 2006 など、図 3.7-5 参照]。この時間は粒子が通常対流圏に滞留する時間スケール 5-15 日とほぼ同じであることから、大気中の有機エアロゾル粒子は、不均一反応により十分に酸化されている可能性が高いことが示唆されている。

有機エアロゾル粒子酸化の証拠としては、フィルター上に捕集された大気粒子中

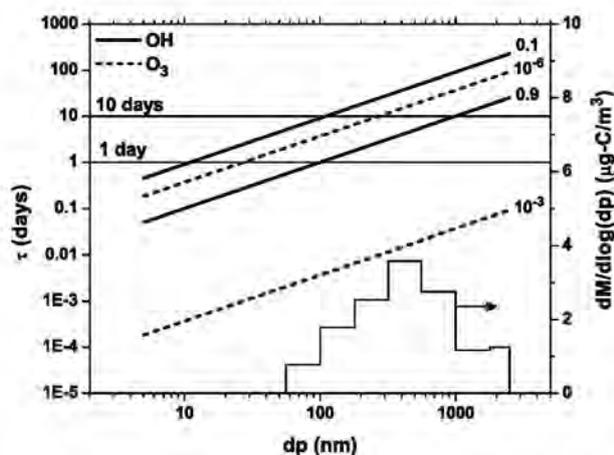


図 3.7-5. 粒径の関数として粒子の酸化に対する寿命を表現したもの[Robinson et al., 2006]。OH による酸化は、炭素数 20 のアルカンを単成分とする粒子の酸化を、OH 濃度 = $3 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$ と仮定し、取り込み係数 $\gamma = 0.1, 0.9$ の二通りについて計算された。O₃ による酸化は、オレイン酸(単成分)粒子について、O₃ 濃度 = 50ppb と仮定し、 $\gamma = 10^{-3}, 10^{-6}$ の二通りについて計算された。ピッツバーグにおける有機エアロゾルのサイズ分布についても合わせて示されている(右軸)。

の有機物についての分子レベル組成分析研究から、ジカルボン酸のうち C_3/C_4 比(マロン酸/コハク酸比)が夏に極大となる季節変化を示し光化学的酸化のよい指標となるとする報告例 [Kawamura and Ikushima, 1993] や、自動車排気に含まれ反応性が高い hopane 濃度を、不活性なトレーサーである元素状炭素(EC)濃度で割った hopane/EC 濃度比が、明瞭な夏季極小となる季節変化を示すことから夏季の酸化を示唆した例 [Robinson et al., 2006]などが上げられる。また、近年開発されたエアロゾル質量分析計によるオンライン分析では、東京都心や郊外など一次排出源に近い地点でも含酸素有機エアロゾルの割合が比較的高いことがわかり [Takegawa et al., 2006; Kondo et al., 2006]、大気中の光化学反応によって二次有機エアロゾルの生成が起こっていることが強く示唆されている。光化学反応の結果として、疎水性の有機成分は親水性に変化し、吸湿特性や雲凝結核(CCN)能といったエアロゾルの特性を変化させるため、この光化学反応は最終的に地球の気候にも影響を与えうる。

気相では有機物が光化学反応により酸化すると、炭素鎖が切れ炭素数のより小さい物質へと分解が進むと考えられるが、エアロゾル相では、ラジカルの関与した有機分子のオリゴマー化が起こった場合、逆により炭素数の大きい成分へ変化する可能性も指摘されている [たとえば Gelencsér et al., 2003; Holmes and Petrucci, 2007]。この反応が、紫外～可視光を吸収する褐色炭素有機物 [Andreae and Gelencsér, 2006] の未知起源となっている可能性もあり、地球の放射バランスに影響を及ぼしているかもしれない。

さらに、OH ラジカルと有機エアロゾル粒子の反応によって、反応生成物のうち比較的蒸気圧の高い有機成分が気相中に放出されている可能性も指摘され [Molina et al., 2004; Kwan et al., 2006]、気相・エアロゾル相にまたがる有機物の新たな再分配経路として注目されている。

実際のエアロゾル相での有機物酸化は、上述した OH による表面酸化だけでなく、他の酸化剤 (NO_3 , Cl, O_3 など)による酸化、液相反応による酸化などによっても同時に進むため、複数の過程がより複雑に絡んだ現象であると予想され、今後集中的な研究が必要である。4. 3章(4)に関連する研究計画を述べる。

(5) 衛星観測とモデルからみた有機化合物・有機エアロゾルの放出と収支

対流圏中の有機化合物を計測できる衛星センサーと二次有機エアロゾルの生成を考慮した化学輸送モデルの進歩から、有機化合物・有機エアロゾルの放出・変質・収支に関する知見が改良されつつある。例えば、GOME や OMI といった衛星センサーで計測されたホルムアルデヒド(HCHO)濃度から推定された非メタン炭化水素(NMHCs)の放出量・分布を放出インベントリと比較・検証する試みが人為起源・自然起源それぞれについて行われている。Fu et al. [2007]は、東アジア・南アジアについて GOME で観測された HCHO 濃度を用いて、中国における NMHCs の排出量が Streets et al. [2003]よりも人為起源では25%高いこと(主に自動車による)、バイオマスバーニング起源では5倍も高いことを見出した(図 3.7-6)。一方、生物起源についてはアジア地域全体での放出量は良く一致したが、中国で過小評価、熱帯域で過大評価であることも指摘された。OMI で観測された HCHO 濃度を用いて北米におけるイソプレン放出量についても、MEGAN インベントリと

比較して地域的分布はよく一致するが、絶対量が 4-25%低いことが分かってきた [Millet et al., 2008]。また、概して化学輸送モデルは観測された OC を大幅に過小評価する傾向にあるが、これを経験的に補正すると、海洋起源の OC は約 8Tg/year にもなり、化石燃料起源の OC と同程度であるという結果も得られている [Spracklen et al., 2008]。

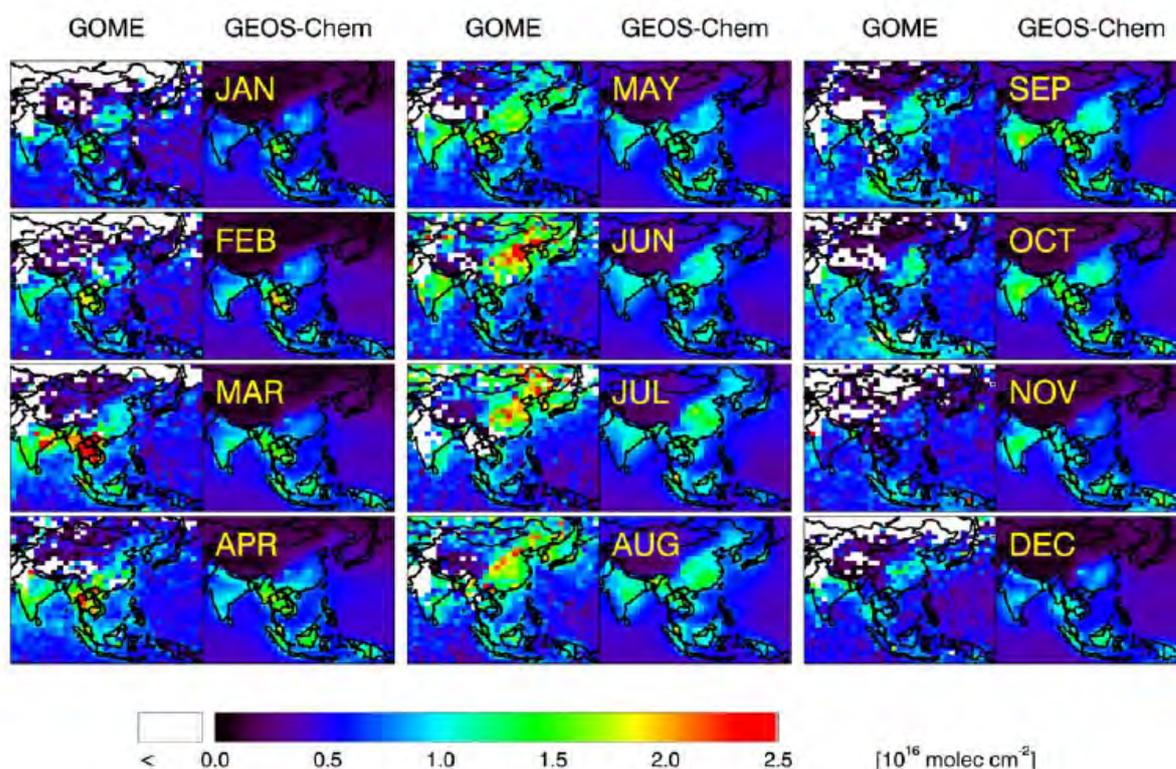


図 3.7-6. アジアにおいて GOME で観測された HCHO カラム(左)と GEOS-Chem 全球化学輸送モデルによって計算された HCHO カラム(右)[Fu et al., 2007]。

Andreae, M. O. and A. Gelencsér (2006), Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3131–3148.

Bandow, H., N. Washida and H. Akimoto (1985) Ring-cleavage reactions of aromatic hydrocarbons studied by FT-IR spectroscopy. I. Photooxidation of toluene and benzene in the NO_x-air system, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **58**, 2531–2540.

Bendle J., K. Kawamura, K. Yamazaki, and T. Niwai, Latitudinal distribution of terrestrial lipid biomarkers and n-alkane compound specific stable carbon isotope ratios in the atmosphere over the western Pacific and Southern Ocean. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **71**, 5934–5955, 2007.

Bertram, A. K., A. V. Ivanov, M. Hunter, L. T. Molina, and M. J. Molina (2001), The Reaction Probability of OH on Organic Surfaces of Tropospheric Interest, *J. Phys. Chem. A*, **105**, 9415–9421.

- Clegg, S. L., J. H. Seinfeld, and P. Brimblecombe (2001) Thermodynamic modelling of aqueous aerosols containing electrolytes and dissolved organic compounds, *J. Aerosol Sci.*, **32**, 713–738.
- Cruz, C. N. and S. N. Pandis (2000), Deliquescence and hygroscopic growth of mixed inorganic–organic atmospheric aerosol, *Environ. Sci. Technol.*, **34**, 4313–4319.
- Fu, T.–M., D. J. Jacob, P. I. Palmer, K. Chance, Y. X. Wang, B. Barletta, D. R. Blake, J. C. Stanton, and M. J. Pilling (2007), Space–based formaldehyde measurements as constraints on volatile organic compound emissions in east and south Asia and implications for ozone, *J. Geophys. Res.*, **112**, D06312, doi:10.1029/2006JD007853.
- Gelencsér, A., A. Hoffer, G. Kiss, E. Tombacz, R. Kurdi, and L. Bencze (2003), In–situ formation of light–absorbing organic matter in cloud water, *J. Atmos. Chem.*, **45**, 25–33.
- George, I. J., A. Vlasenko, J. G. Slowik, K. Broekhuizen, and J. P. D. Abbatt (2007), Heterogeneous oxidation of saturated organic aerosols by hydroxyl radicals: uptake kinetics, condensed–phase products, and particle size change, *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4187–4201.
- Gysel, M., E. Weingartner, S. Nyeki, D. Paulsen, U. Baltensperger, I. Galambos, and G. Kiss (2004) Hygroscopic properties of water–soluble matter and humic–like organics in atmospheric fine aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, **4**, 35–50.
- Hatakeyama, S., M. Ohno, J. Weng, H. Takagi and H. Akimoto (1987) Mechanism for the formation of gaseous and particulate products from ozone–cycloalkene reactions in air, *Environ. Sci. Technol.*, **21**, 52–57.
- Ho K. F., S. C. Lee, J. J. Gao, K. Kawamura, T. Watanabe, Y. Cheng, J. C. Chow, Dicarboxylic acids, ketocarboxylic acids and dicarbonyls in the urban roadside area of Hong Kong, *Atmos. Environ.*, **40**, 3030–3040, 2006.
- Holmes, B. J. and G. A. Petrucci (2007), Oligomerization of levoglucosan by Fenton chemistry in proxies of biomass burning aerosols, *J. Atmos. Chem.*, **58**, 151–166.
- Jayne, J. T., et al. (2000), Development of an AMS for size and composition analysis of submicron particles, *Aerosol Sci. Technol.*, **33**, 49–70.
- Kalberer, M., D. Paulsen, M. Sax, M. Steinbacher, J. Dommen, A. S. H. Prevot, R. Fisseha, E. Weingartner, V. Frankovich, R. Senobi and U. Baltensperger (2004) Identification of polymers as major components of atmospheric organic aerosols, *Science*, **303**, 1659–1662.
- Kanadikou, M., J. H. Seinfeld, S. N. Pandis, I. Barnes, F. J. Dentener, M. C. Facchini, R. van Dingenen, B. Ervens, A. Nenes, C. J. Nielsen, E. Swietlicki, J. P. Putaud, Y. Balkanski, S. Fuzzi, J. Horth, G. K. Moortgat, R. Winterhalter, C. E. L. Myhre, K. Tsigaridis, E. Vignati, E. G. Stephanou and J. Wilson (2005) Organic aerosol and global climate modeling: a review, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 1053–1123.
- Kawamura, K. and R. B. Gagosian (1990) Mid–chain ketocarboxylic acids in the remote marine atmosphere: Distribution patterns and possible formation mechanisms, *J. Atmos. Chem.*, **11**, 107–122.

- Kawamura, K. and K. Ikushima (1993), Seasonal changes in the distribution of dicarboxylic acids in the urban atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, *27*, 2227–2235.
- Kawamura, K., H. Kasukabe, and L. A. Barrie (1996) Source and reaction pathways of dicarboxylic acids, ketoacids and dicarbonyls in arctic aerosols: One year of observations, *Atmos. Environ.*, **30**, 1709–1722.
- Kawamura K., M. Kobayashi, N. Tsubonuma, M. Mochida, T. Watanabe and M. Lee, Organic and inorganic compositions of marine aerosols from East Asia: Seasonal variations of water-soluble dicarboxylic acids, major ions, total carbon and nitrogen, and stable C and N isotopic composition, In: *Geochemical Investigation in Earth and Space Science: A Tribute to Issac R. Kaplan (eds. R. J. Hill et al.)*, The Geochemical Society, Publications Series No. 9, Elsevier, 243–265, 2004.
- Kawamura K., M. Narukawa, S.-M. Li and L. A. Barrie, Size distributions of dicarboxylic acids and inorganic ions in atmospheric aerosols collected during polar sunrise in the Canadian High Arctic. *J. Geophys. Res.*, *112*, D10307, doi:10.1029/2006JD008244, 2007.
- Kondo, Y., Y. Miyazaki, N. Takegawa, T. Miyakawa, R. J. Weber, J. L. Jimenez, Q. Zhang, and D. R. Worsnop (2007), Oxygenated and water-soluble organic aerosols in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, *112*, D01203, doi:10.1029/2006JD007056.
- Kroll, J. H., N. L. Ng, S. M. Murphy, V. Varutbangkul, R. C. Flagan and J. H. Seinfeld (2005) Chamber studies of secondary organic aerosol growth by reactive uptake of simple carbonyl compounds, *J. Geophys. Res.*, **110**, D23207, doi:10.1029/2005JD006004.
- Kwan, A. J. et al. (2006), On the flux of oxygenated volatile organic compounds from organic aerosol oxidation, *Geophys. Res. Lett.*, *33*, L15815, doi:10.1029/2006GL026144.
- Liggio J., S.-M. Li, J. R. Brok and C. Mihele (2007) Direct polymerization of isoprene and α -pinene on acidic aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, *34*, L05814, doi: 10.1029/2006GL028468.
- McFiggans, G., P. Artaxo, U. Baltensperger, H. Coe, M. C. Facchini, G. Feingold, S. Fuzzi, M. Gysel, A. Laaksonen, U. Lohmann, T. F. Mentel, D. M. Murphy, C. D. O’Dowd, J. R. Snider, and E. Weingartner (2006) The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 2593–2649.
- Millet, D. B., D. J. Jacob, K. F. Boersma, T. M. Fu, T. P. Kurosu, K. Chance, C. L. Heald, and A. Guenther (2008), Spatial distribution of isoprene emissions from North America derived from formaldehyde column measurements by the OMI satellite sensor, *J. Geophys. Res.*, *113*, D02307, doi:10.1029/2007JD008950.
- Mochida, M. and K. Kawamura (2004), Hygroscopic properties of levoglucosan and related organic compounds characteristic to biomass burning aerosol particles, *J. Geophys. Res.*, *109*, D21202, doi:10.1029/2004JD004962, 2004.
- Mochida, M., N. Umemoto, K. Kawamura, H. Lim, and B. J. Turpin (2007), Bimodal size distributions of

- various organic acids and fatty acids in the marine atmosphere: Influence of anthropogenic aerosols, Asian dusts, and sea spray off the coast of East Asia, *J. Geophys. Res.*, 112, D15209, doi:10.1029/2006JD007773.
- Molina, M. J., A. V. Ivanov, S. Trakhtenberg, and L. T. Molina (2004), Atmospheric evolution of organic aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L22104, doi:10.1029/2004GL020910.
- Murphy, D. M., D. J. Cziczo, K. D. Froyd, P. K. Hudson, B. M. Matthew, A. M. Middlebrook, R. E. Peltier, A. Sullivan, D. S. Thomson, and R. J. Weber (2006), Single-particle mass spectrometry of tropospheric aerosol particles, *J. Geophys. Res.*, 111, D23S32, doi:10.1029/2006JD007340.
- Narukawa, M., K. Kawamura, K. G. Anlauf and L. A. Barrie, Fine and coarse modes of dicarboxylic acids in the arctic aerosols collected during the Polar Sunrise Experiment 1997, *J. Geophys. Res.*, 108, NO. D18, 4575, doi:10.1029/2003JD00364, 2003.
- Narukawa M., K. Kawamura, S. -M. Li and J. W. Bottenheim, Stable carbon isotopic composition of the high Arctic aerosols: An increase in $\delta^{13}\text{C}$ values from winter to spring, *J. Geophys. Res.*, 113, D02312, doi:10.1029/2007JD008755, 2008.
- Robinson, A. L., N. M. Donahue, and W. F. Rogge, Photochemical oxidation and changes in molecular composition of organic aerosol in the regional context, *J. Geophys. Res.*, 111, D03302, doi:10.1029/2005JD006265, 2006.
- Simoneit B. R.T., Kobayashi M., Mochida M., Kawamura K., and Huebert B. J., Aerosol particles collected on aircraft flights over the northwestern Pacific region during the ACE-Asia campaign: composition and major sources of the organic compounds, *J. Geophys. Res.*, 109, D19S09, doi: 10.1029/2004JD004565, 2004.
- Spracklen, D. V., S. R. Arnold, K. S. Carslaw, J. Sciare, and C. Pio, Globally significant oceanic source of organic carbon aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L12811, doi:10.1029/2008GL033359, 2008.
- Takegawa, N., T. Miyakawa, Y. Kondo, J. L. Jimenez, Q. Zhang, D. R. Worsnop, and M. Fukuda, Seasonal and diurnal variations of submicron organic aerosol in Tokyo observed using the Aerodyne aerosol mass spectrometer, *J. Geophys. Res.*, 111, D11206, doi:10.1029/2005JD006515, 2006.
- Wang G. and K. Kawamura, Molecular characteristics of urban organic aerosols from Nanjing: A case study of a mega-city in China, *Environ. Sci. and Technol.*, 39, 7430–7438, 2005.
- Wang G., K. Kawamura, S. Lee, K. Ho, and J. Cao, Molecular, seasonal and spatial distribution of organic aerosols from fourteen Chinese cities. *Environ. Sci. and Technol.*, 40, 4619–4625, 2006a.
- Wang H., K. Kawamura, and K. Yamazaki, Water-soluble dicarboxylic acids, ketoacids and dicarbonyls in the atmosphere over the Southern Ocean and western North Pacific, *J. Atmos. Chem.*, 53, 43–61, 2006b.
- Wang G., K. Kawamura, X. Zhao, Q. Li, Z. Dai, and H. Niu, Identification, abundance and seasonal variation of anthropogenic organic aerosols from a mega-city in China. *Atmospheric*

- Environment*, 41, 407–416, 2007.
- Wang G., K. Kawamura, S. Hatakeyama, A. Takami, H. Li and W. Wang, Aircraft Measurement of Organic Aerosols over China. *Environ. Sci. Technol.*, 41, 3115–3120, 2007.
- Warneck, P. (2003) In-cloud chemistry opens pathway to the formation of oxalic acid in the marine atmosphere, *Atmos. Environ.*, **37**, 2423–2427.
- Zhang, Q., et al. (2007), Ubiquity and dominance of oxygenated species in organic aerosols in anthropogenically-influenced Northern Hemisphere midlatitudes, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L13801, doi:10.1029/2007GL029979.

3. 8. 長寿命温室効果気体

人間活動に伴う温室効果気体の放出による地球温暖化は、人類が直面する最も深刻な環境問題であり、濃度増加の原因とそれを支配する地球規模の循環メカニズムを解明し、将来の濃度予測と濃度増加の抑制対策を可能にすることが求められており、大気化学に課せられた大きな研究課題となっている。本節では、地球温暖化にとって重要な役割を持つ二酸化炭素(CO₂)、メタン(CH₄)、一酸化二窒素(N₂O)、ハロカーボン類について、わが国における研究の現状と成果および将来の課題をまとめる。

(1) 二酸化炭素とメタン

わが国における温室効果気体の大気観測は 1970 年代後半に開始され、大学、国立試験研究機関、現業官庁によって拡大が進められた結果、世界的にみても特徴ある多くの成果が得られている。温室効果気体を長期にわたって連続モニタリングするための地上観測所が国内に設置され(Watanabe et al., 2000; Tohjima et al., 2002)、アジア・西太平洋地域の濃度推移が監視されている。また、地上での観測は、南極や北極、中国、シベリヤなどでも展開され(中澤・菅原, 2007)、それまでデータ空白であった地域の濃度変動の実態解明に大いに貢献した。一方、船舶、航空機、気球など機動性に富んだ観測プラットフォームを活用して、広域にわたる立体的な観測も積極的に展開されてきた(中澤・菅原, 2007)。特に、定期旅客機(Nakazawa et al., 1991; Matsueda et al., 2002)や大型気球(Aoki et al., 2003)を利用した上空大気の長期観測は、日本が先導している分野であり、これまで未知の領域であった上部対流圏から成層圏において興味深い現象を明らかにしてきた。このようなわが国における多様な観測研究の発展は、常に新たな観測装置の開発と精密測定手法の高度化に取り組んできた結果であり(中澤・菅原, 2007)、それによって世界トップレベルの精度のデータが取得され、人間活動による CO₂ の大気への蓄積と陸上生物圏および海洋による吸収の年々変動を正確に把握することが可能となった。

CO₂ や CH₄ の全球循環をより良く理解するためには、濃度データだけでは不十分であり、それらの炭素・酸素同位体比の精密観測も進められ(Nakazawa et al., 1997; Sugawara et al., 1997)、発生・消滅過程の解明と量的評価に有効に利用されてきた。さらに、CO₂ の変動と密接に関連する O₂ の微弱な変動を捉える高精度測定技術の確立や、実際の観測結果の解析による CO₂ 収支の推定が行われている(Ishidoya et al., 2003; Tohjima et al., 2008)。一方、観測データを利用して地球規模の炭素収支をより定量的に推定するために、わが国でも全球大気輸送モデルの開発と活用が図られており、世界で最も高解像度の逆解法による長期間にわたる地域別・月別の発生・吸収量の評価がなされている(Patra et al., 2005a, b)。

温室効果気体の循環や気候との係わりを理解するためには、現在に加えて、過去における変動の実態を把握する必要があり、南極やグリーンランドで掘削された氷床コアの分析が精力的に実施されてきた。これらの研究によって、CO₂ や CH₄ のみならず、N₂O や O₂/N₂ 比など、多くの大気組成の変動が過去 57 万年にわたって復元されており(Kawamura et al., 2003, 2007; Machida et al.,

1995)、世界に誇ることができる大きな研究成果となっている。

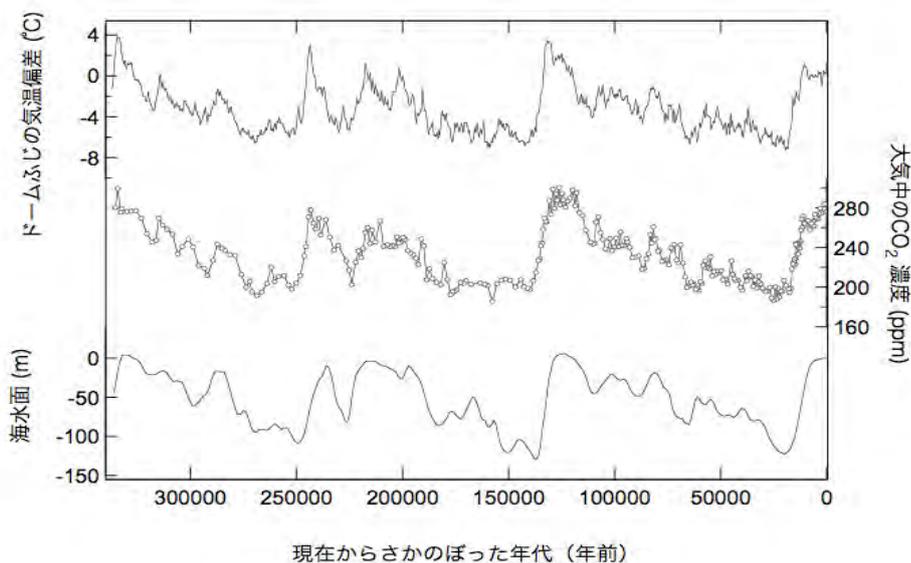


図 3.8-1. 南極ドームふじ深層氷床コアから復元された過去 34 万年間の CO₂ 濃度と気温。海底コアの解析から推定された海水面の変動も示してある。

以上で述べたように、わが国における過去 30 年の広範多岐にわたる CO₂ と CH₄ に関する研究は、それらの循環や変動の解明に大きな貢献を果たした。しかしながら、依然として、人為起源気体の収支の量的評価には大きな不確定があり、またエルニーニョなどによる気候変化に伴う循環の変化や、近年の CH₄ 増加の頭打ちなど、十分に理解できていない現象が多々あるのが現状である。これらの課題を解決するためには、わが国の研究機関の連携をさらに強め、濃度のみならず各種の同位体比および関連要素など、多成分の同時観測を長期間にわたって実施していくことが不可欠である。また、連続測定装置を搭載した CO₂ の定期旅客機観測 (Machida et al., 2007) や、精度は劣るが地球全体をカバーできる温室効果ガス技術衛星 (GOSAT) によって得られる大量の濃度データの解析にも大きな期待が寄せられる。さらに、観測結果を基にして全球規模の循環を高い信頼度で解析するためには、より高度な大気輸送モデルと高解像度の逆解法の開発が必要である。今後、観測の拡充とモデル解析の高度化を進め、両者の融合研究を一層推進することによって、地球規模の循環をより定量的に解明するとともに、将来の気候変化に対する循環の応答機構に関する科学的理解を深める研究が必要となる。

(2)一酸化二窒素

N_2O には多くの自然的・人為的な放出源・吸収源があるために、未だに全球収支や濃度増加の原因が十分に明らかにされていない。わが国では大別して次の 3 つの研究が行われて来た。一つ目は大気中の時空間分布に関する研究であり、沖縄や北海道における定点観測や、航空機や船舶を用いた日本、シベリア、太平洋上での広域観測が実施されてきた。米国海洋大気局 (NOAA) を中心とした全球規模の観測網でカバーされていない東アジアにおける N_2O の空間分布と時間変化が高い精度で観測され、経年変化に加え、季節変化や CO_2 と連動した短期変動 (Tohjima et al., 2000)、対流圏の高度分布 (Ishijima et al., 2001) が明らかにされた。また、南極や北極の氷床やフィルン (万年雪) に閉じ込められた大気の実験により、過去 250 年におよぶ大気中濃度の変遷が明らかにされた (Ishijima et al., 2007; Machida et al., 1995)。さらに、同位体比の分析も行われ、フィルン大気の実験から N_2O 濃度増加の主要因が推定された (Ishijima et al., 2007; Sowers et al., 2002)。

加えて、大気中で初めて N_2O のアイソトプマー (窒素同位体の分子内分布を含む同位体分子種) が計測され (Yoshida and Toyoda, 2000)、またその消滅が起こる成層圏での濃度とアイソトプマー比の分布が明らかにされた (Toyoda et al., 2004)。

二つ目は N_2O の放出源と吸収源に関する研究である。自然放出源である海洋については濃度および同位体比の分布が調べられ (Yamagishi et al., 2007)、人為放出源のうち農業については発生量の研究が行われ、耕作地における

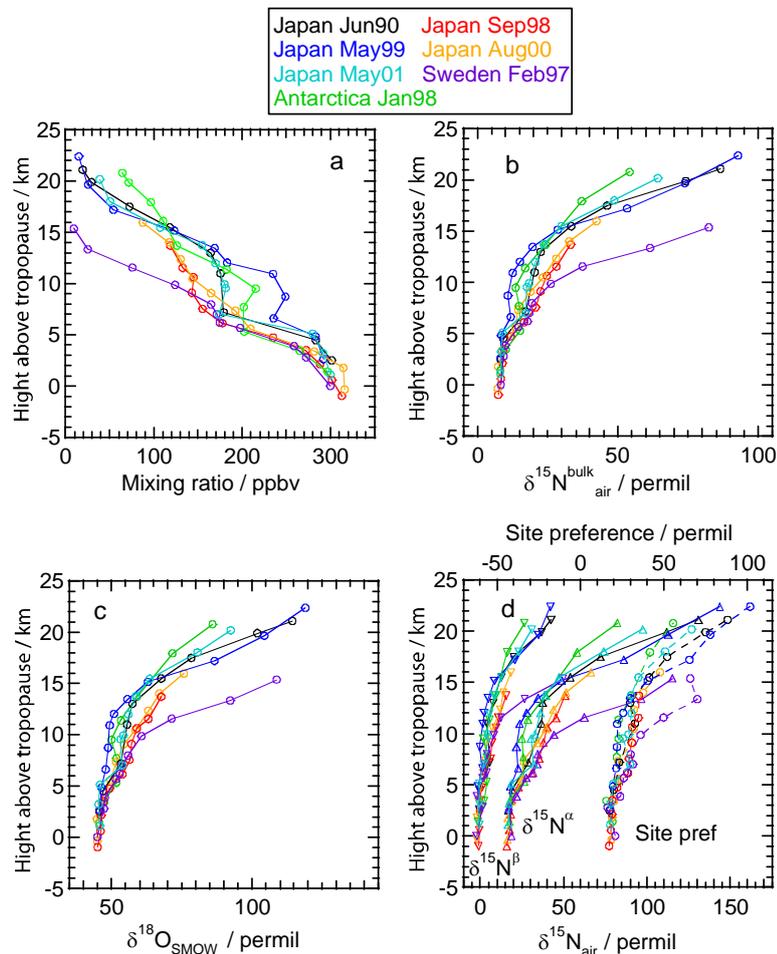


図 3.8-2. 成層圏大気中 N_2O アイソトプマー比の分布

肥料や土壌の質に対する依存性 (Nishimura et al., 2004) や、家畜排泄物処理過程における放出

(Fukumoto et al., 2003)などが調べられ、最近では同位体やアイトポマー比を用いた研究も行われている。工業起源については、火力発電(石炭燃焼)(Ogawa and Yoshida, 2005)や自動車から放出される N_2O (Toyoda et al., 2008)の濃度とアイトポマー比の研究が行われた。室内模擬実験としては、同位体比を用いた微生物純粋培養系での生成・消滅過程や、光化学反応系での消滅過程に関する研究を挙げることができる(Toyoda et al., 2004, 2005)。最後はモデルを用いた全球収支の研究であり、種々の窒素化合物と多数のリザーバーが考慮されたボックスモデルを用いた解析から、窒素固定、窒素同化、アンモニア化などの陸域生物活動の重要性が指摘された(Sorai et al., 2007)。また、1ないし2個のボックスを持つモデルに同位体比も組み込み、上述のフィルム空気分析の結果に適用した研究もなされている(Ishijima et al., 2007; Sowers et al., 2002)。

過去10年間で N_2O の濃度やフラックスの観測研究が充実してきたことに加え、同位体、特にアイトポマー(日本から発信されたもの)という新たな指標の分析方法が開発・適用されたことにより、 N_2O の地球規模での収支を解明するための基礎データが蓄積されつつある。しかし、陸域発生源については分布の不均一性が大きく、種々の環境条件によって特性が大きく異なることから、未だ未解明の点が多く残されている。一方、モデルを用いた研究はボックスモデルのレベルに留まっており、全球3次元大気輸送化学モデルによる詳細な解析が期待される。高精度かつ高確度のモデル解析を行うには、現状の観測データでは時間的にも空間的にも不十分であり、またボトムアップ法による解析では放出源の同定が重要となるので、観測(現場およびリモートセンシング)のより一層の充実が望まれる。

(3)ハロカーボン類

大気中のフッ素含有化合物の多くは強力な温室効果気体であり、Fガスと呼ばれている。これらのうち、塩素を含むクロロフルオロカーボン(CFC)とハイドロフルオロカーボン(HCFC)は、成層圏オゾン破壊物質(ODS)としてモントリオール議定書の下、生産と使用の全廃が決まっている。ODS以外のFガス類であるハイドロフルオロカーボン(HFC)、パーフルオロカーボン(PFC)と六フッ化硫黄(SF_6)は、 CO_2 、 CH_4 、 N_2O などと共に、温暖化防止のための京都議定書において削減対象となっている。

わが国では、1970年台後半に、巻出らにより超清浄金属製容器を用いた試料採取とGC/ECD分析の組み合わせによる高精度なハロカーボン測定法が開発され、北半球中緯度を代表する北海道(稚内周辺・納沙布岬周辺)および南半球を代表する南極(昭和基地)においてODS類の観測が進められてきた(Makide et al., 1979)。その年平均値は、環境省の報告書で毎年報告されており(環境省、2007)、2000年にはHFC-134aも測定対象に加えられた。また、気象庁では、1990年から岩手県三陸町綾里でODS類の毎時間連続観測を行い、そのベースライン値を月報値として報告している(気象庁、2007)。これらの観測では主として半球規模のバックグラウンド濃度の経年変化を把握することに重点が置かれている。

一方、F ガス類の高頻度観測を基に東アジアにおけるそれらの排出源情報を得る試みも始まっている。寒剤が不要な低温濃縮装置とGC/MSを組み合わせた全自動連続測定システムを使って、沖縄県波照間島と北海道落石岬においてそれぞれ2004年5月、2006年9月からFガス類の毎時間観測が実施されている(榎本ほか, 2005; 横内ほか, 2005)。測定対象化合物は、CFC類5種、HCFC類5種、ハロン類2種、HFC類5種、PFC類3種、SF₆とその他10種であり、HFC-23(bp:-82°C)等の極低沸点成分やPFC-218(北半球バックグラウンド濃度: 0.5ppt)等の極微量成分も含まれている。これらの観測では、多くの代替フロン類について急激な経年増加、夏に低濃度となる季節変化と共に、数時間~数日間の短期的な

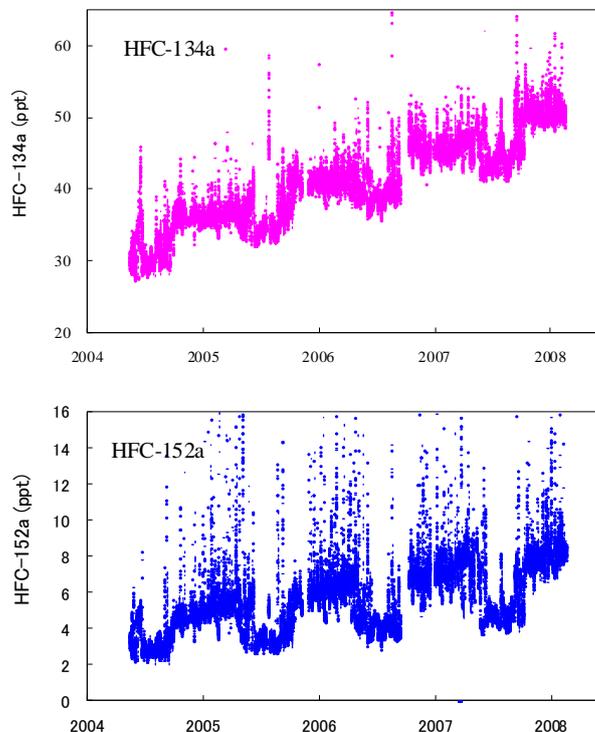


図 3.8-3. 波照間島における代替フロンの観測例

汚染イベントが観測されている。中国起源と特定された汚染イベントの解析によって、これまで報告例のなかった中国起源ハロカーボン排出量の推定が可能になっている(Yokouchi et al., 2006)。さらに、これらの高頻度観測データと輸送モデルを組み合わせたハロカーボン排出量分布の解析も進んでいる。

ハロカーボン類の観測に関わる今後の課題として、①測定精度の向上、②測定対象化合物の拡大、③多成分高精度標準ガスの管理、④国際的なインターキャリブレーションなどが挙げられる。世界では、AGAGE (Advanced Global Atmospheric Gases Experiment)、NOAA-ESRL (Earth System Research Laboratory)、SOGE (System for Observation of Halogenated Greenhouse Gases in Europe) が、ハロカーボン類の連続観測を進めているが、アジアで ODS 以外の F ガスを含めたハロカーボン類のモニタリング観測を実施しているのはわが国だけである。グローバルなハロカーボンモニタリングの一翼を担うという観点からも、高精度のモニタリング観測を発展的に継続することが重要である。

Aoki, S., T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Morimoto, G. Hashida, T. Yamanouchi, K. Kawamura and H. Honda, Carbon dioxide variations in the stratosphere over Japan,

- Scandinavia and Antarctica, *Tellus*, 55B, 178–186, 2003.
- 榎本孝輝, 横内陽子, 泉克幸, 稲垣敏治, PFC, HFC を含むハロカーボン分析システムの開発と大気観測への応用, *大気環境学会誌*, 40, 1–8, 2005.
- Fukumoto, Y., T. Osada, D. Hanajima and K. Haga, Patterns and quantities of NH₃, N₂O, and CH₄ emissions during swine manure composting without forced aeration – effect of compost pile scale, *Bioresource Technology*, 89, 109–114, 2003.
- Ishidoya, S., S. Aoki and T. Nakazawa, High precision measurements of the atmospheric O₂/N₂ on a mass spectrometer, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 81, 127–140, 2003.
- Ishijima, K., T. Nakazawa, S. Sugawara, S. Aoki and T. Saeki, Concentration variations of tropospheric nitrous oxide over Japan, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 171–174, 2001.
- Ishijima, K., S. Sugawara, K. Kawamura, G. Hashida, S. Morimoto, S. Murayama, S. Aoki, and T. Nakazawa, Temporal variations of the atmospheric nitrous oxide concentration and its d¹⁵N and d¹⁸O for the latter half of the 20th century reconstructed from firn air analyses, *J. Geophys. Res.*, 112, D03305, doi: 10.1029/2006/JD007208, 2007.
- 環境省, 平成 18 年度オゾン層等の監視結果に関する年次告書, 2007.
- Kawamura, K., T. Nakazawa, S. Aoki, S. Sugawara, Y. Fujii and O. Watanabe, Atmospheric CO₂ variations over the last three glacial–interglacial climatic cycles deduced from Dome Fuji deep ice core, Antarctica using a wet air extraction technique, *Tellus B*, 55, 126–137, 2003.
- Kawamura, K., F. Parrenin, L. Lisiecki, R. Uemura, F. Vimeux, J. P. Severinghaus, M. Hutterli, T. Nakazawa, S. Aoki, J. Jouzel, M. Raymo, K. Matsumoto, H. Nakata, Y. Fujii and O. Watanabe, Northern Hemisphere forcing of climatic cycles over the past 360,000, *Nature*, 448, 912–916, Aug. 23, doi:10.1038/nature06015, 2007.
- 気象庁, 大気・海洋環境観測報告第7号, 2007.
- Machida, T., T. Nakazawa, Y. Fujii and O. Watanabe, Increase in the atmospheric nitrous oxide concentration during the last 250 years, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 2921–2924, 1995.
- Machida, T., H. Matsueda and Y. Sawa, A new JAL project: CONTRAIL Comprehensive Observation Network for Trace gases by AirLiner, *IGAC Newsletter*, No. 37, 23–30, 2007.
- Makide, Y., T. Tominaga and F. S. Rowland, Gas chromatographic analysis of halogenated hydrocarbons in air over Japan, *Chemistry Letters*, 355–358, 1979.
- Matsueda, H., H.Y. Inoue and M. Ishii, Aircraft observation of carbon dioxide at 8–13km altitude over the western Pacific from 1993 to 1999, *Tellus*, 2002, 54B, 1–21, 2002.
- Nakazawa, T., M. Miyashita, S. Aoki and M. Tanaka, Temporal and spatial variations of upper tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide, *Tellus*, 43B, 106–117, 1991.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and T. Tanaka, Temporal and spatial variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric carbon dioxide in the western Pacific region, *J. Geophys. Res.*, 102, 1271–1285, 1997.

- 中澤高晴, 菅原敏, 温室効果気体の広域観測と地球規模循環, 気象研究ノート, 215, 53–65, 2007.
- Nishimura, S., T. Sawamoto, H. Akiyama, S. Sudo and K. Yagi, Methane and nitrous oxide emissions from a paddy field with Japanese conventional water management and fertilizer application, *Global Biogeochem. Cycles*, 18, GB2017, doi:10.1029/2003GB002207, 2004.
- Ogawa, M. and N. Yoshida, Intramolecular distribution of stable nitrogen and oxygen isotopes of nitrous oxide emitted during coal combustion, *Chemosphere*, 61, 877–887, doi:10.1016/j.chemosphere.2005.04.096, 2005.
- Patra, P. K., S. Maksyutov, M. Ishizawa, T. Nakazawa and G. Inoue, Effects of biomass burning and meteorological conditions on land–atmosphere CO₂ flux from atmospheric CO₂ inverse modelling, 19, GB3005, doi:10.1029/2004GB002258, *Global Biogeochemical Cycle*, 2005a.
- Patra, P. K., S. Maksyutov, M. Ishizawa, T. Nakazawa, T. Takahashi and J. Ukita, Interannual and decadal changes in the sea–air CO₂ flux from atmospheric CO₂ inverse modelling, *Global Biogeochemical Cycle*, 19, GB4013, doi:10.1029/2004GB002257, 2005b.
- Sorai, M., N. Yoshida and M. Ishikawa, Biogeochemical simulation of nitrous oxide cycle based on the major nitrogen processes, *J. Geophys. Res.*, 112, G01006, doi:10.1029/2005JG000109, 2007.
- Sowers, T., A. Rodebaugh, N. Yoshida and S. Toyoda, Extending records of the isotopic composition of the atmospheric N₂O back to 1800 A.D. from air trapped in snow at the South Pole and the Greenland Ice Sheet Project II ice core, *Global Biogeochem. Cycles*, 16, doi:10.1029/2002GB001911, 2002.
- Sugawara, S., T. Nakazawa, Y. Shirakawa, K. Kawamura, S. Aoki, T. Machida and H. Honda, Vertical profile of the carbon isotopic ratio of stratospheric methane over Japan, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2989–2992, 1997.
- Tohjima, Y., S. Mukai, S. Maksyutov, Y. Takahashi, T. Machida, M. Katsumoto and Y. Fujinuma, Variations in atmospheric nitrous oxide observed at Hateruma monitoring station, *Chemosphere–Global Change Science*, 2, 435–443, 2000.
- Tohjima, Y., T. Machida, M. Utiyama, M. Katsumoto and Y. Fujinuma, Analysis and presentation of in situ atmospheric methane measurements from Cape Ochi–ishi and Hateruma Island, *J. Geophys. Res.*, 107, D12,4148, 10.1029/2001JD001003, 2002.
- Tohjima, Y., H. Mukai, Y. Nojiri, H. Yamagishi and T. Machida, Atmospheric O₂/N₂ measurements at two Japanese sites: estimation of global oceanic and land biotic carbon sinks and analysis of the variations in atmospheric potential oxygen (APO), *Tellus*, doi:10.1111/j.1600–0889.2007.00334, 2008.
- Toyoda, S., N. Yoshida, T. Urabe, Y. Nakayama, T. Suzuki, K. Tsuji, K. Shibuya, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Ishido, K. Ishijima, S. Sugawara, T. Machida, G. Hashida, S. Morimoto and H. Honda, Temporal

- and latitudinal distributions of stratospheric N₂O isotopomers, *J. Geophys. Res.*, 109, D08308., doi:10.1029/2003JD004316, 2004.
- Toyoda, S., H. Muto, H. Yamagishi, N. Yoshida and Y. Tanji, Fractionation of N₂O isotopomers during production by denitrifier, *Soil Biol. Biochem.*, 37, 1535–1545, doi:10.1016/j.soilbio.2005.01.009, 2005.
- Toyoda, S., S. Yamamoto, S. Arai, H. Nara, N. Yoshida, K. Kashiwakura and K. Akiyama, Isotopomeric characterization of N₂O produced, consumed, and emitted by automobiles, *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, 22, 603–612, doi:10.1002/rcm.3400, 2008.
- Watanabe, F., O. Uchino, Y. Joo, M. Aono, K. Higashijima, Y. Hirano, K. Tsuboi and K. Suda, Interannual variation of growth rate of atmospheric carbon dioxide concentration observed at the JMA's three monitoring stations: Large increase in concentration of atmospheric carbon dioxide in 1998, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 78, 673–682, 2000.
- Yamagishi, H., M. B. Westely, B. N. Popp, S. Toyoda, N. Yoshida, S. Watanabe, K. Koba and Y. Yamanaka, Role of nitrification and denitrification on the nitrous oxide cycle in the eastern tropical North Pacific and Gulf of California, *J. Geophys. Res.*, 112, G02015, doi:10.1029/2005JG000227, 2007.
- 横内陽子, 東アジアにおけるハロカーボン排出実態解明のためのモニタリングシステム構築に関する研究, 平成 14–16 年度環境省地球環境研究総合推進費終了研究成果報告書(横内陽子代表著, 環境省地球環境局研究調査室), 53pp, 2005.
- Yokouchi, Y., S. Taguchi, T. Saito, Y. Tohjima, H. Tanimoto, and H. Mukai, High frequency measurements of HFCs at a remote site in East Asia and their implications for Chinese emissions, *Geophys. Res. Letters*, 33, L21814, doi:10.1029/2006GL026403, 2006.
- Yoshida, N. and S. Toyoda, Constraining the atmospheric N₂O budget from intramolecular site preference in N₂O isotopomers, *Nature*, 405, 330–334, 2000.

3. 9. 海洋との相互作用(SOLASとの連携)

(1) 海洋物質循環への巨大都市の影響

沿岸生態系は水産資源と生物地球化学的な物質循環の両方に対して重要である(Constanza et al., 1997)。沿岸生態系は河川や大気からの栄養塩(NとP)、人為起源物質などによって、大きな影響を受けている。

大気からのこれらの物質供給は、広い海域にわたるがその影響は比較的弱く、河川からの供給は、河口域など限られた海域に強く影響を与える。この両者の影響は、沿岸水の滞留時間や地形、海流などによって変化する(Jickells, 1998)。河川からの物質供給は、河口域から周辺水域への影響が衛星などで見てもわかるくらい顕著である。一方、大気からの供給も全窒素の供給量の10%を超える場合がしばしば存在する(Nakamura et al., 2005, Spokes & Jickells, 2005, Duce et al., 2008)。沿岸水域での栄養塩の存在量は非常に大きく、大気からの栄養塩供給量は、限られた水域への肥沃効果としては、それほど高くないが、赤潮の発生などと関係しているという報告(Paerl & Whitall, 1999)もある。ある条件下では、大気供給は海洋生物環境のバランスを変えるきっかけを作っているのかもしれない。大気供給物質は栄養塩の供給だけではなく、河川供給と同様に潜在的な有害物質も含まれている。これらの複合的な効果は、沿岸域の海洋生物資源の持続的利用にどんな影響を与えるかほとんどわかっていない。これらの影響は他の地球規模の温度、塩分、河川流量、水循環や濁度などの変化とも関連していると考えられる。

(2) 巨大都市への海塩粒子輸送の効果

卓越風や陸風と海風などによって、海塩粒子エアロゾルが巨大都市へ輸送される。巨大都市の高い窒素酸化物濃度の環境下で、侵入した海塩粒子からHClが放出される。また、巨大都市の高いVOC濃度によって、塩素の化学反応が進み、都市域や内陸部でのオゾン濃度の増加を導く可能性がある(Knipping and Dabdub, 2003, Tanaka et al., 2003)。海塩粒子の沈着は、都市域への塩害を生じ、不均一反応による塩素の放出もさらにその被害を増す可能性がある。

(3) 海洋への巨大都市人為起源物質の輸送の影響

巨大都市からの大気の輸送は窒素酸化物の寿命にもよるが、風下の海洋大気をオゾンの消滅から生成の場に変えてしまう可能性がある。さらに風下に至ると、海塩粒子起源のハロゲン(ClとBr)濃度が増加するが、窒素酸化物の不足から、オゾン消滅の場になると考えられる。オゾン収支の全体にはそれほど変化はないだろうが、地域差は大きいと予想される。

H_2SO_4 、 HNO_3 、および NH_4 の供給は、エアロゾル組成の変化を生じさせる。 HNO_3 は、粒径が大きくアルカリ性の海塩粒子への取り込みや乾性/湿性沈着によって急速に大気中から取り除かれる。これは海洋への主要な供給過程である。

(4) 海洋性雲特性への巨大都市からのエアロゾルの影響

衛星から観測されるように、巨大都市の雲凝結核の高い粒子個数濃度の影響を受け、風下の雲特性は変化する。これは、雲粒数やアルベドの増加を引き起し、降雨を減少させる可能性がある(Rosenfeld, 2000)。もし、エアロゾルの除去がなければ、巨大都市からの空気塊は、一週間以上その効果が続くだろう。しかし、海洋大気境界層内では、海塩粒子がこの空気塊に放出され、粗大粒子である海塩粒子によって、微小人為起源粒子が除去されたり、微小粒子同士が凝集して、沈着する(Rosenfeld, 2002)。従って、海洋大気境界層内での巨大都市からのエアロゾル粒子の滞留時間はそれほど長くはないと考えられる。

巨大都市空気塊の海洋への流出と影響評価は、海洋大気境界層への人為起源物質の供給や海塩粒子の存在によって生じる物質の反応・除去過程、沈着フラックスの推定とともに、エアロゾル滞留時間の長い自由対流圏への影響と輸送拡散を総合的に研究する必要がある。

(5) 日本の大気海洋物質循環研究(SOLAS-Japan)

日本では、大気海洋物質循環研究として、以下の大気変動に伴う海洋生物の応答・変化、そして大気組成へのフィードバックのリンケージ解明を目的とした「海洋表層・大気下層間の物質循環リンケージ:Western Pacific Air-Sea Interaction Study (W-PASS)」研究プロジェクトを展開しつつある。

1. 大気から海洋への物質供給過程
2. 大気変動に伴う海洋表層での生物群集の応答
3. 海洋から大気への生物起源気体の生成・放出過程
4. 海洋大気での生物起源気体の動態

目的達成のため、大気組成動態, 気体交換変動, 海洋生態系動態, これらの物質循環過程を統合する統合モデリングなどについて研究を実施する。このような研究は、大気化学、海洋化学、海洋生物学、海洋物理学、海洋気象学などの多岐にわたる分野の研究者が海洋大気境界層(海面から高度約 2 km まで)から境界面を通した海洋表層(有光層約 200 m 以浅)を研究対象域として、共通した研究課題に船舶での共同観測、地上大気観測および衛星観測の手法を用いて取り組むことにより実現させる。SOLAS-Japan の研究活動はホームページ(<http://solas.jp/>)を参照されたい。

海洋表層・大気下層間の物質循環リンケージ

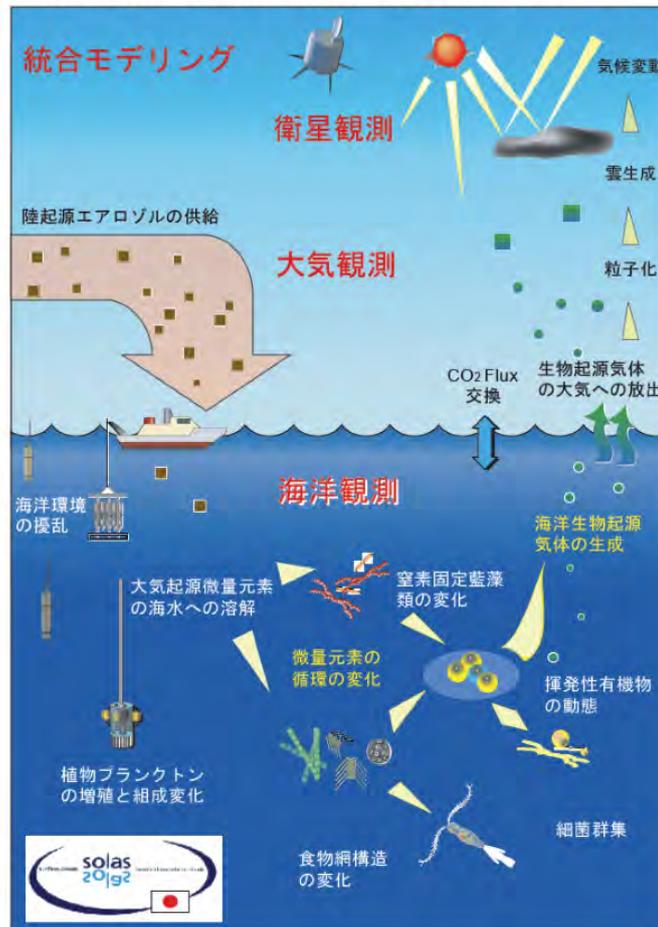


図 3.9-1. 日本の大気海洋物質循環研究 (SOLAS-Japan)

Constanza, R. et al., (1997) The value of the world's ecosystem services and natural capital. Nature 387, 253-260.

Duce et al., (2008) Impacts of Atmospheric Anthropogenic Nitrogen on the Open Ocean. Science 320, 893, DOI: 10.1126/science.1150369.

Jickells, T.D. (1998) Nutrient biogeochemistry of the coastal zone. Science 281, 217-222.

Knipping E. M. and Dabdub D. (2003) Impact of chlorine emissions from sea/sat aerosol on coastal urban ozone. Environ. Sci. Technol. 37, 275-284.

Nakamura, T., Matsumoto, K., and Uematsu, M., (2005) Chemical properties of aerosols and transport from the Asian continent to the East China Sea in autumn. Atmos. Environ. 39, 1749-1758.

Paerl, H.W. and Whitall, D.R. (1999) Anthropogenically-derived atmospheric nitrogen deposition, marine eutrophication and harmful algal bloom expansion: is there a link. Ambio 28, 307-311.

- Rosenfeld, D. (2000) Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution. *Science*, 287:1793 – 1796, 2000.
- Rosenfeld D., Lahav R., Khain A., and Pinsky M. (2002) The role of sea spray in cleansing air pollution over ocean via cloud processes. *Science* 297, 1667–1670.
- Spokes, L.J. and Jickells, T.D. (2005) Is the atmosphere really an important source of reactive nitrogen to coastal waters. *Cont. Shelf Res.* 25, 2022–2035
- Tanaka P. L., Riemer D. D., Chang S., Yarwood G., McDonald–Buller E. C., Apel E. C., Orlando J. J., Silva P. J., Jimenez J. L., Canagaratna M. R., Neece J. D., Mullins C. B., and Allen D. T. (2003) Direct evidence for chlorine–enhanced urban ozone formation in Houston, TX. *Atmos. Environ.* 37, 1393–1400.

3. 10. 陸上生態系との相互作用 (iLEAPS との連携)

(1) iLEAPS の研究計画

IGBP のなかで陸域-大気間のインターフェイスの過程を課題とする、統合陸域生態系-大気プロセス研究計画 (iLEAPS: [a]ll[i]n[t]egrated Land Ecosystem-Atmosphere Processes Study: <http://www.ileaps.org/>) は、IGBP 第 II 期に入って新設されたコアプロジェクトであり、IGBP 第 I 期における大気 (IGAC)、水循環 (BAHC)、および陸域生態系 (GCTE) に関するコアプロジェクトを再編する形で誕生した。その研究計画の目的は、陸域生態系と大気間の物質とエネルギーの移動と変換に関する物理、化学、生物過程の相互作用を解明することにある。この目的のため、生態系での各プロセスの計測から、広域における生態系と大気間での微量ガス、エアロゾル、水の交換、そして、大陸や地球規模での動態に関する研究など、さまざまなスケールでの研究を統合することを求めている。また、モニタリングとモデリングを結合することの重要性が指摘されている。そして、以下に示す4つの課題を研究計画の中心課題 (Focus) と定めている (iLEAPS, 2005)。

- Focus 1. 陸域-大気間における反応性および保存性化合物の交換: 地球システムにおけるキーフィードバック
- Focus 2. 気候システムにおける陸域生物、エアロゾル、および大気組成の間のフィードバック
- Focus 3. 地表-植生-水-大気システムにおけるフィードバックとテレコネクション
- Focus 4. 土壌/樹冠/境界層システムにおける物質とエネルギーの移動: 計測とモデリング

このような iLEAPS の成立経緯および研究対象から、IGAC で対象としている研究課題とは密接な連携が求められる。実際、IGAC および iLEAPS において国際的に実施されているタスク (iLEAPS では recognized project) は共同で実施されているものも多い。図 3.10-1 は iLEAPS の研究対象とそのアプローチを示したものであるが、IGAC で対象としている化学

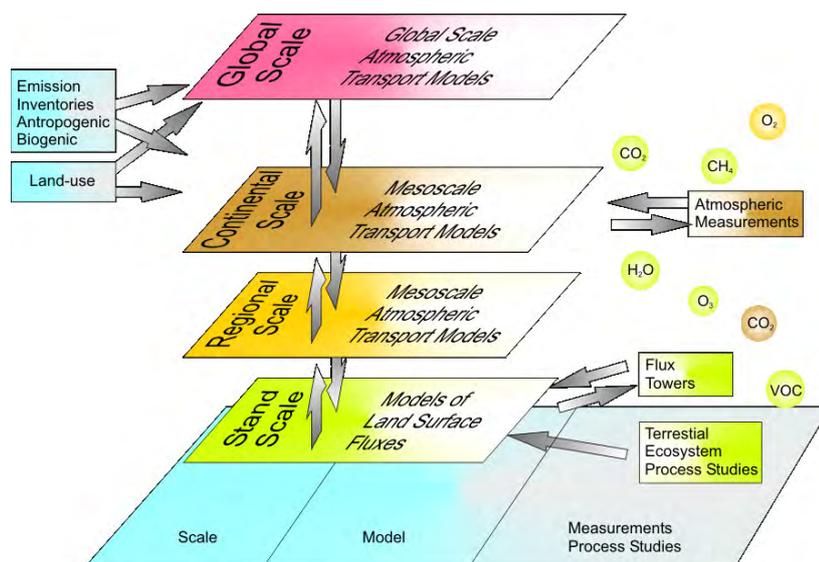


図 3.10-1. iLEAPS の研究対象とそのアプローチ

物質について、陸域生態系での発生・除去過程に焦点を当てつつ、それらの大気中での変換・輸送過程とその結果生じる地球システムへの影響を研究対象としている。

(2) 陸域－大気間の化学物質の交換

温室効果ガスであるCO₂、CH₄、N₂Oと大気環境に影響を及ぼすその他の化学物質(VOC、反応性窒素ガス、イオウ化合物、ハロカーボン類)の陸域生態系での発生および吸収・沈着過程は対流圏化学と放射強制力の変動を通して地球システムに影響を及ぼす(Scholes et al., 2003)。

温室効果ガスについては、その排出インベントリ構築の必要性から、多くの研究が蓄積されつつある。CO₂については、世界規模でのフラックス観測ネットワーク(FLUXNET)とそのアジア地域および国内ネットワークとして AsiaFlux (<http://www.asiaflux.net/>) および JapanFlux (<http://www.japanflux.org/>) が組織され、活動を行っている。その成果として、チャンバー法と渦相関方によるCO₂フラックス計測の比較(Ohkubo et al., 2007)や東アジア域森林における炭素収支の分布(Hirata et al., 2008)など多くの報告がある。CH₄やN₂Oについても現場実測値データベースに統計モデルを適用することからインベントリが構築されつつある(Yamaji et al., 2004; Yan et al., 2005)。今後、重要な化学物質、特に十分なデータが蓄積されていないものについて、観測データとモデル研究とを組み合わせ、その発生・吸収量の時空間変動とその要因解明が求められる。

(3) 陸域生態系とエアロゾルの相互作用

IPCC 第4次評価報告書でも議論されているように、人間活動に伴う大気中のエアロゾル濃度の増加は気候と水循環システムに無視出来ない影響を及ぼしている(IPCC, 2007)。大気中のエアロゾル、雲、降水、気候の相互作用について、現在の知見の整理と今後の研究方向の明確化を目指し、iLEAPS、IGAC、およびWCRP/GEWEXの共同で、ACPC(Aerosols-Clouds-Precipitation-Climate interactions)イニシアティブが計画され、活動が開始されている。iLEAPSでは、特に、熱帯域における森林の燃焼や土地利用変化に伴う陸域生態系からのエアロゾル交換ポテンシャルの変動と大気中でのプロセスに焦点を当てた研究が計画されている(iLEAPS, 2008)。

(4) 水文気象学との連携

iLEAPSではIGACほか、他のIGBPコアプロジェクトとの積極的な連携を求めているが、同時に、その研究対象から、WCRP/GEWEXとの連携も重要視されている。実際、2009年に開催予定の2nd iLEAPS Science Conference (Melbourne)はGEWEXとの共催である。IGAC第二期の研究軸のひとつである大気化学の気候変動への影響解明に対して、ACPCイニシアティブのような陸域生態系の変化を要因とする大気化学と水文気象学との連携が新たな研究の発展につながるかもしれない。水文気象学の分野におけるモンスーンアジア域を対象とした研究計画としてMAHASRI(モンスーンアジア水文気候研究計画:<http://mahasri.cr.chiba-u.ac.jp/>)やESSPの地域プロジェ

クトである MAIRS (モンスーンアジア統合地域研究: <http://www.mairs-essp.org/>) が活動を開始している。

(5) 日本の陸域—大気プロセス研究 (iLEAPS-Japan)

IGAC 小委員会と同様、日本学術会議の WCRP/IGBP 合同分科会の下部組織として、生物地球化学、大気化学、水文気象学等の専門家 18 名で構成される iLEAPS 小委員会が 2007 年 12 月に設置された。今後、この小委員会を中心に、日本の陸域—大気プロセス研究の推進と関係する研究領域との連携を図る計画である。

Hirata, R. et al. (2008) Spatial distribution of carbon balance in forest ecosystems across East Asia, *Agric. Forest Meteorol.*, 148, 761–775

iLEAPS (2005) Science plan and implementation strategy, IGBP Report 54, IGBP Secretariat, Stockholm, 52 pp.

iLEAPS (2008) iLEAPS Newsletter, issue No. 5, iLEAPS IPO, Helsinki, 48 pp.

IPCC (2007) IPCC Fourth Assessment Report: Climate Change 2007, Cambridge University Press

Ohkubo, N., Kosugi, Y., Takanashi, S., Mitani, S., and Tani, M. (2007) Comparison of the eddy covariance and automated chamber method for evaluating nocturnal CO₂ exchange in Japanese cypress forest, *Agric. Forest Meteorol.*, 142, 50–65

Scholes, M.C., Marrai, P.A., Andreae, M.O., Smith, K.A., Manning, M.R. (2003) Biosphere–atmosphere interactions, In *Atmospheric Chemistry in a Changing World*, Springer–Verlag, Berlin, pp. 19–72

Yamaji, K., Ohara, T., and Akimoto, H. (2004) Regional specific emission inventory for NH₃, N₂O, and CH₄ via animal farming in South, Southeast, and East Asia, *Atmos. Environ.*, 38, 7111–7121

Yan, X., Yagi, K., Akiyama, H., and Akimoto, H. (2005) Statistical analysis of the major variables controlling methane emission from rice fields, *Global Change Biol.*, 11, 1131–1141

3. 11. 成層圏との相互作用(SPARC との連携)

世界気候研究計画(WCRP = World Climate Research Programme)は、1980年にWMOと国際学術連合会議(1998年に国際科学会議と改称、略称はいずれもICSU = International Council for Science)の協力の下、世界気候計画(WCP = World Climate Programme)のサブプログラムとして発足した。WCRPでは(1)気候がどこまで予測可能かを究明し、(2)人間活動の気候へ影響の程度を評価するために必要な、気候システム及び気候プロセスの科学的理解を発展させることを目的としている。1993年には、国連教育科学文化機関(ユネスコ)の政府間海洋学委員会(IOC = Intergovernmental Oceanographic Commission of UNESCO)もスポンサーとなり、大気と海洋の相互作用を含めた気候システムや気候プロセスの研究が進められるようになった。

現在WCRPのもとでいくつかのコアプログラムが推進されているが(表 3.12-1)、その一つである「成層圏過程とその気候影響(SPARC = Stratospheric Processes And their Role in Climate)」は、1992年に開始された成層圏の気候影響に関する国際研究プロジェクトである。このプロジェクトでは、成層圏における物理的・化学的諸過程が地球の気候変動に与える影響の研究を推進している。

成層圏は中間圏あるいは対流圏と力学的に双方向に影響を及ぼしあっており、また成層圏-対流圏間の物質交換は対流圏の物質分布に大きな影響を与える。研究の範囲は成層圏だけに限定されるものでなく、気候というキーワードを通して広く大気全般にわたるものである。また、化学過程と力学過程の結合に重点をおくことにも特徴があり、成層圏オゾンを中心とした化学過程の気候影響評価に早くから取り組んできた。このようにSPARCはWCRPの中で最もIGACに関連の深いプログラムであるといえよう。

成層圏オゾンに関して言えば、フロンなどのオゾン破壊を引き起こす物質の生産規制などにより、1980年代以降に人為的原因により減少した成層圏オゾンは、今後は徐々に回復していくと予測されている。しかし成層圏オゾンの経年変化には対流圏から輸送されてくる気体成分濃度の他、成層圏の気温や成層圏の循環の強さなど多くの要素が関連している。また南極・北極のオゾンの回復においても、極渦の強さの年々変動や経年変動などに強く影響されると考えられている。これらは、気候変動や対流圏の大気化学場と密接に関連している。一方、成層圏オゾン・水蒸気は、対流圏の放射場への影響を通して対流圏大気化学に大きな影響を及ぼしている。また中高緯度の上部対流圏・下部成層圏の間のオゾンなどの物質交換は、対流圏大気成分に直接影響を与える。特に対流圏オゾンに及ぼす成層圏オゾンの流入は非常に大きいにも関わらず、その定量的理解は不十分である。国際的には、大気化学と大気力学の研究コミュニティーが連携してこのような研究にあたる体制が作られてきており、将来的にIGACとSPARCを合併させようという流れも顕著である。2008年にはSPARCとIGACの国際会議が連動して開催され、多くの研究者が両者にまたがって参加し交流を深めた。今後は日本においても、このような連携をより強化し、対流圏と成層圏を一体として扱う研究を発展させていくことが必要である。

国内の活動の中では、成層圏下部から対流圏上部にかけてのオゾンや水蒸気観測を行ってき

た SOWER (Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region) プロジェクトは最も IGAC と密接であろう(3.6 章を参照のこと)。オゾン層破壊・地球温暖化とも関連する成層圏水蒸気変動の問題に対する理解は、準水平的移流に伴う脱水過程の重要性が認識されて以来飛躍的に深化したが、まだ十分な理解が得られたとは言い難い。SOWER プロジェクトでは、鏡面冷却型ゾンデによる水蒸気観測を 1998 年 3 月から集中観測の形で実施してきた。最近の中部・西部熱帯太平洋域における現場観測によれば、下部 TTL (Tropical Tropopause Layer) で観測される大気塊はその温度履歴により見積もられる最小飽和水蒸気混合比の 2 倍程度の水蒸気を保持している。SOWER では、成層圏高度まで精度よく観測可能なゾンデの導入、ライダーとゾンデとの同時観測、同一大気塊を複数回観測する水蒸気マッチの試みにより、脱水効率の定量的評価に向けた観測事実を蓄積しつつある。

国際的動向として、SPARC/IGAC の連携が強く推進されるようになり、2006 年に WCRP と IGBP の cross cutting プログラムとして AC&C (Atmospheric Chemistry and Climate) が発足し、これまでに 2 回の国際会議が開催された。

AC&C の概念図を図 3.11-1 に示した。気候変動要因は非常に多様であり、多くの人為起源物質による気候影響は活性な化学種によって引き起こされている。放射強制要因(物質)の気候影響は要因(物質)毎に異なっており、それをモデルに組み込むためには現在得られている以上の情報が必要である。「エミッションが大気組成へ果たす役割」および「化学種濃度の気候変動・放射強制力との関係」に対する理解がこのプロジェクトの 2 つの目的である。また、多くの強制力原因物質は汚染物質でもあり、大気汚染物質の長距離輸送とも密接に関連する。

AC&C の第一フェイズは 2009 年の終わりまでとされている。第一フェイズでは、化学気候モデル中の化学過程および輸送過程の表現方法の改善に力点が置かれている。AC&C の役割は、SPARC と IGAC といったそれぞれ別個の枠組みではなしえなかったプロジェクトをコーディネートすることである。SPARC のタスクである CCM-val は化学気候モデルの相互検証を目的としてきたが、これまで成層圏に限定的であった。AC&C では、この活動に対流圏も含めて発展させると共に、IGAC の AeroCom, ACCENT-MIP とも連携して活動を展開し、さらに大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース HTAP との連携へと発展している。AC&C の主なターゲットは、SPARC のイニシアチブである CCM-Val 同様に、大気化学と気候との相互作用であり、これを明らかにするための過去再現実験や将来予測実験が計画されている。さらに、エミッションに関するシナリオ作成、および各シナリオに基づいた実験による全球オゾン分布などの再現・予測実験が予定され、これらは気候変動に関する政府間パネル(IPCC)の第5次報告書に向けた気候予測実験への入力として期待されている。

対流圏と成層圏を分ける「対流圏界面」という概念は気温の鉛直分布に基づいて定められてきた。気象学的にはこの分類は大きな意味を持っているが、大気化学という枠組みで考えるとき、圏界面で大気を分離することにどれほどの意味があろうか。SPARC と IGAC の連携の動きは、「一つの地球大気」中での大気化学を展開すべき時代がきていることを示している。

表 3.11-1 WCRP 傘下のコアプログラム

GEWEX	全球エネルギー・水循環観測計画
CLIVAR	気候の変動性と予測可能性研究計画
SPARC	成層圏プロセスとその気候における役割研究計画
CIIC	気候と雪氷圏研究計画
SOLAS	海洋大気間物質相互作用研究計画

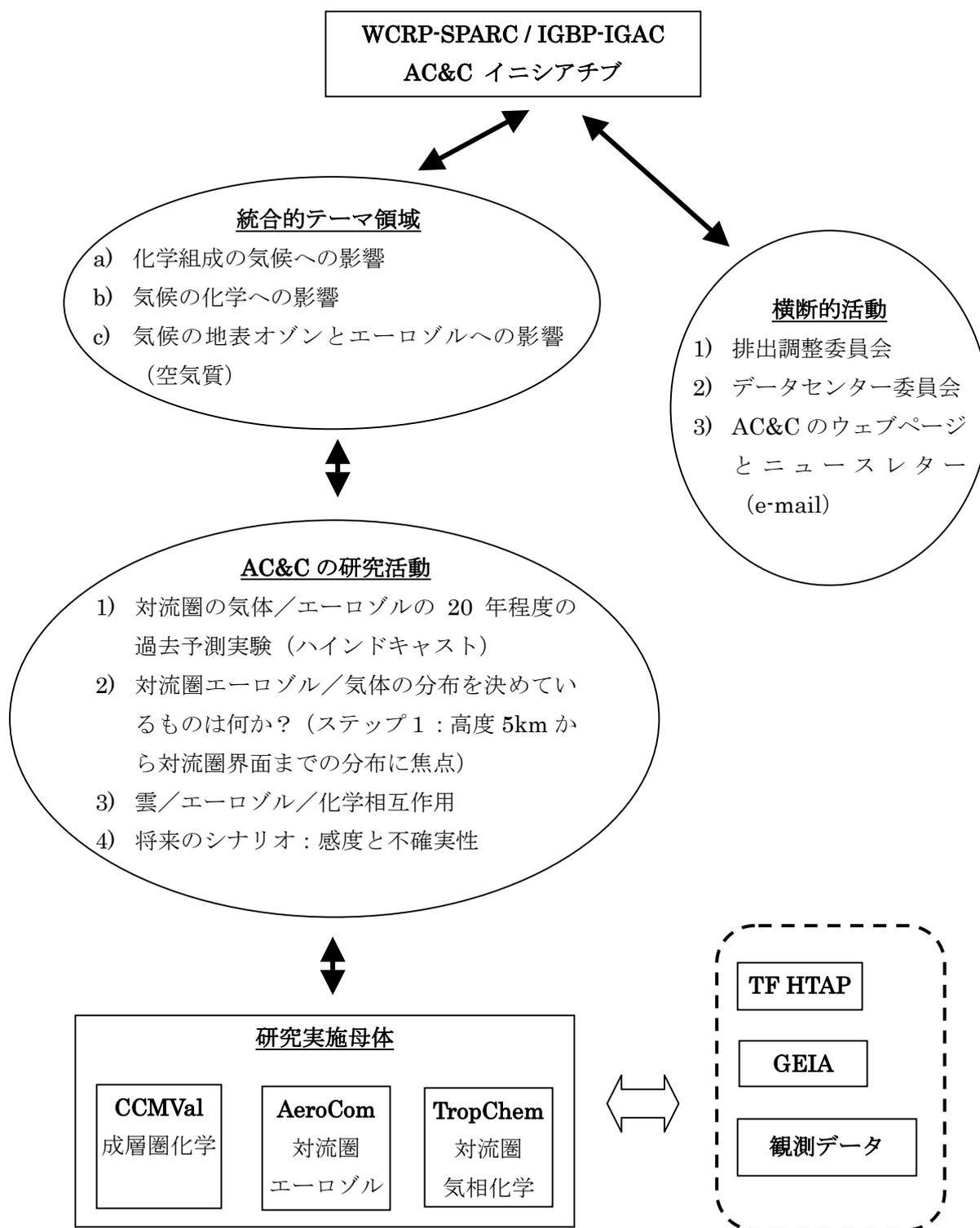


図 3.11-1 AC&C の概念図

3. 12. 静止衛星による大気環境観測

(1) 背景

近年北半球全体で対流圏オゾンが増加傾向を示し、人間の健康や生態系・農業生産への悪影響や気候変動にとっても問題であることは周知のことである。日本でも環境基準の不適合率が最も高い大気汚染物質がオゾンであり、全国の実に 99%以上の測定局で環境基準が満たされていない。また、光化学スモッグ注意報の発令日数も最近再び増加している(環境省, 2007)。日本ではオゾン前駆物質である窒素酸化物(NO_x)や炭化水素・一酸化炭素(CO)の濃度が、横ばいまたは減少傾向であるにも関わらず、オゾン濃度増加が都市域のみならず全国的に見られることから、アジア大陸からの越境輸送が影響していると考えられる。例えば昨年(2007年)5月8日には、これまで注意報が一度も発令されたことのない大分県、新潟県でオキシダント注意報が発令され、環境省から中国からの越境汚染が関与しているという発表が行われた。気象庁においても、越境汚染を考慮した「スモッグ情報」を発信するという発表が行われており、社会的・行政的な関心の高まりを示している。

大気汚染は、日本だけでなく、むしろ経済発展著しいアジア諸国で深刻な問題である。オゾンやエアロゾルの前駆気体放出量は、北米・ヨーロッパでは頭打ちあるいは減少傾向なのに対し、アジアでは中国・インド・東南アジアなどで急増しており、この地域が世界的にも今後の大気環境にとって重要であることを示している。アジア域では、まだ大気汚染物質の信頼性のある系統的な観測網は整備されておらず、その

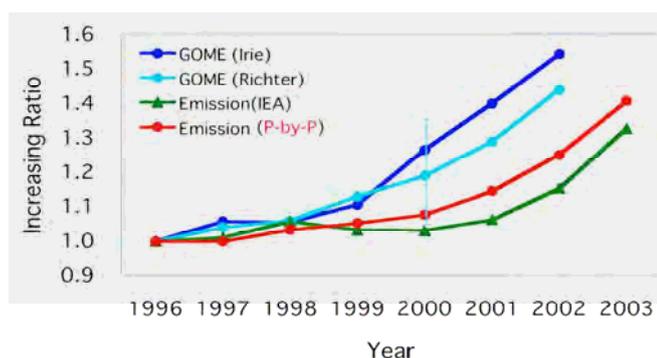


図 3.12-1 中国での NO_x 放出量増加率の政府統計および衛星観測に基づく推定 (Akimoto, 2006)

実態の把握は不十分である。図 3.12-1 は、中国での NO_x 放出の増加率の推定値であるが、政府統計をもとにした推定値(低い値の 2 つ)にもばらつきがあるが、衛星データ(GOME)をもとにした推定は 2000 年以降、統計に基づく推定よりずっと高い値を示している。この結果はさらに吟味される必要があるが、十分な系統的観測が行なわれていないアジア域において、衛星観測が現況の把握とそれに基づく予測に重要な役割を果たすことが期待される。

オゾンおよびエアロゾル(特に微小粒子)の分布は、都市大気汚染・バイオマス燃焼などの人間活動による前駆気体の放出と輸送、それらからの化学反応による生成、生成したオゾンの長距離輸送および化学反応による消失などにより複雑な影響を受ける。これらの変動のメカニズムを解明し、広域にわたってその空間的・時間的変動を把握するには、オゾン・エアロゾル及びその前駆物質の流れをほぼリアルタイムに近い時間分解能で監視できる静止衛星観測が最も適していると考えられる。そこで、大気化学研究会では、一昨年より大気環境観測衛星検討会を設け、静止

衛星による大気環境観測のサイエンスプラン作成とフィージビリティスタディを開始した。

(2) 静止大気環境衛星の科学目的

大気環境観測衛星検討会の科学要求検討チームにより、静止大気環境衛星の科学目的およびそれを実現するための測定要求について議論が進められている。この衛星の目的は、一言でいえば、日本をはじめとするアジア域での地表付近のオゾン・エアロゾルの分布・変動を理解・予測することである。それを科学的根拠として、大気汚染対策の策定や大気汚染予測・予報の実施など、社会・行政的なニーズにも役立つと考えられる。日本の大気環境・大気汚染を理解し予測するためには、日本内部、特に都市スケールでの汚染物質動態だけでなく、東アジア域での越境大気汚染、さらにはアジア広域(大陸)スケールでの汚染物質分布・輸送、といった異なる空間スケールでの大気環境・大気汚染の理解を進める必要がある。そのためには、オゾン・エアロゾルの時々刻々の分布の測定だけでなく、それらの前駆気体の放出源分布、放出された前駆物質の気象現象に伴う輸送プロセス、および輸送される間におこる光化学変化によるオゾン・エアロゾルの生成・消失過程といった諸プロセスの定量的理解を進めることが必要である。図 3.12-2 は、静止衛星による大気環境・大気汚染物質観測の科学目的とデータ利用について模式的に示したもの

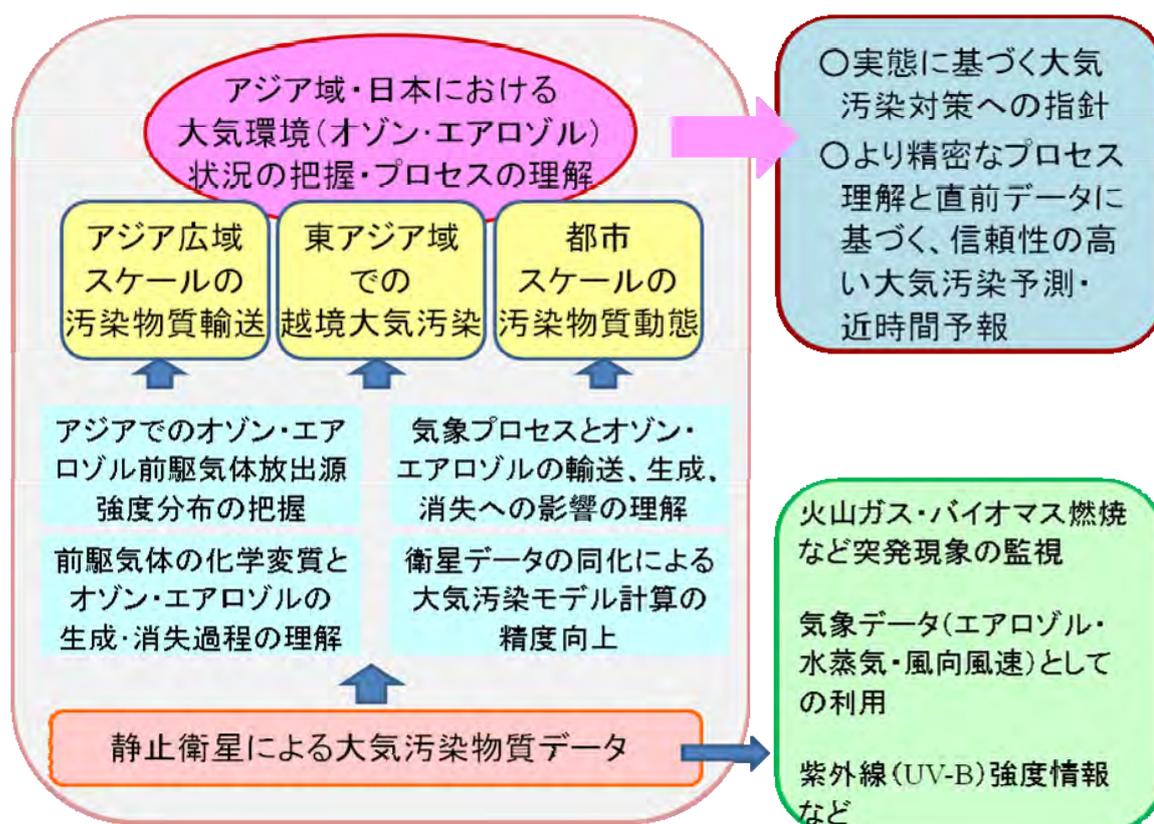


図 3.12-2 静止衛星による大気汚染観測の科学目的とデータ利用

である。衛星観測データにより上記諸プロセスの理解を進め、また化学輸送モデルに衛星データを同化させ精度を向上させることによって、日本およびアジア域(さらに北半球全体における)大気環境状況の把握とそこに関わるプロセスの総合的な理解を行うことが、静止大気環境衛星の科学目的である。それによって得られた科学的知見に基づいて、日本・アジア諸国における大気汚染対策の策定や、信頼できる大気汚染予測特にリアルタイム的な予報が可能になると考えられる。さらに、静止衛星による大気汚染物質観測データは、火山噴火や山火事など突発的な現象の監視を通じその影響のいち早い把握および予測や、エアロゾル・水蒸気量の気象モデルへの同化やオゾン・CO₂分布から衛星追跡風を求めるなど気象予報の向上にも寄与できると考えられる。また、気象庁は、紫外線強度データの利用に興味を示している。

静止衛星による大気汚染物質の観測は重要である。これは、以下のようなメリットによって、上記各プロセスの定量的理解を進める上のブレークスルーにつながると期待されるからである。CO₂、NO_x、SO₂など一次大気汚染物質の放出量は、人間活動や生物活動の日変化サイクルによって変化する。さらに、それらの物質からオゾンやエアロゾルが光化学反応で生成・消失する量は、日射強度(太陽高度)によっても変化する。周回衛星では各観測領域を数日から1日に1回、ある地方時で観測できるだけであるが、静止衛星では各地域について1時間程度の間隔で繰り返す24時間連続した観測を行い、これらの日変化を観測できる。また、オゾンやエアロゾルは、時々刻々風で輸送されその分布を変えていく。静止衛星は時間だけでなく水平方向にも広い範囲を連続的に観測することを可能にし、そのデータから汚染物質分布の現況把握とそれに基づく予測を可能とする。オゾンやエアロゾルの濃度は、この輸送による変化と光化学的な変化の両方の影響を受けるが、静止衛星観測は両者の分離を可能にし、関与するプロセスの定量的理解を促進し、モデル計算による予測精度の大きな向上につながる。同時に、静止衛星による時々刻々のオゾンやエアロゾルの分布の観測は、それをモデルに同化することで、予測精度を飛躍的に高め、実用的な大気汚染予報を可能にすると期待される。静止衛星観測では、積分時間を長く取ることで、十分な精度で数kmスケールでの高空間分解能での観測が可能となる。それにより、メソスケール気象現象による影響を含め、都市スケールでのきめ細かな汚染状況の把握や予測に貢献できる。また、空間分解能を高くできることで、雲による妨害を避けられる可能性が3~10倍程度増え、観測頻度の大幅な向上も可能となる。但し、静止衛星観測によって十分な精度で観測できる化学種は限られており、また鉛直分解能も多くの化学種では対流圏カラム量に過ぎない。そのため、静止衛星データだけでなく、種々の直接観測やモデル計算と組み合わせることが必要である。

大気環境観測衛星検討会の科学要求検討チームでは、大気化学における具体的な静止大気環境衛星の科学目的として以下の8つをあげており、そのために静止大気環境観測で実現すべき科学要求を検討している。

- (1) アジア広域(大陸)スケールでの越境大気汚染の把握
- (2) アジア領域スケールでの汚染気塊の化学変質過程の理解
- (3) 都市大気汚染の予測・予報

- (4) 火災・噴煙ガスのモニタリング
- (5) 広域の有機物収支の理解
- (6) ハロゲン化学の影響の理解
- (7) アジア放出源強度分布と日変動の把握
- (8) 衛星データ同化による化学輸送モデルの精度向上

(3) 大気環境観測静止衛星のフィジビリティ研究

現在、大気環境観測衛星検討会の科学要求検討チーム、シミュレーション・感度解析検討チームおよび JAXA センサー検討チームによって、大気汚染物質を観測する静止衛星のフィジビリティ研究を進めている。

表 3.12-1 大気物質観測に使用されるセンサーの特徴

	UV/VIS/NIR	IR	MW/THz/FIR
観測可能な分子の例	O ₃ , SO ₂ , NO ₂ , HCHO, BrO, IO, CHOCHO, CO, CH ₄ など	O ₃ , NO ₂ , HNO ₃ , N ₂ O ₅ , CO, SO ₂ , NH ₃ , HCHO, PAN, Organic Nitrates, HCN, H ₂ O, CH ₄ , C ₂ H ₆ , CO ₂ など	O ₃ , CO, HCN, N ₂ O, H ₂ O, CH ₃ CN など
物質高度分布	導出は難しい	導出可能	導出可能
観測高度重み	地表面付近 (UV は自由対流圏)	境界層 - 上部対流圏	上部対流圏
エアロゾル	光学的厚み + 吸収性エアロゾル	光学的厚み + エアロゾルのタイプ	感度なし
昼夜観測	昼間のみ	昼夜 24 時間	昼夜 24 時間
雲の影響	影響が大きい	影響あり	影響が少ない

大気環境観測衛星で観測すべき項目としては、まずオゾンとエアロゾルの測定が重要である。エアロゾルについては、光学的厚さのほか、エアロゾル種類(タイプ)や光吸収量、有効半径についての情報が得られる可能性がある。オゾンとエアロゾルの変動を予測するためには、それらを生成する前駆物質も観測する必要がある。オゾンについては、NO₂ や有機硝酸(PAN など)、CO、VOC(CH₄、C₂H₆、HCHO など)など、エアロゾルについては、二酸化硫黄(SO₂)、グリオキザール(CHOCHO)、アンモニア(NH₃)などが衛星から測定可能な前駆物質と考えられている。

これらの観測を現実のものとする衛星センサーとして、可視・紫外・近赤外センサー(UV/VIS/NIR) と赤外型センサー(IR) の2種類が、世界の様々な大気汚染観測衛星計画で提案されている。また、雲を透過して化学物質を 24 時間観測できるマイクロ波センサー(MW/THz/FIR) の可能性も捨て難い。表 3.12-1 に、これら 3 センサーの特徴を整理した。

現在、主に科学要求検討チームによって、上述の科学目的をさらにいくつかの項目にブレークダウンし、各項目において具体的に測定項目と必要な分解能について検討を行っている。シミュレーション・感度解析検討チームでは、UV/VIS/NIR、IR、MW/THz/FIRの各波長領域において、大気環境・大気化学で重要な各化学種について、これまでの衛星観測実績にこだわらず、広く放射伝達シミュレーション計算を行い、感度解析・誤差解析を行ないつつある。センサー検討チームでは、大気環境観測衛星検討会で提案された暫定スペックをもとに、それを可能にするセンサーについて技術的な検討を開始している。

シミュレーション・感度解析検討チームで、シミュレーションに使用している4つの解析ツールについて以下に簡単に説明を行う。

■ FRCCG/JAMSTEC モデル:FRCCG/JAMSTEC では、1)差分吸収法(DOAS 法)に基づいたスペクトルフィッティング法(Irie et al., 2008)と、2)モンテカルロ法を用いた三次元放射伝達モデル(MCARaTS; Iwabuchi, 2006)を開発している。現時点では主に地上から測定した太陽散乱光のスペクトルを解析し、微量気体とエアロゾルの高度分布を導出するために利用されており、衛星観測よりも複雑なジオメトリーでもその性能は評価・検証されている。

■ SCIATRAN モデル :SCIATRAN は GOME および SCIAMACHY といった衛星搭載用紫外・可視・近赤外域分光計で観測される輝度スペクトルを速く正確にシミュレーションすることを目的に開発された放射伝達モデルである(Rozanov, et al., 2005)。宇宙、地上ならびに大気中(航空機など)での太陽光散乱観測に対応し、プロダクトとしては、放射輝度・強度、荷重関数、エアマスファクター、斜めコラム量、フラックス、光学的厚さ(斜め値・鉛直値)などがある。開発はドイツ・ブレーメン大学で行なわれている。

■ 東京大学 CCSR モデル:東大 CCSR のモデルでは Line-By-Line Radiative Transfer Model (LBLRTM) [Clough et al., 2004] を用いて大気層ごとに光学的厚さの計算を行った上で、東大のコードにより各層の値を加算し、大気上端での透過率を算出している。LBLRTM は、Fast Atmospheric Signature Code (FASCODE) をベースとして開発された大気放射伝達モデルであり、種々のエアロゾルや雲の存在も含めた任意の大気条件下で、大気的光学的厚さや放射輝度、ヤコビアン(ある物質の濃度もしくは温度を各層で単位量変化させた場合の大気上端での輝度温度の変化量のこと)を計算することが可能である。

■ NICT の MATRAS モデル:MATRAS モデル(Model for Atmospheric Terahertz Radiation Analysis and Simulation)(Baron et al., 2008; Mendrok et al., 2008) は情報通信研究機構(NICT)で開発を遂行している晴天時/雲存在下の両方に対応した大気放射伝達/リトリーバルコードである。地球気象条件下における計算可能周波数範囲は $0\text{--}3000\text{cm}^{-1}$ 程度である。モデルは a) 晴天時/雲存在下における放射伝達計算、b) 観測測器シミュレーション c) 大気物理量のリトリーバル反転解析と誤差解析などの計算が可能である。

(4)まとめ

静止衛星からの大気環境・大気汚染物質の観測は、その諸プロセスの定量的理解に対するブレークスルーとなると期待されており、現在社会的・行政的にも重要な問題となっている広域・越境大気汚染による大気環境の劣化への対応にとって不可欠なものであると考えられる。大気化学研究会を中心に、静止衛星による大気環境観測を検討しており、その科学目的と実現に必要な観測項目とスペックの検討、観測シミュレーションと感度解析、およびセンサーの具体的検討を進めつつある。今後、さらに具体的な検討を進め、サイエンスプランの策定や衛星観測の実現に向けた活動を行っていく予定である。

3. 13. 測定手法の開発と室内実験

(1) 測定手法の開発

大気化学の成分の反応過程や環境に与える影響を明確にするためには、それらの成分の実際の大気計測が重要である。既に製品化されて安定的に計測できる計測器がある場合はそれを活用すればよいが、大気中のラジカルなどの非常に検出が困難なものについては、研究者が測定手法を開発しながら計測に応用してゆくことが必要である。大気計測手法に関するこれまでの世界的な研究に関するレビューについては Heard らの本がある[1]。これまで開発されてきた計測手法の大まかな分類と測定対象例について表 3.13-1 にまとめた。大気計測手法の発展により、さまざまな大気微量成分の空間的・時間的分布が高い精度で計測が可能になってきている。環境問題を引き起こす化学種や OH などのような短寿命の反応性の高いきわめて濃度の低い成分などの測定法の開発が進められてきている。一方で、CO₂ などのような地球温暖化関連物質に関しては、微小な変動を正確に計測できる高精度な計測法が開発がなされている。こうした計測手法でもたらされる種々の微量成分の空間的・時間的変動のデータを、大気モデルの計算と比較することは、大気反応、輸送、排出、消滅などの過程に対する理解の上で不可欠である。

日本の大気化学研究においても、種々の大気成分の観測手法の開発を行い、実際に観測に応用されて新しい知見を得る研究がなされてきている。たとえば、大気中の OH や HO₂ ラジカルは、有機物の酸化反応過程、オゾンや酸性雨原因物質などの大気汚染関連物質の生成・変質過程に関与しており、その濃度を測定することは非常に重要である。この OH や HO₂ ラジカルを計測できるようになったのはこの 7-8 年である。この計測手法の開発と大気観測により、清浄大気や都市大気での光化学反応過程が明らかにされてきている[2,3]。さらに、硝酸(HNO₃)は比較的安定物質な物質であるが、検出が難しかったが化学イオン化質量分析法の応用で可能になった[4]。夜間の大気中の酸化物質として重要な NO₃ ラジカルについてキャビティリングダウン法やレーザー誘起蛍光法などの新しい手法を用いて計測がなされている[5,6]。大気中の揮発性有機物の検出に飛行時間型質量分析計を応用して陽子移動法によるイオン検出で高感度に一度に種々の物質を計測することを可能にしている[7]。航空機計測用の一酸化炭素(CO)として、真空紫外の光源を使用した速いレスポンスの計測器が開発されている[8]。成層圏・中間圏のオゾンや水蒸気、ClO ラジカルを地上から遠隔計測できるミリ波計測器が開発されている[9]。地球温暖化研究に関連して、大気中の酸素(O₂)の濃度をきわめて精密に測定する方法がガスクロマトグラフ計測法により開発されている[10]。エアロゾルの個別粒子の化学組成を計測する手法に関してもレーザーイオン化法を用いた装置の開発がなされている[11]。

また、宇宙から人工衛星で地球大気を観測する技術の開発が日本においてもなされている。地球大気を通して太陽光の赤外光を人工衛星から観測する ILAS 計測器(1996-1997 年稼動)、ILAS II 計測器(2003 年稼動)があり、これらにより成層圏のオゾン破壊関連物質の観測がなされている[12,13]。また衛星直下の赤外波長領域の大気放射スペクトルをフーリエ赤外分光器で観測する IMG が ILAS と同じ ADEOS 衛星に搭載され、気温、水蒸気などの観測が行われた[14]。

2009年2月ころ打ち上げ予定の温室効果ガス観測技術衛星「GOSAT」には、地球表面で反射してくる太陽光をフーリエ分光観測して、スペクトルに含まれる大気中の温室効果気体(二酸化炭素、メタン)の光吸収を解析することにより、濃度を推定する装置(TANSO-FTS)が搭載される。

大気環境問題の機構のより正確な理解や地球環境の将来予測の精度の向上には、環境計測技術の向上が不可欠である。たとえば、定量的な大気中の微量成分の計測は、それぞれの成分が地球温暖化・気候変動やオゾン層破壊などの地球環境問題の中で果たす役割を明確にするための重要な基礎データとなる。また、長期間かつ広範囲の大気微量成分の計測結果は、地球環境のシミュレーション計算モデルが正しい結果を出しているかどうかを検証する重要なデータを提供する。

今後の大気微量成分の計測法の発展において、どの微量成分・分子を計測するか、どの程度の精度で計測するか、どの領域・高度・空間を測定するかは、大気環境化学や地球環境問題の解明の科学的なニーズに基づき決まってゆくであろう。しかし、測定可能になるかどうかは技術の発展に依存する。技術的な側面から考えると、レーザー光源技術、光検出技術、光分光技術、質量分析技術の進展をうまく取り込むことにより、新しい大気計測技術の発展が可能となると考えられる。大気計測手法に重要になる可能性のある青色・紫外レーザー、中長波長赤外光源、テラヘルツなどの技術開発については日本の電子産業が得意とするものであり、こうした要素技術の開発者と協力して大気計測装置への応用を進めて行くことにより、先進的で大気化学に有用な装置の開発が可能になると考える。これまで計測が難しかった大気微量成分(たとえばRO₂、HONOなどのラジカルや様々な揮発性有機化合物 etc.)の計測が可能になるであろう。またエアロゾルに関しては、一つ一つの粒子の有機分子成分、無機成分を定量的に測定できるものが必要である。

単に検出可能であるということと、長期的に安定に精度高く測定できることとの間には、大きな技術的レベルの違いがある。大気化学の研究においてより正確な計測が必要な場合には、長期あるいは多点での観測が必要である。そうした用途に耐える信頼性高い機器を作り上げる技術的発展も非常に重要である。

その場計測装置の小型化・ポータブル化・信頼性向上の方向があり、あらゆるところに設置して大気微量成分の計測の広範囲でかつ詳細な計測を可能にする方向が考えられる。すべての交差点、家庭、自動車に設置して、大規模なネットワーク通信技術とデータ処理技術を発展させて、より綿密な大気観測と対策を可能にしてゆくであろう。人工衛星からの遠隔計測においては、これまでは太陽光やその反射光を計測する受動的な計測が主であったが、より能動的な人工衛星からレーザーを発射するライダー計測などが発展すると考えられる。

(2) 室内実験

現在進行しつつある大気環境変動を正しく理解し、来るべき将来の変動を予測するためには、モデル計算、フィールド観測、室内実験の三本柱の研究が不可欠である。そのなかで、室内実験は重要な位置を占めている。大気モデル計算には、大気微量成分が引き起こす数百の化学反応の反応速度及び反応生成物収量が入力されるため、化学反応過程を調べる室内実験は不可欠

である。室内実験は同時に、大気中で複雑に絡まりながら起こっている化学過程を解きほぐすうえでも重要である。実際の大気微量成分の種類や濃度を計測する、フィールド観測による研究も、刻々と変動しつつある大気環境の断片を直接に切り出すことで、多くの成果をあげている。現在では、フィールド観測と室内実験のデータが蓄積されつつあり、大気モデルを使って大気微量成分の濃度・空間分布・季節変動、あるいは異なる成分どうしの相関や濃度比等に関する議論ができるようになってきている。同時に、観測結果とモデル予測との不一致や微妙なずれが、大気環境変動の理解を助けるのに意味を持ちうるようになってきている。これまで世界的に様々な室内実験により反応速度定数や反応性生物の同定の研究がなされており、その研究結果は、大気モデル計算に活用できるように、米国ジェット推進研究所(JPL)やIUPACなどにより大気反応データベースにまとめられている [15, 16]。

日本の大気化学研究においも、これまで、大気中の気相反応過程の反応速度や反応生成物の同定、光分解過程の速度、分解生成物の道程などに関する室内実験がなされている。その研究成果はJPLやIUPACなどの大気反応データベースに数多く採用されている。これらの研究において、独自に考案した計測機器を使用して実験を行っているのが特徴的である。反応中のラジカルや原子などは、短寿命・低濃度であるが、素反応過程を明確に解析して反応過程を直接追跡するにはこれらの活性種を検出することが不可欠である。そのために、光イオン化質量分析法 [17]、真空紫外レーザー誘起蛍光法 [18]、キャビティーリングダウン法 [19]などを用いた室内実験の研究がなされている。

一例として、大気オゾンの光分解過程で生成する電子励起状態の酸素原子 $O(^1D)$ の研究がある。電子励起状態の酸素原子 $O(^1D)$ は基底状態の酸素原子 $O(^3P)$ に比べ反応性が高く、 $O(^1D)$ 原子と水蒸気の反応 $O(^1D)+H_2O \rightarrow 2 OH$ は地球大気中での重要なOHラジカル生成源である。更に成層圏においては、 $O(^1D)+N_2O \rightarrow 2 NO$ 反応を通して NO_x ラジカル生成にも寄与している。大気中で $O(^1D)$ はオゾンの紫外吸収帯での光分解によって生成される。それ故、オゾンの紫外光分解による $O(^1D)$ の光分解生成収率を決定することは大気化学的に極めて重要である。オゾンの紫外光分解で生成する二種類の酸素原子、 $O(^1D)$ と $O(^3P)$ 、をともに選択的に直接検出し、 $O(^1D)$ 原子生成の絶対収率の決定とその光分解波長依存性や温度依存性の精密測定において世界をリードしている。その成果は現在世界中の大気化学モデルに用いられている [20]。

また、気相反応だけでなく大気中の粒子であるエアロゾルの生成過程や変質過程の室内実験も行われている。エアロゾル粒子表面や内部での化学反応過程を定量的に見積もる際に、反応物の取り込み係数を正確に測定することが重要である。レーザー誘起蛍光法を使ったOHやHO₂のエアロゾルへの取り込み係数の測定がなされている [21, 22]。また、大型の光化学スモッグチャンバーを使用した二次有機エアロゾルの生成過程の解明の研究がなされている [23]。さらに、有機エアロゾルの吸湿特性やNaClの粒子の表面でのオゾンの反応などが室内実験で調べられている [24, 25]。

今後の室内実験の研究方向の一つとして、これまで検出や定量が困難であったラジカルの反応や光分解過程の研究がある。たとえば、最近、実験的に困難な物質である物質のClOラジカル

のダイマー、(ClO)₂ の光吸収スペクトルの室内実験による新たな計測結果が発表されたが、この結果によると南極オゾンホールでのオゾン破壊のこれまで考えられている機構では実際のオゾン減少を説明できないことになった[26]。このように、実験手法を進化させてより精度を上げた室内実験を行うことにより、大気化学反応をより正確にとらえることが可能になる。反応速度の同位体依存性も実験手法を発展させてより精度よく測定することが必要である。特に地球温暖化に関連して温室効果気体(CO₂, CH₄, N₂O など)の安定同位体の計測は、発生量や吸収・反応量の見積りの手がかりになる。その際に、反応・光分解の同位体依存性に関する室内実験による測定が重要な基礎的なデータとして不可欠である。

室内実験によるエアロゾルの反応特性、吸湿および物質吸着特性、雲核作用、光学特性の研究が今後重要である。地球温暖化や局所的な気候変動、地域的な大気汚染においてエアロゾルの果たす役割が大きく注目されている。実際のエアロゾルの大気計測においては、様々な成分・粒子径のエアロゾルが混在している状況であり、その環境への物理的・化学的作用を単純に観測から調べることは非常に難しい。実験室で典型的なエアロゾルを作成して、その物理的・化学的な特性を調べるのが重要となる。

表 3.13-1 代表的な大気中の微量成分を計測する分析法のおおよその分類と検出対象

大きな分類	手法	検出対象
光学的手法	赤外・可視・紫外の光吸収分光	CO ₂ , O ₃ , H ₂ O, N ₂ O, CO, CH ₄ , NO, NO ₂ など
	長光路差分吸収分光(DOAS)	NO ₃ , IO, NO ₂ , SO ₂ , O ₃ , HCHO など
	誘起蛍光分光法	OH, HO ₂ , NO, NO ₂ , SO ₂ , CO, Hg など
	ミリ波、マイクロ波吸収・発光法	O ₃ , ClO, HO ₂ , H ₂ O など
	キャビティリングダウン法	NO ₂ , NO ₃ , Hg, IO, OIO など
	化学発光法	NO, NO ₂ , O ₃ , RO ₂ など
質量分析法	イオン衝撃法	揮発性有機物、エアロゾル成分など
	化学イオン化法	OH, HNO ₃ , PAN, RO ₂ など
	レーザーイオン化法	揮発性有機物、エアロゾル成分など
クロマトグラフ法	ガスクロマトグラフ法	CO, CO ₂ , CH ₄ , 有機分子, DMS, N ₂ O, O ₂ など
	液クロマトグラフ法	PAH, 過酸化物, アルデヒド, 無機イオンなど
衛星観測	種々の衛星測器	O ₃ , NO ₂ , SO ₂ , Cl, CO, CFC, CO ₂ , エアロゾルなど

- [1] D. E. Heard, Ed (2006) *Analytical Techniques for Atmospheric Measurement*, Blackwell Publishing, ISBN-13: 978-1-4051-2357-0.
- [2] Kanaya, Y. et al. (2007) Urban photochemistry in central Tokyo: 1. Observed and modeled OH and HO₂ radical concentrations during the winter and summer of 2004, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 112, D21312.
- [3] Sadanaga, Y. et al. (2004) Title: Development of a measurement system of OH reactivity in the atmosphere by using a laser-induced pump and probe technique, *Rev. Sci. Instr.* 75, 2648–2655.
- [4] Kita et al. (2006) A chemical ionization mass spectrometer for ground-based measurements of nitric acid, *J. Atmos. Ocean. Tech.* 23, 1104–1113.
- [5] Matsumoto, J. et al. (2005) Development of a measurement system for nitrate radical and dinitrogen pentoxide using a thermal conversion/laser-induced fluorescence technique, *Rev. Sci. Instr.* 76, 064101.
- [6] Nakayama, T. et al. (2008) Nighttime measurements of ambient N₂O₅, NO₂, NO and O₃ in a sub-urban area, Toyokawa, Japan, *Atmos. Env.* 42, 1995–2006.
- [7] Tanimoto, H. et al. (2007) Development of a PTR-TOFMS instrument for real-time measurements of volatile organic compounds in air, *Int. J. Mass Spectr.* 263, 1–11.
- [8] Takegawa, N. (2001) Airborne vacuum ultraviolet resonance fluorescence instrument for in situ measurement of CO, *J. Geophys. Res.–Atmospheres* 106, 24237–24244.
- [9] Mizuno, A. et al. (2002) Millimeter-wave radiometer for the measurement of stratospheric ClO using a superconductive (SIS) receiver installed in the southern hemisphere, *Int. J. Infrared Millimeter Waves*, 23, 981–995.
- [10] Tohjima, Y. et al. (2005) First measurements of the latitudinal atmospheric O₂ and CO₂ distributions across the western Pacific, *Geophys. Res. Lett.* 32, L17805.
- [11] Matsumoto, J. et al. (2006) Scavenging of pollutant acid substances by Asian mineral dust particles, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L07816.
- [12] Nakajima, H. et al. (2002) Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in orbit, *J. Geophys. Res.–Atmospheres* 107, D8213.
- [13] Nakajima, H. (2006) Preface to special section on ILAS-II: The Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II *J. Geophys. Res.–Atmospheres*, 111, D20S90.
- [14] Zakharov, V.I., R. Imasu et al. (2004) Latitudinal distribution of the deuterium to hydrogen ratio in the atmospheric water vapor retrieved from IMG/ADEOS data, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L12104.
- [15] *Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies*, JPL Publication No. 06-2, <http://jpldataeval.jpl.nasa.gov/>
- [16] IUPAC Subcommittee for Gas Kinetic Data Evaluation, <http://www.iupac-kinetic.ch.cam.ac.uk/>

- [17] Imamura, T. et al. (2003) Rate coefficient for the reaction of CCl₃ radicals with ozone, *Int. J. Chem. Kin.* 35, 310–316.
- [18] Takahashi, K. et al. (2007) Pulsed laser photolysis vacuum UV laser-induced fluorescence kinetic study of the gas-phase reactions of Cl(P–2(3/2)) atoms with C–3–C–6 ketones, *J. Phys. Chem. A* 111, 1271–1276.
- [19] Enami, S. et al. (2007) A gas-phase kinetic study of the reaction between bromine monoxide and methylperoxy radicals at atmospheric temperatures, *J. Phys. Chem. A* 111, 3342–3348.
- [20] Matsumi, Y., M. Kawasaki (2003) Photolysis of atmospheric ozone in the ultraviolet region, *Chem. Rev.* 103, 4767–4781.
- [21] Takami, A. et al. (1998), Uptake of OH radical on aqueous surface, *Chem. Phys.* 231 215–227.
- [22] Taketani, F. et al. (2008) Kinetics of Heterogeneous Reactions of HO₂ Radical at Ambient Concentration Levels with (NH₄)₂SO₄ and NaCl Aerosol Particles, *J. Phys. Chem. A*, 112, 2370–2377.
- [23] Sato, K. et al. (2004) Secondary organic aerosol formation during the photo-oxidation of toluene: Dependence on initial hydrocarbon concentration, *Bull. Chem. Soc. Jpn*, 77, 667–671.
- [24] Mochida, M. (2004) Hygroscopic properties of levoglucosan and related organic compounds characteristic to biomass burning aerosol particles, *J. Geophys. Res.–Atmospheres* 109, D21202.
- [25] Sadanaga Y. et al. (2001) Formation of molecular chlorine in dark condition: Heterogeneous reaction of ozone with sea salt in the presence of ferric ion *Geophys. Res. Lett.*, 28, 4433–4436.
- [26] von Hobe, M. (2007) Revisiting Ozone Depletion, *Science* 318, 1878.

3. 14. アジアの排出インベントリ

(1)はじめに

中国をはじめとするアジアの発展途上国では、人間活動に伴う大気汚染物質の排出量が急速に増加している。例えば、中国のNO_x排出量は1980年から2003年に約4倍に増加し、2000年以降はその傾向が一層、加速している(Ohara et al., 2007)。このような排出物質は、対流圏オゾンや粒子状物質等をはじめとする広域大気汚染(越境大気汚染)を引き起こし、健康や食糧生産、生態系への影響が懸念される。更に、広域大気汚染が気候変動に影響を与え、大気汚染と相まって、人・生態系に大きなダメージを与える危険性もある。また、東アジアの大気汚染は、地球規模の大気質にも大きな影響を及ぼしており、世界的な環境問題と認識されている。一方、我が国の大気質は、アジア大陸からの越境汚染の影響を強く受けており、国内の大気環境保全のためにも重要な問題となりつつある。このような状況の中で、アジアにおいて高精度で信頼性の高い排出インベントリを作成することが求められている。

(2)アジアにおける排出インベントリの現状

アジアにおける排出インベントリは、(a) 自国を対象とした研究ベース・政策ベースのインベントリと、(b) REAS(Ohara et al., 2007)やTRACE-P(Streets et al., 2003)のようなアジア域をカバーしたインベントリに大別される。表 3.14-1は、アジアを対象とした主要な排出インベントリを示す。ここでは、対象年が2000年以降で東アジア全域を対象としているインベントリのみ(全球インベントリを含む)を取り上げている。

表 3.14-1 アジア域排出インベントリの概要

研究者	基準年	領域	物質	空間分解能	出典
REAS	1980-2020	All Asia	SO ₂ , NO _x , CO, NMVOC, BC, OC, NH ₃ , N ₂ O, CH ₄	0.5 度	Ohara et al. (2007)
TRACE-P	2000	All Asia	SO ₂ , NO _x , CO, NMVOC, BC, OC, NH ₃ , CH ₄	1 度	Streets et al. (2003)
EDGAR	1990-2000	Global	SO ₂ , NO _x , CO, NMVOC, NH ₃ , CO ₂ , N ₂ O, CH ₄ , HFCs, PFCs, SF ₆	1 度	Olivier et al. (1996)
IIASA	1990-2030	Global	SO ₂ , NO _x , CO, NMVOC, BC, OC, PM ₁₀ , NH ₃ , CO ₂ , N ₂ O, CH ₄	国・地域	Cofara et al. (2007)

表 3.14-2 は 2000 年における地域別排出量の比較結果を、SO₂と NO_x について示す。SO₂と NO_x とともに、EDGAR の推計結果が極めて大きいのが特徴的である。この原因は明らかではないが、アジア域を対象としたリージョナル・インベントリがアジアの燃料硫黄分や排出規制動向を考慮しているのに対して、全球インベントリである EDGAR には地域排出情報が充分に取り込まれていない可能性がある。一方、TRACE-P は他のどの推計値よりも低い。EDGAR を除く推計値間の差違は、アジア全域では SO₂ が 20%以内、NO_x が 10%以内であり、東アジア地域では、SO₂ が 25%以内、NO_x が 5%以内である(いずれも REAS を基準として)。一方、Streets et al.(2003)によれば、排出推計の不確かさ(uncertainty)は大きく、特に CO, NMVOC, BC, OC についてはアジア全域で 100%以上であると評価している。

表 3.14-2 2000 年における SO₂と NO_x の地域別排出量の比較^a

インベントリ	REAS	TRACE-P ^b	EDGAR ^c	IIASA ^d
SO ₂				
中国	27,555	20,303	34,197	27,711
日本	926	800	2,210	871
その他の東アジア	1,642	1,513	6,511	1,581
東南アジア	3,649	3,150	4,127	3,411
インド	6,140	5,462	7,846	5,919
その他の南アジア	1,336	1,634	1,130	1,658
アジア全域	41,248	32,862	56,021	41,152
NO _x				
中国	11,186	10,531	13,728	11,722
日本	1,959	2,188	2,725	2,504
その他の東アジア	2,473	2,137	3,006	2,260
東南アジア	3,770	3,058	3,913	3,944
インド	4,730	4,047	6,285	4,563
その他の南アジア	992	713	1,444	800
アジア全域	25,112	22,674	31,102	25,792

^a 単位はkt/yr⁻¹。国際航空、国際船舶、オープンバーニングからの排出は除く。

^b http://www.cgrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA/index_16.htm

^c <http://www.mnp.nl/edgar/model/v32ft2000edgar/>

^d http://www.iiasa.ac.at/rains/global_emiss/global_emiss1.html。アフガニスタンを除く。

(3) 東アジアにおける排出量のトレンドと将来動向

ここでは、REAS インベントリの結果をもとに、東アジアにおける大気汚染物質(NO_xと SO₂を例として)の経年変化と将来動向について整理する。

表 3.14-3 は、東アジアにおける 1980、1990、2003 年の排出量の変化を示す。1980 年から 2003 年におけるアジア全域の変化に着目すると、燃料消費量がこの間に 2.3 倍増加したことに伴い、NO_x 排出量も 2.8 倍に増加した。中でも、中国における増加は 3.8 倍(平均年率 6%)と非常に大き

く、特に、2000年以降は過去最高となっている(3年間で1.3倍)。SO₂排出量は2000年にはアジア全域で4,149万トンであり、工場・火力発電所などの石炭燃焼施設からの排出割合が64%と高い。1980年から2003年の間に排出量はアジアでは2.2倍、東アジアでは2.1倍、中国では2.5倍に増加している。

次に、REASによる2020年における将来排出量を表4に示す(Ohara et al., 2007)。ここでは、中国については、将来のエネルギー消費と環境対策の動向を考慮して、現状推移型(PFC)、持続可能性追求型(REF)、対策強化型(PSC)の3種類の排出シナリオが、中国以外の国については、国際エネルギー機関(IEA)のエネルギー需要予測に基づく排出シナリオが、それぞれ設定されている。この結果によると、2020年における中国のNO_x排出量は、REFとPFCのシナリオでは、2000年に較べて、それぞれ、39%、128%増加するが、PSCシナリオでは、2000年レベルに比べ、わずかではあるが減少する。しかし、2000年以降の排出量や燃料消費量の増加傾向や衛星観測結果などから判断すると、現在のNO_x排出量は既にPFCシナリオの2020年予測値付近まで達している可能性がある(図3.14-1)。また、東アジア地域の将来排出量は、中国における排出シナリオに大きく影響されるが、どの排出シナリオでも2000年より増加すると予測される。それに対して、中国におけるSO₂はシナリオによって変化傾向が大きく変化し、2000年に較べて-28%(PSC)、-3%(REF)、+163%(PFC)となっている(図3.14-1)。

表 3.14-3 東アジアの1980~2003年の排出量

Region	1980	1990	2003
NO _x			
China	3.8	6.6 (1.7)	14.5 (3.8)
Other East Asia	3.6	3.8 (1.1)	4.7 (1.3)
East Asia Total	7.4	10.4 (1.4)	19.2 (2.6)
SO ₂			
China	14.9	21.6 (1.4)	36.6 (2.5)
Other East Asia	3.9	3.8 (1.0)	2.4 (0.6)
East Asia Total	18.8	25.3 (1.3)	39.0 (2.1)

表 3.14-4 東アジアの排出量の将来変化

Region	2000	2020		
		PSC	REF	PFC
NO _x				
China	11.2	11.0 (1.0)	15.6 (1.4)	25.5 (2.3)
Other East Asia	4.4	5.5 (1.3)	5.5 (1.3)	5.5 (1.3)
East Asia Total	15.6	16.5 (1.1)	21.1 (1.4)	31.0 (2.0)
SO ₂				
China	27.6	19.9 (0.7)	26.8 (1.0)	40.9 (1.5)
Other East Asia	2.6	3.6 (1.4)	3.6 (1.4)	3.6 (1.4)
East Asia Total	30.2	23.5 (0.8)	30.4 (1.0)	44.5 (1.5)

単位は Mt yr⁻¹、() は 1980 年に対する増加率

単位は Mt yr⁻¹、() は 2000 年に対する増加率

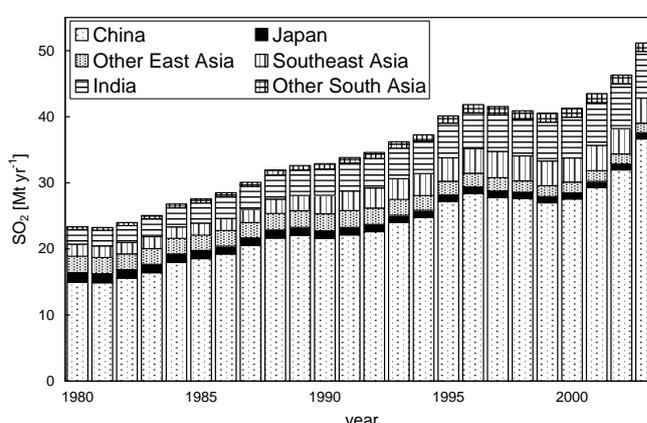
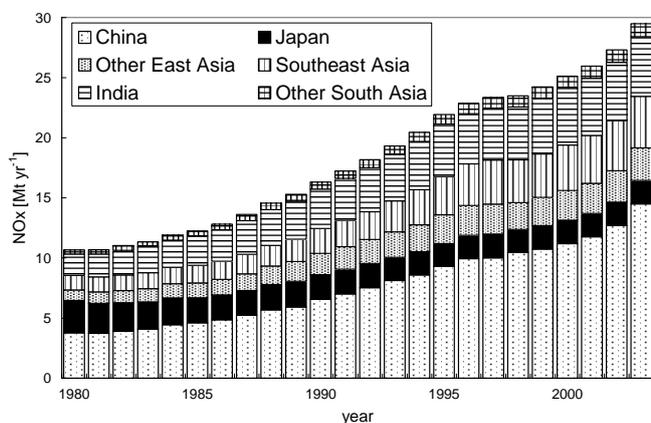


図 3.14-1 アジアにおける NO_x, SO₂ 排出量の経年変化

(4) アジにおける排出インベントリの問題・課題とその解決のために

アジアを対象とした排出インベントリには、①排出量推計の不確かさ(uncertainty)の低減、②各国の排出状況を反映した排出量の推計、③排出量検証方法の開発、④排出変化の迅速な把握、⑤国際共同研究の推進による共有化の推進、といった問題・課題がある。このうち、課題①～③に関しては、対流圏衛星等の観測データに基づく逆推計(トップダウン・アプローチ)と各国の排出実態を反映したインベントリ作成(ボトムアップ・アプローチ)を組み合わせた研究手法が有効である。

最近、対流圏観測衛星データと化学物質輸送モデルを組み合わせ、化学物質の排出量を推計するインバース手法の開発が世界的に進められ、排出量推計の不確かさを低減する手法としての有効性が明らかになりつつある。特に、衛星観測データが存在し、大気中での反応性が比較的強く、しかも、排出量の不確かさが大きな物質を対象とした研究結果が多数、報告されている。その代表的な物質はCOとNO_xである。Martin et al. (2002, 2006) は、対流圏観測衛星センサーGOME/SCIAMACHYのNO₂データと全球物質輸送モデルの結果をもとに、単純な最尤法を用いたインバース推計を行い、NO_x排出量の全球分布を推計している。一方、対流圏衛星からのCO計測結果を用い、全球の地域別CO排出量をインバース推計する研究も進められている。例えば、Arellano et al.(2004)のインバース推計結果によれば、東アジアにおける化石燃料・バイオ燃料起源のCO排出量は、既存の排出インベントリの推計値よりも2倍程度高い。さらに最近では、GOME/SCIAMACHYのNO₂データ及び化学輸送モデルとそのアジョイントを用いて、地域別NO_x排出量の経年変化を全球解析した結果も報告されている(Stavrakou et al., 2008)。

東アジア地域を対象としたインバース研究は、CO について多く見られる。例えば、Palmer et al.(2003)は、2001年春の観測キャンペーンTRACE-Pにおける航空機測定COデータをもとにしたインバース推計により、中国の人為起源CO排出量を168 Tgと推計した。一方、Yumimoto and Uno (2006)は、日本列島周辺の地上観測ステーション3局で測定されたCOデータから中国の人為起源排出量を逆推計した結果、147 Tgを得た。これらの推計結果や衛星観測データに基づく逆推計結果に較べると、排出インベントリの排出量はかなり少ない(例えば、TRACE-Pでは100 Tg)ため、その過小推計の可能性が指摘された。このような結果も踏まえて、Streets et al.(2006)はTRACE-Pの方法論を総合的に見直し、工業部門の排出量を大幅に上方修正するなどして中国CO排出量を142 Tgに改訂した。このように、観測データに基づくインバース推計により、排出インベントリの不確かさを少なくすることが可能である。

一方、Uno et al.(2007)やZhang et al.(2007)は、中国北東部におけるNO_x排出量もしくはNO₂モデル濃度のトレンド上昇が、GOME/SCIAMACHYによるNO₂濃度の上昇よりも低いことから、同地域におけるNO_x排出量の経年上昇が過少評価されている可能性を指摘している。Tanimoto et al. (2008)の逆推計によると、2005年における中国からのCO排出量は2001年のそれと比較して約15%増加しか増加しておらず、エネルギー転換が進んでいることが示唆された。また、COの逆推

計値は排出インベントリによる推計値や MOPITT 衛星による CO カラム量の推移ともよく整合し、大きな不一致の見られる NO_x とは対照的な結果が得られている。

その他の具体的な問題・課題としては以下のようなことがあげられる。

① バイオマスバーニング(オープンバーニング)

森林火災や野焼きなどの屋外におけるバイオマスバーニングはアジアの大気環境に大きな影響を与えている。バイオマスバーニングによる排出実態(焼却量、排出係数、組成、排出高度など)を総合的に解明し、時間変動を考慮したグリッドデータベースを構築する必要がある。

② 植物起源 NMVOC

アジア、特に東南アジア地域において、森林起源の NMVOC は二次粒子 OC やオゾンの生成に大きな影響を与えていると考えられる。Guenther et al.(1995, 2006)は、植物起源 NMVOC の全球インベントリを作成しているが、アジア地域における発生量の妥当性に関する定量的評価はなされておらず、今後の課題である。

③ 排出インベントリの過去推計と将来予測

アジアにおける大気汚染の年々変動の原因や人間活動による大気環境影響を解明するためには、排出量の過去推計と将来予測が必要である。過去～将来における排出量をコンシステントな方法論によって算出したアジア地域インベントリは REAS 以外には存在せず、この分野の研究を底上げする必要がある。

④ 排出規制実態と将来動向の把握

アジア諸国における排出規制は年々強化されている。これに伴い、2000 年前後から工場や自動車の排出係数は変化していると考えられ、これらの実態を把握する必要がある。また、より信頼性の高い将来予測を行うためには、将来の社会・産業・エネルギー構造や技術革新の変化とともに、各国の規制動向をどのように設定するかが重要となる。

⑤ 時間変動

既往の人為発生源インベントリのほとんどは年間値ベースである。しかし、民生・事業所における暖房用燃焼施設や農業起源の排出量は大きな季節変動をしていると考えられる。例えば、Streets et al. (2003)は中国における家庭ストーブ使用時間を気温によって変化させることによって月別排出量を推計し、中国全体の BC、CO 排出量が冬季1月には年平均値のそれぞれ 2 倍、1.5 倍になると報告している。さらに、排出量の日内変動や週内変動も大きいと考えられる。排出インベントリの高精度化のためには、時間変動を考慮することが今後の課題である。

Arellano, A.F., Kasibhatla, P.S., Giglio, L., van der Werf, G.R., and Randerson, J.T.: Top-down estimates of global CO sources using MOPITT measurements, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L01104, 2004.

Cofala, J., Amann, M., Klimont, Z., Kupiainen, K., Hoglund-Isaksson, L., and Mechler, R.: Scenarios of global anthropogenic emissions of air pollutants and methane until 2030, *Atmos. Environ.*, **41**, 8486-8499, 2007.

- Guenther, A., Hewitt, C.N., Erickson, D., Fall, R., Geron, C., Graedel, T., Harley, P., Klinger, L., Lerdau, M., McKay, W.A., Pierce, T., Scholes, B., Steinbrecher, R., Tallamraju, R., Taylor, J., and Zimmerman, P. A.: Global-model of natural volatile organic-compound emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**, 8873–8892, 1995.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P.I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3181–3210, 2006.
- Martin, R.V., Chance, K., Jacob, D.J., Kurosu, T.P., Spurr, R.J.D., Bucsela, E., Gleason, J.F., Palmer, P.I., Bey, I., Fiore, A.M., Li, Q., Yantosca, R.M., and Koelemeijer, R.B.A.: An improved retrieval of tropospheric nitrogen dioxide from GOME, *J. Geophys. Res.*, **107**, 4437, 2002.
- Martin, R.V., Sioris, C.E., Chance, K., Ryerson, T.B., Bertram, T.H., Wooldridge, P.J., Cohen, R.C., Neuman, J.A., Swanson, A., and Flocke, F.M.: Evaluation of space-based constraints on global nitrogen oxide emissions with regional aircraft measurements over and downwind of eastern North America, *J. Geophys. Res.*, **111**, D15308, 2006.
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, H., Yamaji, K., Yan, X., and Hayasaka, T.: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020, *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 4419–4444, 2007.
- Olivier, J.G.J., Bouwman, A.F., van der Maas, C.W.M., Berdowski, J.J.M., Veldt, C., Bloos, J.P.J., Visschedijk, A.J.H., Zandveld, P.Y.J., and Haverlag, J.L.: *Description of EDGAR Version 2.0*, National Institute of Public Health and the Environment Report No.771060 002, Bilthoven, The Netherlands, 1996.
- Palmer, P. I., Jacob, D. J., Jones, D. B. A., Heald, C. L., Yantosca, R. M., Logan, J. A., Sachse, G. W., and Streets, D. G.: Inverting for emissions of carbon monoxide from Asia using aircraft observations over the western Pacific, *J. Geophys. Res.*, **108**, 8828, 2003.
- Stavrakou, T., Müller, J.-F., Boersma, K.F., De Smedt, I., van der A, R.J.: Assessing the distribution and growth rates of NO_x emission sources by inverting a 10-year record of NO₂ satellite columns, *Geophys. Res. Lett.*, **35**, L10801, 2008.
- Streets, D. G., Bond, T. C., Carmichael, G. R., Fernandes, S. D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S. M., Tsai, N. Y., Wang, M. Q., Woo, J.-H., and Yarber, K. F.: An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, **108**, 8809, 2003.
- Streets, D. G., Zhang, Q., Wang, L., He, K., Hao, J., Wu, Y., Tang, Y., and Carmichael, G. R.: Revisiting China's CO emissions after the Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) mission: synthesis of inventories, atmospheric modeling, and observations, *J. Geophys. Res.*, **111**, D14306, 2006.
- Tanimoto, H., Y. Sawa, S. Yonemura, K. Yumimoto, H. Matsueda, I. Uno, T. Hayasaka, H. Mukai, Y. Tohjima, K. Tsuboi, and L. Zhang, Diagnosing recent CO emissions and ozone evolution in East

- Asia using coordinated surface observations, adjoint inverse modeling, and MOPITT satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 3867–3880, 2008.
- Uno, I., He, Y., Ohara, T., Yamaji, K., Kurokawa, J., Katayama, M., Wang, Z., Noguchi, K., Hayashida, S., Richter, A., and Burrows, J.P.: Systematic analysis of interannual and seasonal variations of model-simulated tropospheric NO₂ in Asia and comparison with GOME-satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 1671–1681, 2007.
- Yumimoto, K. and Uno, I.: Adjoint inverse modeling of CO emissions over Eastern Asia using four-dimensional variational data assimilation, *Atmos. Environ.*, **40**, 6836–6845, 2006.
- Zhang, Q., Streets, D. G., He, K., Wang, Y., Richter, A., Burrows, J. P., Uno, I., Jang, C. J., Chen, D., Yao, Z., and Lei, Y. : NO_x emission trends for China, 1995–2004: The view from the ground and the view from space, *J. Geophys. Res.*, **112**, D22306, 2007.

3. 15. アジアにおける測定の標準化とトレーサビリティネットワーク

(1) はじめに

大気中における微量成分の長期的な変化傾向の把握には高精度の計測が必要である。一方、計量学の分野においても、大気中における化学物質の標準に関する取り組みが進んできた。近年のグローバルモニタリングネットワークに向けた意識の高まりとともに、両者の距離が縮まり接点生まれつつある。ここでは、筆者の研究対象分野であるオゾンについて主に述べる。

(2) 大気化学におけるオゾン標準

対流圏オゾンについては、数十 ppbv もの大きな濃度変動を示しうる日々変動や季節変化と比較して、年々変動や長期傾向、大陸内や大陸間の長距離輸送などの時空間変動に内包されるシグナルは数 ppbv と極めて微小である。とりわけ、人間活動が原因とみられる近年の対流圏オゾン濃度の増加は、発展途上国の経済成長が著しいアジア地域においては今後も続くと考えられるため、将来における濃度変化の推移が注視されている。その増加率はせいぜい年率数パーセントであるため、観測の観点からは標準と測定の高精度化とそれに基づく国際的な観測ネットワーク化が不可欠である。

日本を含むアジア諸国においては高精度なオゾンの国家標準およびそれに基づくトップダウン的な計量トレーサビリティシステムがこれまで存在しなかった。また、二酸化炭素など長寿命温室効果気体のように、研究コミュニティ内で精度を高め、個々のキャリブレーションスケールを統一（または補正）する試みや大規模な相互比較実験は活発に行われてこなかった。従って、多くの研究者は独自の較正装置を有してはいるものの、それらをより高次の計量標準に結びつけ長期にわたって維持する試みはほとんど行われてこなかったといえる。

(3) 高確度・高精度オゾン標準の確立に向けて

オゾンの標準となり得る手法には次の二種類がある。紫外吸収法は低圧水銀ランプから発せられる紫外線吸収に基づく方法であり、不確実性が小さく長期間安定に運用することができる利点があるが、SI トレーサビリティは取れない。一方、気相滴定法は既知濃度の一酸化窒素とオゾンとの化学反応が化学量論的に起こることを利用した濃度決定法であるが、多くの機器やプロセスを必要とするため測定の不確実性は UV 法ほど小さくない。

大気レベルにおけるオゾンの国家標準として現在世界で最も広く普及しているのは、米国標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology: NIST) の参照基準光度計 (Standard Reference Photometer; SRP) である。NIST SRP は、高い長期安定性を有する上、相互の定期比較によって基準が維持されているため、少なくとも運用上は優れているからである。その精度や長期安定性は、SRP どうしの相互比較によって維持されており、 $\pm 0.2\%$ と報告されている (Paur et al., 2003)。近年、気相滴定法と紫外吸収法の両原理に約 2% の系統的な差があることが示唆された (Tanimoto et al., 2006; Tanimoto and Mukai., 2006)。これは、大気観測に用いるオゾン計につ

いて、どちらの基準に基づくかで測定された濃度に約 2 % の差が生じることを示唆しており、重要な意味を持つ。いずれにせよ、地表オゾンの微小シグナルを解明するために基準器が満たすべき精度として、0 - 200 ppbv の濃度範囲において 0.5 ppbv 以内が目指す点であると言えよう。

オゾン測定を高度化するためには、標準の確立とともにそれを用いたトレーサビリティシステムを策定・運用することが必要である。標準には 10 年スケールでの長期安定性が求められるほか、ネットワーク内のリンクを保証するトレーサビリティと、ネットワーク間のリンクを保証するコンパラビリティが求められる。以下、国際的コンパラビリティ(=比較可能性)の確保と、地域的トレーサビリティ(=遡り可能性)について述べる。

(4) 国際的なコンパラビリティ

NIST SRP はもともと米国環境保護庁 (U.S. Environmental Protection Agency: US-EPA) のオゾン測定に関する QA/QC (質保証・質制御) のために共同研究として NIST が開発したものであるが、近年、国際度量衡局 (Bureau International des Poids et Mesures, BIPM) が各国標準の等価性と国際的コンパラビリティの確保を目的とする大気オゾンの標準に関するプログラム「大気レベルにおけるオゾン標準の国際相互比較実験のパイロットスタディ (CCQM-P28)」を行った。谷本・向井らは、2004 年 7 月に同プログラムの相互比較実験に参加し、参加 23 ヶ国の計量研究機関や国際機関等との比較を行った結果、非常に良い一致が得られた (Viallon et al., 2006)。また、2007-2008 年には正式な国際相互比較実験であるキーコンパリソン (key comparison) が開催されている。図 3.14-1 はこのような活動を通じて確保される、トレーサビリティネットワークの概略である。SRP の製作元である NIST とはエレクトロニクスやソフトウェアなど装置のアップグレードや技術支援を通じて SRP35 のクオリティを維持し、国際的なオーガナイズを行う BIPM とはパイロットスタディやキーコンパリソンで行われる相互比較を通じて関係機関とのコンパラビリティを確保する。一方で、SRP35 を起点として、二次的な移動標準 (Transfer Standard) を介したオゾン測定器の較正を行う体制を維持し、トレーサビリティを確保することに努める。

(5) アジアにおけるトレーサビリティ

地域的なトレーサビリティを確立する第一歩としては、2005 年 3 月に Atmospheric Brown Clouds-Asia プログラムの一環として韓国・Gosan 観測所において行われた東アジア地域実験 2005 (East Asian Regional Experiment, EAREX2005) が挙げられる。この枠組みの中で、ガス成分、エアロゾル成分、放射の計測に関する国際相互比較実験が行われ、ガス成分については、国立環境研究所・気象庁気象研究所・農業環境技術研究所の共同研究チームが主催して、北東アジアの大気化学研究者によるオゾン測定の相互比較実験を行った。日本からの参加の他、韓国からはソウル国立大学・韓国外国語大学、香港からは香港工科大学、台湾からは台湾国立中央大学の各研究グループが参加して、一ヶ月間の大気測定とその前後のプレ相互比較・ポスト相互比較が行われた。参加四カ国グループのオゾン計は、SRP35 にスケーリングされた移動標準 (ABC TS) に概ね $\pm 2\%$ の範囲でよく一致することが確かめられた (Tanimoto et al., 2007a)。このような

活動によって、国際的なオゾン標準のトレーサビリティのみならず、北東アジアにおける研究機関間でのオゾン測定トレーサビリティが確保されつつある。

一酸化炭素については、紙面の都合上ここでは詳しく述べないが、日本の研究グループは気象研究所が維持・管理する標準ガスに対してトレーサビリティを取り、同時に日本・韓国・香港の各研究グループで国際相互比較を行う試みがなされた(Tanimoto et al., 2007b)。標準・測定器ともにいくつかの重要な課題が明らかになった。世界的にも、一酸化炭素の標準ガスについてはまだ発展途上であり、今後、確度と精度の改善が望まれる。

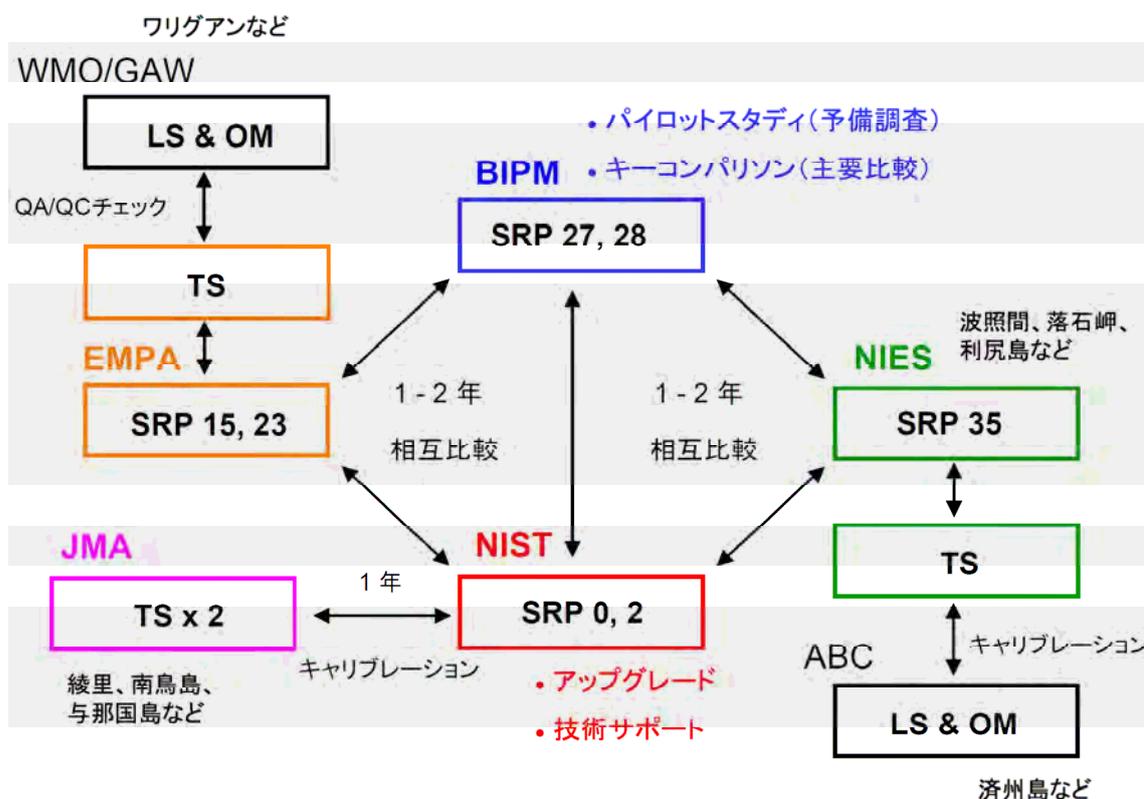


図 3.15-1: オゾンに関するトレーサビリティ・コンパラビリティネットワーク。SRP (Standard Reference Photometer)の番号は装置番号を示しており、2007 年現在、世界で 40 台が各国研究所等で維持されている。SRP から TS (Transfer Standard, 移動標準)を経由して LS (Laboratory Standard, 各研究グループの標準)や OM (Ozone Monitor, 各観測所で使われるオゾン測定器)にトレーサビリティが伝播されている。各研究機関や研究プログラムのアクリニムは次のとおり。BIPM (Bureau International des Poids et Mesures; 国際度量衡局), NIST (National Institute of Standards and Technology, USA; 米国標準技術研究所), NIES (National Institute for Environmental Studies, Japan; 国立環境研究所), JMA (Japan Meteorological Agency, Japan; 気象庁), EMPA (Swiss Federal Laboratories for Materials Testing and Research, Switzerland; スイス連邦材料試験研究所), WMO (World Meteorological Organization; 世界気象

機関), GAW (Global Atmospheric Watch; 全球大気監視計画), ABC (Atmospheric Brown Clouds; 大気褐色雲プロジェクト)

- Paur, R.J., A.M. Bass, J.E. Norris, and T.J. Buckley, Standard reference photometer for the assay of ozone in calibration atmospheres, NISTIR 6369, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2003.
- Tanimoto, H., and H. Mukai, Establishing ozone standards at ambient levels and traceability system in Japan, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 41(3), 123–134, 2006.
- Tanimoto, H., H. Mukai, S. Hashimoto, and J.E. Norris, Intercomparison of ultraviolet photometry and gas-phase titration techniques for ozone reference standards at ambient levels, *J. Geophys. Res.*, 111, D16313, doi:10.1029/2005JD006983, 2006.
- Tanimoto, H., H. Mukai, Y. Sawa, H. Matsueda, S. Yonemura, T. Wang, S. Poon, A. Wong, G. Lee, J.Y. Jung, K.R. Kim, M.H. Lee, N.H. Lin, J.L. Wang, C.F. Ou-Yang, C.F. Wu, H. Akimoto, P. Pochanart, K. Tsuboi, H. Doi, C. Zellweger, J. Klausen, Direct assessment of international consistency of standards for ground-level ozone: Strategy and implementation toward metrological traceability network in Asia, *J. Environ. Monit.*, 9, doi:10.1039/b701230f, 1183–1193, 2007a.
- Tanimoto, H., Y. Sawa, H. Matsueda, A. Wada, S. Yonemura, H. Mukai, T. Wang, S. Poon, A. Wong, G. Lee, J.Y. Jung, K.R. Kim, M.H. Lee, N.H. Lin, J.L. Wang, C.F. Ou-Yang, C.F. Wu, Evaluation of standards and methods for continuous measurements of carbon monoxide at ground-based sites in Asia, *Pap. Met. Geophys.*, doi:10.2467/mripapers.58.85, 58, 85–93, 2007b.
- Viallon, J. et al, International Comparison CCQM-P28, Ozone at ambient level (Pilot study), *Metrologia*, 43, Tech. Suppl., 08010, doi:10.1088/0026-1394/43/1A/08010, 2006.

3. 16. アジア大気化学データベース構築

(1) 研究成果としてのデータベース

大気化学データのデータベース作成は研究基盤構築として重要な位置づけをもつ。なによりもまずデータベースは研究の成果である。アーカイブされたデータは、大気環境の現状を示す直接的な証拠であり、将来予測に用いられる数値モデルのプロセス改良・検証のための材料である。これまで各種の研究プロジェクトにより、継続的に、あるいはキャンペーンベースで、大気化学データが得られてきた。それらは、研究プロジェクトの予算などに応じて、異なったプロジェクトの成果として示されてきたものが少なくない。しかし、これらの様々なデータを統合化することにより、大気化学場のより体系的な描像が得られる。

従来、アジアの研究者によるアジアのデータは、なかなか公開されず、データの信頼性が保障されず、フォーマットなどが使いにくい形になっているなどにより、海外の研究者からは、限定的にしか使用されてこなかった。しかし、各章で示されたとおり、東アジアは世界の大気環境研究から特に注目を浴びている研究領域である。アジアで得られた、データの信頼性を保障した、使いやすいフォーマットのデータの公開が、アジアの大気化学研究者の使命となっている。アジアではこれまで日本の研究者により、時空間的には限定されているものの多くの観測データが蓄積されてきている。これらのデータを国際的に多くの研究で利用してもらうことは、データの価値を増加させ、データを取得したことの成果を増加させることとなる。

大気化学データはその測定項目が多種多様であり、また新しい測定技術の開発によりその項目が変容してきている点が、データベース化を困難にしているひとつの原因である。しかし、多種多様なデータのデータベース化こそが、多様なニーズにこたえる唯一の方法である。数値モデルが進歩し、従来、予報変数でなかったパラメータが予報変数となったとき、その検証に供するデータが既にデータベース化されていることが必要である。

データベースを内外に示すことは、大気化学研究コミュニティの研究成果の提示であり、コミュニティが提供できる知見を指し示すことである。

(2) 今後の観測のあり方をきめるデータベース

2001年に実施されたアメリカNASAの TRACE-P 航空機観測とNSFの ACE-Asia 観測は、大規模な航空機・船舶・地上観測により多くのデータを取得し、大きな研究成果をあげた。しかし、これらの研究では、アジア大陸から流出してきた大気(アウトフロー)の観測が中心であった。すなわち、高濃度のオゾンやエアロゾルが広がっていると考えられるアジア大陸内部での観測はほとんど実施されなかった。これ以外でも従来の観測プロジェクトにおいては、アジア大陸内部のオゾン、エアロゾル、その前駆気体の信頼性の高い観測は少ない。この意味でアジアは観測の空白域であり、データの欠落域である。

アジアの大気物質の動態把握とその影響の研究、あるいは数値モデル計算のプロセス改良・検証という観点からすると、アジア大陸内部での観測とそのデータベース化が急務であることが

明白となる。データをデータベースとしてアーカイブし、それを研究に使用していくことにより、今後どのような場所、季節でどのような種類のデータを取得すべきなのか、ひとつの指針が示される。ここではアジアを最も重要な例として示したが、熱帯や極域など、それぞれの領域においても、データベースは今後の観測戦略の策定の上で、指針となると考えられる。

(3) データのQA/QC維持システムとしてのデータベース

データベースで公開するデータはその質の保証とコントロール維持体制(QA/QC)が、きわめて重要である。国際IGACのタスクの認定においても、その保障が必要条件となっている。2005年に実施されたABC-AsiaのEAREX-2005観測キャンペーンでは、日本、韓国、中国(香港、台湾)の観測者間で、オゾン、一酸化炭素、エアロゾルなどの比較観測が実施された(3.15章)。今後さらにアジアの大気化学データの標準化が強く求められる。

(4) 研究構築の基盤としてのデータベース

NASAのGTE(Global Tropospheric Experiment)では、世界各地で実施された航空機観測の結果をもとに、緯度・経度平均した平均的な各種大気成分の高度分布を作成し、提供している。この結果、さまざまなグローバルモデルの検証にそのデータは利用されている。もともとGTE航空機観測データは、そのデータを使って観測者らにより多くの研究成果が出され、論文としてまとめられているが、そのデータが広く利用できる形になっていることにより、さらに多くの研究を支えている。逆にこのようなデータが利用可能ということであれば、それを積極的に利用した研究が発案される可能性もある。

データベース化はこのような新たな研究の基盤となる可能性をもつ。さまざまな目的で得られたデータであっても、それが自由に使える形となることにより、そこに新たな研究が発展する可能性がある。またそのような可能性を拡大させる観測的研究の実施が必要である。

また、地球科学研究基盤と情報科学のあり方を模索しているeGYなどの国際学術イニシアティブでは以前からデータアクセス、公開、維持の重要性を訴えてきたが、近年は、将来の科学データベース利用におけるcitation制度を設けるなどの意見も出始めている(C. Barton, private communication, 2008)。これは、論文における他論文と同様に、引用・参照の対象として、データベース自体の学術業績としての価値を明示的に認める試みが必要ではないか、といった考えである。データ取得と利用できるまでの準備・管理が、データ量の増大や観測技術の向上などにもなっている年々複雑化・高度化する現在、データベースという知的財産を保有する重要性を評価してさらに利用を促進できるしくみが模索されているといえる。

(5) 日本の大気化学データベースの現状と将来

日本の大気化学コミュニティにおいては、前述したように相互利用可能なデータベースの有用性は認識されてきたものの、過去には、コミュニティの多くを包含することを目指すようなデータベースあるいは情報システムはなかった。しかしながら、50年前の国際地球観測年(IGY;

1957-1958年)を契機に整備されてきたWDC(World Data Center)システムを例にとるまでもなく、学術活動におけるデータベース整備の重要性はことあるごとに認識されてきた。ここにおいて大気化学もまた当然ながら例外とはいえない。

近年はとくにデータの生成、すなわち研究活動としての観測実験やシミュレーション計算などが高度化・複雑化するにつれて、データを生成して整備するために費やす予算、研究時間、計算機や実験装置などのハードウェア資源が莫大なものにもあることもあり、もはや、データ生成は本来目指すべき「研究」に比した副次的活動とはいえない状況も生まれてきている。ここにおいて、データベースにはその存在自体が学術価値を生み出す資源としての価値が生じ始めているケースもある。

このような状況において、データベースの存在自体が学術的な重要度を増し、その利用が当該研究領域のアクティビティおよび研究成果に本質的な影響をおよぼす可能性が認識されるにつれて、関連分野研究者のための共通的なコミュニティ・データデータベースの重要性の認識が高まってきた。日本の大気化学コミュニティとして、どのようなデータベースおよび関連活動が分野の活動向上に役立つか、を以下に考える。

まず最初の一步として、統合したデータベースなどが存在しない現在、まず各研究者やプロジェクトの保有するデータの「在りか」や中身を明確化すること、すなわち「データに関する情報」のデータベース(これを「メタデータベース」と呼ぶ)の整備が急がれる。データの所在だけでなく、責任者などの付帯情報(例えば観測データならば測定点の場所、期間、担当者連絡先、装置の情報、QA/QC情報など)が重要であり、データに関するコミュニティ内での認識共有や当該研究のプレゼンスを示すものとしても、メタデータベースの整備は重要である。

一方、メタデータだけでなく、データファイル自体のアーカイブの重要性はいうまでもない。一定の広がりをもった関連研究者間でのデータ流通をどのように行うか、という点では、NASA・NOAAなどがプロジェクトベースで共通フォーマットを定義してプロジェクトメンバー間の情報流通に成功している例をあげるまでもなく、多種多様な入手方法・データフォーマット・アクセス手段が存在する現状から、これらをできるだけ一様化する必要がある。これによって、たとえばモデリング研究者による観測データの活用を促進するなど、観測データの扱いが観測者中心のコミュニティから、非観測者や他分野研究者をふくんだデータ利用研究へと取扱いが拡張していくこと、またそれを推進することが、望ましい。

データフォーマットについては、たとえば、AMESフォーマット、ICARTTフォーマットといったものでは、ヘッダ情報は実は上述のメタデータ(責任者、データの空間情報、データ期間あるいは時間情報、担当者連絡先、装置や実験・データ生成に関する情報、QC/QA情報など)を整形することで構成できるものもあり、また数値データ部分も、地表面測定データであれば、時刻と物質存在量を1組とした数字ならびによって構成される共通的なフォーマットに整形する作業により形式の統一されたデータベースの実現が可能となる。

インベントリデータ、モデル出力データ、地表面測定以外の観測データ(気球、航空機、地上ないし衛星からのリモートセンシングデータなど)では、データに空間的な次元が必要であるため、

数値データの格納方式は検討を要する場合もあろう。気象はじめ地球科学分野では、こうした多様なデータ流通のためのデータフォーマットとして、GRIB、GrADS などの普及しているデータフォーマットがあるが、近年は新たに提案されて普及を始めている、機種依存性がなく自己記述的な（データの内容についての情報をデータファイル内にもつ）フォーマットである CDF (Common Data Format)、netCDF (Network Common Data Format)、HDF (Hierarchical Data Format)などが、可視化・解析ツールソフトウェアや、NASA、JAXA のような大規模データベースを保有する機関のデータ配付などで用いられ始めている。ただしこれらの自己記述型フォーマットはかならずしも広く普及しているわけではないので、取扱いに慣れるまでに心理的抵抗をもつ研究者も予想される。しかしながら、将来に予想される、大気中の物質、放射、力学、また海洋、固体地球、など地球科学としてより広く統合され研究活動やコミュニティ活動を目指していく過程では、こうした柔軟性と可能性の大きいデータ形式も一度は検討されてもよいのかもしれない。

以上のように整備されたメタデータベース・データベースは、国内外の大気化学コミュニティが利用できる形で、インターネット上の WWW サイトなどで容易に参照できるしくみも必要とされる。サイト運営については、データベース整備、サイト保守作業の負担をどのように継続させるかが大きな課題である。現業機関がサイト保守運営を行う体制がない大気化学分野では、関与している研究機関で行える範囲で行う、あるいは作業を分担しあう、などがデータベース構築・維持の第一歩として現実的であろう。また、メタデータベース自体の管理は、担当者の異動・退職などによる情報消失の危険性を避けるため、複数機関でミラーリング(定期的相互コピー)を行うなど工夫も重要である。

また、大気化学データベースのポータルサイトも重要な機能である。「ポータル」とは、port(港)から派生した言葉で、大きなオンライン・コンテンツへアクセスする入口、といった意味であるが、ここでは、当該 WWW サイト以外にある大気化学のオンラインデータへのアクセスのためのリンク集などをもつ WWW サイト、といったような意味合いを指す。データのオンライン公開は、コミュニティでの WWW サイトでなく、データ所有機関自身の WWW サイトで公開する場合などは、ポータルサイトからリンクを張ることで、ユーザがポータルサイトへ行きさえすれば、大気化学の国内データの各コンテンツへリンクをたどれるようなサイトとなることが理想的であろう。

なお、データフォーマットや格納方式、アクセス方式をあるていど統一化できた場合には、人手を介さない、自動的なデータプロットや簡易なデータ処理・解析も比較的容易になる。その場合、データベース WWW サイト上でのデータプロット機能、データ検索、などの機能も検討がよいと思われる。データの利用者から見れば、データベースの WWW サイトで、ただデータの付帯情報や数値データのサンプルを眺めるより、ユーザが試行的にデータプロットを WWW 上で行って目で確認してからダウンロードできる、などの利点がある。データ提供者によるサンプルプロットが多数提供されれば、まずはこの機能は満足されるが、フォーマットを整形するのであれば、サンプルプロットを作る手間を担当研究者が自分でかける必要はなくなる。将来的には、データ流通の基盤であるデータベースについては、データ処理や研究手法の効率化などの視点でも発展の可能性を検討してよいのではないだろうか。

4. 研究計画

4.1 アジアのエアロゾル研究の新たな展開

(1) アジア研究の位置づけ

アジアの大気環境は、アジアに位置する日本としては、もっとも重要な大気環境である。その現状の把握、その変動過程の解明、そして将来予測能力の獲得は、純粋な理学的な見地からも必要であるとともに、社会的使命でもある。一方において、アジアは、下記に述べるように世界的に見ても特異な領域であり、その観点から見ても、研究の価値は高い。

第一にアジアは人為的な排出源強度が世界的に見ても高く、さらに今後20年間は増加することが予想されている。実際に人工衛星観測などから得られている微小エアロゾルの光学的厚みも高く、春先の東シナ海での大気上端の直接放射強制力は -5 から -8Wm^{-2} にもなることが報告されている。これは、第四次 IPCC レポートに報告されている産業革命からの二酸化炭素など長寿命温室効果気体の放射強制力 2.6Wm^{-2} を十分に打ち消す大きさである。さらに数値モデル計算によると、エアロゾルの間接効果により雲粒の有効半径の減少も他の領域に比べて大きいことが指摘されている。このように東アジアは、エアロゾルのホットリージョンであり、その影響が世界のどの領域よりも強く出る可能性がある領域である。

第二にアジアはエアロゾルの多様性が大きい地域である。アジアは、急激な工業化により上記のとおり大量の人為起源の汚染物質が排出されているが、同時にゴビ・タクラマカン砂漠などからのダスト粒子や、バイオマス燃焼起源のエアロゾルなどが混在している。これらは場合によっては内部混合し、また鉛直方向に別々に分布することにより、その放射効果などをさらに増幅させたり減衰させたりしている。

第三にアジアは、アジアモンスーンという世界的に見ても顕著な大気循環の季節変化をもつ領域である。近年、アジアモンスーンの循環に経年的な変動がある可能性があることが報告されているが、一方において大気エアロゾルがモンスーン循環などの大気大循環に影響を及ぼしている可能性が数値モデル計算により指摘されている。アジアモンスーンなどの大気大循環の変化は、降水などを通じて社会生活に多大な影響を及ぼすため、世界の研究者が注目している。アジアは、世界の約60%の人が住み、またその人口を支えるための大気質の維持、食糧生産、水資源などの確保が必要とされている。

このようなアジアの大気環境変動の重要性から、現在、幾つかの国際的な研究の枠組みが作られている。まず国際的な IGAC の枠組みの中では、タスクとして認定されている、Mega-cities: Asia があり、ここではアジアのメガシティから排出される人為起源物質によるオゾン・エアロゾルへの影響と、その結果として生ずる気候や大気質への影響を研究する枠組みが作られている。このタスクは 2003-2007 で第一期の研究活動を終了し、2008 年度から第二期の活動に入っている。第二期の研究では、メガシティなどから排出された物質のアジアスケールでの大気質・気候影響の評価を目指したものである。

アジアでの研究のもうひとつの枠組みとしては、国連環境計画(UNEP)／IGBP の ABC-Asia (Atmospheric Brown Cloud - Asia)計画がある。ABC-Asiaでは大気中の物質とその放射・気候影響を扱うが、さらに第二期ABC-Asiaでは健康影響や食糧生産などへのインパクトも含む計画となっている。

アジアモンスーンの研究としては、WCRP(世界気候研究計画)／GEWEX(全球エネルギー・水循環観測計画)の MAHASRI (Monsoon Asian Hydro-Atmosphere Scientific Research and Prediction Initiative:モンスーンアジア水文気候研究計画)がある。GEWEXでは、近年、大気エアロゾルの大気循環への影響を重要課題として扱っている。

(2)これまでの研究

これまでの東アジアのエアロゾルの研究は、航空機を中心とした大型の観測キャンペーン研究、日本人を中心とした比較的小規模のキャンペーン観測、地上観測ネットワークによる研究、そして数値モデル計算研究により推し進められてきた。これらの研究ではまた、人工衛星データも活用されてきている。これらの研究により、アジアのエアロゾルの動態やその放射強制力の推定がなされてきた。一方において、エアロゾルによる領域的な気候変動への影響、すなわち大気の循環、雲量、降水、気温、放射量などの変動はグローバルモデルによる計算によりその評価が試みられている。

まず大型の観測キャンペーンとしては、2001年の春季に実施されたアメリカNASAのTRACE-P航空機観測[*Jacob et al., 2003*]と国際IGAC活動の一環として実施されたACE-Asia観測[*Huebert et al., 2003; Seinfeld et al., 2004*]があげられる。これらの観測では、大規模な航空機・船舶・地上観測により多くのデータを取得し、エアロゾルやその放射特性の時空間分布の実態解明[*Jordan et al., 2003; Anderson et al., 2003* など]、エアロゾルの太平洋への輸送過程・効率の解明[*Liu et al., 2003; Koike et al., 2003* など]、エアロゾルの放射影響、特に放射影響の中のダスト(黄砂などの土壌粒子)の役割評価[*Conant et al., 2003* など]などにおいて大きな研究成果をあげた。日本側ではこの観測にあわせてAPEX観測が実施され[*Nakajima et al., 2003*]、地上の放射観測ネットワークにより東アジア領域のエアロゾルの光学的な厚みや単一散乱アルベド(散乱および吸収全体に対する散乱の割合)が観測されるとともに、数値モデル計算も含めて東シナ海領域(韓国チェジュ島および奄美大島)などでの放射強制力の推定がなされた。この結果、東シナ海では高い濃度のエアロゾルにより大気上端での放射強制力が -5 から -8 W/m² もあり、さらに光吸収性のエアロゾルの存在により、地表面での放射強制力が -20 から -40 W/m² に達することが明らかとなった。また、多地点同時観測による西太平洋におけるブラックカーボン(BC)エアロゾルの動態[*Matsumoto et al., 2003; Uno et al., 2003*]、西太平洋上での有機エアロゾルの動態[*Mochida et al., 2003*]、ダスト粒子のライダーによる動態[*Shimizu et al., 2003*]などの研究が実施された。この他、東アジアでは、日本は積極的に参加していないがEAST-AIRE[*Li et al., 2007*]などの観測キャンペーンが実施されている。

日本が中心となって行なった比較的小規模のキャンペーン観測としては、2000-2004年に実施

された日中共同研究の ADEC プロジェクト[Mikami et al., 2006]がある。このプロジェクトでは黄砂の発生・飛来に関する総合的な観測と、黄砂の輸送数値モデルの開発[Tanaka et al., 2005]を実施した。また 2004 年の春には、JAXA/EORC と東京大学が中心となり日本の航空機を用いて PEACE-C 航空機観測が実施された。日本の都市からの輸送されてきた大気をラグランジュ的に観測することにより、BC エアロゾルが無機および有機エアロゾル成分により被覆される様子を初めて明らかにする[Moteki et al., 2007]などの成果があがっている。また地上観測では、IGAC/Mega-cities Asia の一環として東京大学が中心となり関東地方を対象として 2003-2004 年に実施した IMPACT 地上観測キャンペーンがある。ACE-Asia・TRACE-P・ADEC などのエアロゾル研究が、どちらかといえばエアロゾルの発生源・輸送過程・放射影響に重点をおいて実施されたのに対し、IMPACT では実時間型のエアロゾル計測装置により無機・有機エアロゾルの動態などの化学組成やその生成過程、エアロゾルの吸湿特性と雲凝結核特性との関係解明などに重点をおいた研究が実施された(図 4.1-1)[Miyakawa et al., 2007; Morino et al., 2006; Takegawa et al., 2006a; Kondo et al., 2006; Kuwata et al., 2007; Mochida et al., 2006; 2008]。この結果、二次有機エアロゾル、含酸素有機エアロゾル、および水溶性有機エアロゾルがほぼ同じ化学成分に対応していることなどの重要な成果があげられた[Kondo et al., 2007]。また IMPACT ではエアロゾルや前駆気体の発生源(東京都心)とその 50 km 下流(埼玉県騎西)の2箇所集中観測することにより、空気塊のラグランジュ的な変容過程を描き出すことに成功し[Takegawa et al., 2006b; Miyakawa et al., 2008]、このような2箇所での観測がエアロゾル研究に極めて有効であることを示した。

地上観測ネットワークによる研究では、UNEP/ABC-Asia 観測ネットワーク(図 4.1-2)がある[Ramanathan et al., 2007]。ABC-Asia では、エアロゾルそのものの測定と放射測定の両者の統合を目指すことから、2005 年までに、それまで奄美大島にあった放射関係の測定器を、エアロゾル測定が実施されていた沖縄の辺戸岬へと移設した。この後さらにエアロゾル測定器を充実させることにより、ABC-Asia の主観測所である、モルジブ島および韓国のチェジュ島に匹敵する装備をそろえるに至っている(3. 3章を参照)。ABC-Asia では 2005 年の春に集中観測キャンペーン EAREX-2005 を実施し[Nakajima et al., 2007]、人為的なエアロゾルやダスト粒子の動態を明らかにした[Miyazaki et al., 2007 など]。

数値モデル計算による研究は、これまで述べた各種の観測キャンペーンと連動するなどして実施されてきており、エアロゾルの時空間分布の解釈や放射強制力の推定などが実施されてきている[Takemura et al., 2003](3. 6章)。またエアロゾルの気候影響については、アジアだけに限定したものではないが、エアロゾルの雲の微物理への影響を通じた雲量、降水、そして水循環全体や気温への影響などが評価されてきている[Takemura et al., 2005]。世界的にもアジアの、特に光吸収性エアロゾルの気候影響が数値モデル計算により評価され始めている。中国やインドの BC エアロゾルの太陽放射吸収による大気加熱がここ数十年間で観測されている華北での降水減少と華南での降水量の増加をよく説明するとする研究[Menon et al., 2002, 図 4.1-3]や、大気海洋結合モデルにより 1930-2000 年に観測されている南アジアの太陽放射の減少や夏季アジアモンスーンに伴う降水の減少が BC エアロゾルの存在によりよく再現されるとする研究[Ramanathan et al.,

2005]や、インド周辺での BC エアロゾルやダスト粒子の大気加熱が、春から夏にかけてのアジアモンスーン循環に影響している可能性を指摘した研究[Lau and Kim, 2006]などがある。また数値モデルどおしの相互比較も国際的に実施されてきており、日本の研究者も参加してきている [Textor et al., 2006; Uno et al., 2006; Carmichael et al., 2008]

エアロゾルの雲への影響(間接効果)の証拠として、近年、衛星観測データを使った統計解析が盛んにおこなわれている[Rosenfeld, 2000; Kaufman et al., 2005]。日本においても、衛星センサー AVHRR と POLDAR を使用したエアロゾルと雲量との関係を調べた研究も行われてきている [Sekiguchi et al., 2003]。

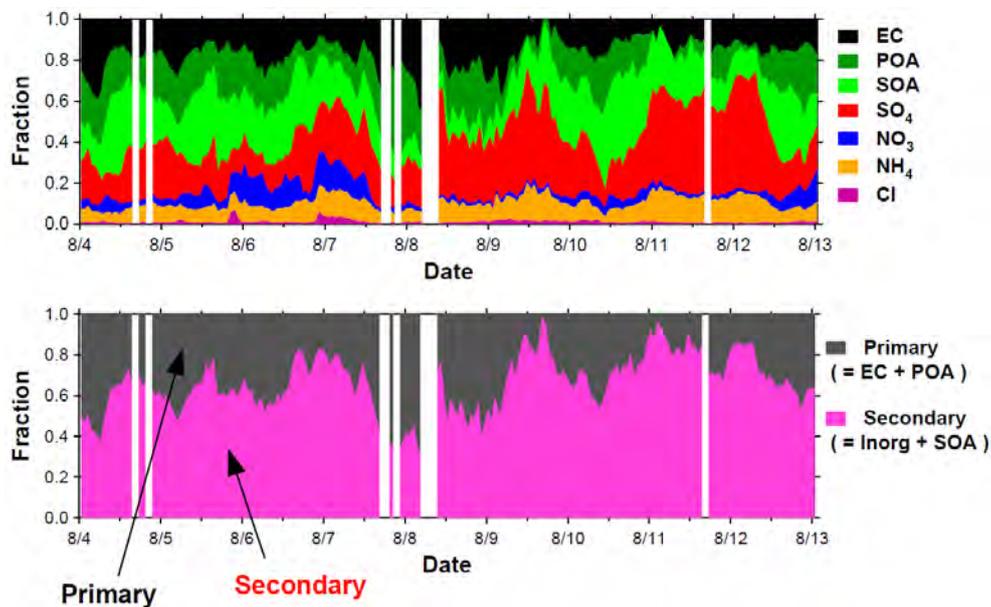


図 4.1-1 東京における微小エアロゾル(直径 1 ミクロン以下)の化学組成。2003 年の夏の結果 [Kondo, 2008]

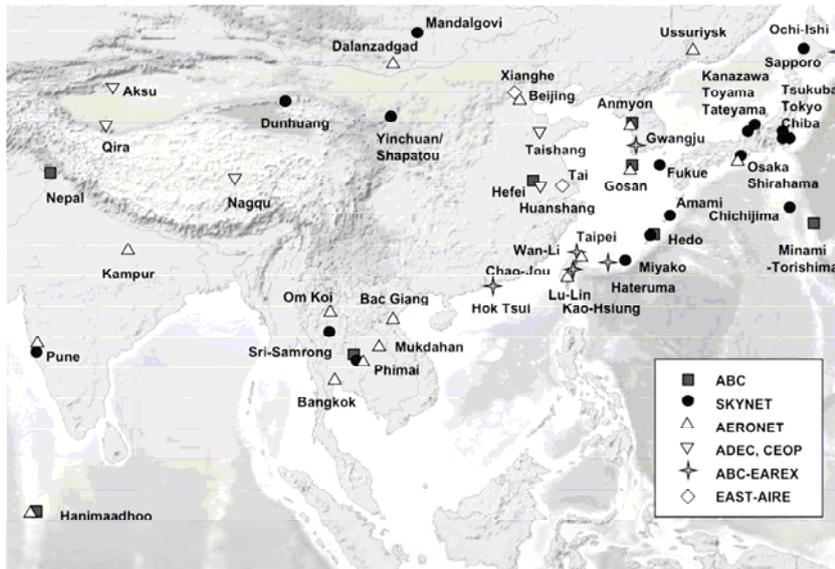


図 4.1-2. エアロゾル、放射、雲観測の観測拠点[Nakajima et al., 2007]。

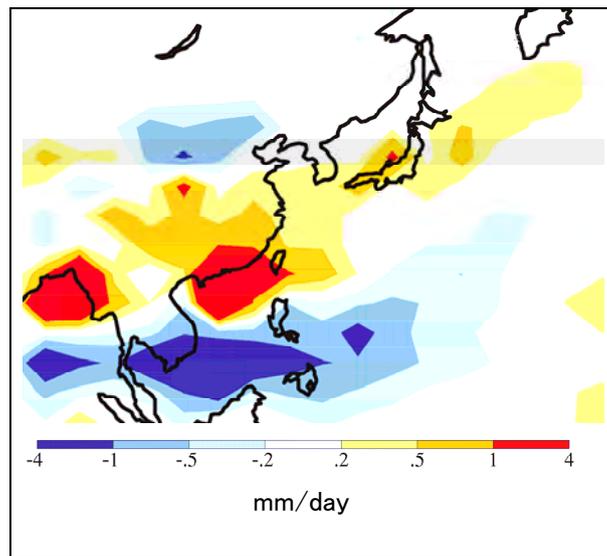


図 4.1-3 中国およびインドにおいてBCエアロゾルの太陽放射吸収による大気加熱効果を含めた場合の夏季における降水量の変化[Menon et al., 2002]。

(3) 今後の研究の展開

A>エアロゾル(化学組成、粒径、混合状態など)とその光学特性(消散係数、単一散乱アルベドなど)、そして鉛直積算の光学的物理量(光学的な厚みなど)の同時観測による、三者の統合的理解:

エアロゾルの放射影響は、その光消散係数(各高度での光学的厚み)、単一散乱アルベド、上方散乱比より決まる。これらの物理量はエアロゾルの大きさ、化学組成、混合状態、形態から決まる。しかし従来の研究では、エアロゾルの観測・研究とその放射効果が定量できる放射観測・研究が独立に実施されてきた。

辺戸岬観測所は、UNEP/ABC-Asia スーパーサイトである韓国の済州島の Gosan 観測所とともに、アジアのエアロゾル・放射のモニタリングステーションとして、きわめて重要なデータを取得している。今後、辺戸岬観測所の観測の維持とより一層の充実化が、必要である。このような規模の観測拠点を独立に設置することは容易ではないが、Gosan 観測所を補助する国内の観測拠点として、福江島観測所の維持も重要である。

UNEP/ABC-Asia では、アジア域でのエアロゾルと放射観測のネットワーク化を進めているが、このような国際的な枠組みと対応させながら、国内のみでなく、アジアでのエアロゾルと放射観測のセットでの連続観測態勢の構築が望まれる。すでに JAMSTEC を中心に展開されつつある、高山での空間代表制の高い地点での観測のさらなる充実も必要である。さらに、キャンペーンベースの観測においても、今後、両者の同時観測が必要である。このような観測により、アジアのエアロゾルの時空間分布と、その放射影響との統合的な理解を進める必要がある。

これらのエアロゾルとその光学・放射パラメータとの同時観測・研究は、地表面でのローカル量および鉛直積算量の2つにおいて実施されるべきである。第一に、ローカルな(地表などその場での)エアロゾルの物理化学パラメータ(濃度、化学組成、粒径分布、混合状態など)と、ローカルなエアロゾルの放射パラメータ(光消散係数、単一散乱アルベドなど)との同時観測においては、エアロゾル光学モデルを介した観測値どうしの整合性の検証が必要である。特にブラックカーボンの粒径分布や混合状態と単一散乱アルベドとの関係の把握が必要である。またアジアではダスト粒子が存在するため、微小粒子と、粗大粒子まで含んだ総合的な検証の両方が必要である。第二に、ライダー観測や航空機からの直接観測から得られる、エアロゾルの放射パラメータや物理化学パラメータの鉛直分布と、地上のサンフォトメータやスカイラジオメータから得られる鉛直積算のエアロゾルの光学的厚みや単一散乱アルベドの整合性の検証・放射モデルの検証・改良がある。大気中のエアロゾルの放射効果は、エアロゾルの吸湿特性により相対湿度に応じて大きく変化する。したがってエアロゾルの化学組成は、その複素屈折率と吸湿特性を同定できる必要がある。これらの量の同定において鍵となるのは微小エアロゾルの質量の20-50%を占める有機エアロゾル成分である。詳細な化学組成や生成過程は理解できなくとも、その質量、吸湿特性、界面活性特性などの物理化学特性の把握が必要である。

B> エアロゾルの時空間変動を決めている発生源、化学的変容、輸送、除去過程の理解:

広域的なエアロゾルの気候影響を定量化し、将来予測に関わる感度解析を実施するためには、各種大気成分の排出源強度の把握と、エアロゾル分布を決めている各種プロセスが表現された数値モデルが必要である。

Streets et al. [2003]によると、アジアのブラックカーボン、有機エアロゾル、ダスト粒子の発生量

の不確定性は、それぞれ、360, 450, 500%である。また有機エアロゾルの生成源(前駆気体)となる炭化水素の総量については、185%と推定されている。これらの排出推計をより正確なものとし、また急激な社会変化に遅れをとらぬ推計を維持するために、ボトムアップ的な推計と、トップダウン的な検証を有機的に実施し続ける必要がある。

輸送過程については特に境界層の大気を自由対流圏へと輸送させる温暖コンベヤーベルト(WCB, 寒冷前線の温暖側での暖気の上昇)や積雲対流活動での正味の大気物質の輸送量・輸送効率、この上昇過程における降水に伴う水溶性気体や雲凝結核特性をもつエアロゾルの除去の理解が必要である。

大気上端での放射強制力は温室効果気体と散乱性エアロゾルの直接効果と間接効果により主として決まる一方、地表面での放射強制力は BC などの光吸収性エアロゾルの影響が大きい。この BC の光吸収効率や大気中の寿命は BC の粒径や混合状態に依存している。従って、BC の総量とともに、粒径分布や混合状態の把握が必要である。また上記のような大気の上昇輸送過程における除去過程の理解とその数値モデル計算での表現手法の開発が必要である。

有機エアロゾルは微小エアロゾル質量の約 20-50%程度をしめているにもかかわらずその組成や生成過程の理解が大きく遅れている。その動態の把握と共に、二次有機エアロゾル生成過程におけるエアロゾル相や液相での反応の役割などの解明が必要である。また吸湿・雲凝結核特性、あるいは光吸収特性や新粒子生成イベントでの役割など、気候影響に関係する特性の把握が必要である。また、そもそも気候影響理解のためにどこまでの理解が必要なのかという研究戦略を含めた研究が必要である(4.2 章)。

新粒子生成(new particle formation) イベントは、さまざまな大気条件下で起きていることが観測から明らかとなりつつある。しかしながらそのメカニズムの理解は遅れており、数値モデル計算での表現に大きな問題がある。有機エアロゾルの役割を含めた研究の進展が必要とされている。

C> エアロゾルの雲物理・雲のライフサイクルへの影響の理解:

エアロゾルの気候影響評価の最も大きな不確定性のひとつは、エアロゾルの雲微物理への影響と、その影響を通じた雲のライフサイクルや雲の集団としての振る舞いへの影響評価である。このプロセスのグローバルモデルにおける表現(パラメタリゼーション)の差異が、エアロゾルの間接効果推定に大きなばらつきを生んでいる。従って、複雑かつ非線形なプロセスを経験則ではなく物理化学法則を基盤にしていかに表現する(パラメタライズする)ことが、必要である。エアロゾルそのものの物理化学特性についてみると、雲凝結核特性における有機エアロゾルの影響の解明、また BC エアロゾルや有機エアロゾルも含めたエアロゾルの氷晶核特性の体系的研究が必要である。上昇する空気塊中でのエアロゾルの雲粒への活性化については、巨大エアロゾルや有機成分の存在による動力学的な活性化制限(kinetic limitation) 効果の理解とそのパラメタリゼーション必要である。またこのようにして決まった粒径分布をもつ雲粒からの雨水への変換(オートコンバージョン)は第 2 種間接効果の鍵であり、衝突併合過程に関する詳細なモデル研究に基づくパラメタリゼーションが必要である。さらにこれらの雲微物理の雲のライフサイクルや雲の集団とし

での振る舞いへの影響についても、詳細な数値モデル研究が必要である。エアロゾルの物理化学特性と、雲物理・雲力学という異なった要素が関連しているため、両者の効果を分離するような統合的な航空機観測による実証を行なう必要がある。

D> エアロゾルの直接・間接効果と大気の大循環への影響の理解:

アジアにおける直接効果の影響評価の鍵はBCエアロゾルであるが、その放射効果は雲層の上か下かにより大きく変わるため、エアロゾルと共に雲の3次元分布も数値モデルにより正しくシミュレートする必要がある。また間接効果については、大規模凝結による層状雲などの水雲に対しては、エアロゾルから雲粒生成や雲粒から雨水へのオートコンバージョンなどのパラメタリゼーションが重要である。氷晶を生成する深い対流や上部対流圏での巻雲(cirrus cloud)についてはエアロゾルの影響やその放射強制力の大きさに大きな不確定性があるため、素過程の理解からの積み上げが必要である。エアロゾルの気候影響評価においては、海洋混合層との結合により、大きな熱容量と応答時定数をもつ海洋の効果を含めた評価が今後より一層重要となる。また気候感度においても雲過程は最も大きな不確定要素であるため、より高い空間分解能での数値モデル計算が望まれる。これらのモデルにより、さまざまなフィードバック過程を含めた気候影響評価を進めていく必要がある。

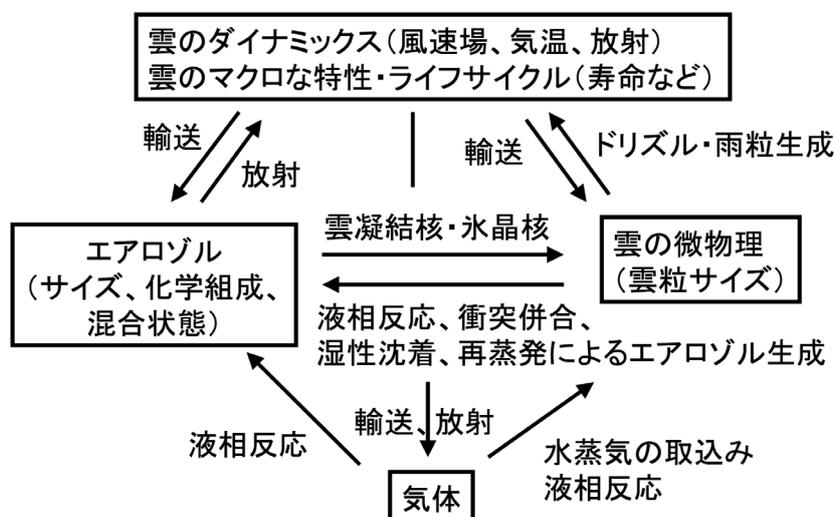


図 4.1-4 エアロゾルの雲物理・雲のライフサイクルへの影響。[Feingold, private communication, 2005 を改変]。

Anderson, T. L., S. J. Masonis, D. S. Covert, N. C. Ahlquist, S. G. Howell, A. D. Clarke, and C. S. McNaughton, Variability of aerosol optical properties derived from in situ aircraft measurements during ACE-Asia, *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8647,

- doi:10.1029/2002JD003247, 2003.
- Carmichael, G. R., et al., MICS-Asia II: The model intercomparison study for Asia Phase II methodology and overview of findings, *Atmos. Env.*, **42**, 3468–3490, 2008
- Conant, W. C., J. H. Seinfeld, J. Wang, G. R. Carmichael, Y. Tang, I. Uno, P. J. Flatau, K. M. Markowicz, and P. K. Quinn, A model for the radiative forcing during ACE-Asia derived from CIRPAS Twin Otter and R/V Ronald H. Brown data and comparison with observations, *J. Geophys. Res.*, **108**(D23), 8661, doi:10.1029/2002JD003260, 2003.
- Jacob, D. J., J. H. Crawford, M. M. Kleb, V. S. Connors, R. J. Bendura, J. L. Raper, G. W. Sachse, J. C. Gille, L. Emmons, and C. L. Heald, Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) aircraft mission: Design, execution, and first results, *J. Geophys. Res.*, **108**(D21), 9000, doi:10.1029/2002JD003276, 2003.
- Jordan, C. E., et al., Chemical and physical properties of bulk aerosols within four sectors observed during TRACE-P, *J. Geophys. Res.*, **108**(D21), 8813, doi:10.1029/2002JD003337, 2003.
- Huebert, B. J., et al., An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, *J. Geophys. Res.*, **108**(D23), 8633, doi:10.1029/2003JD003550, 2003.
- Kaufman, Y. J., et al., The effect of smoke, dust, and pollution aerosol on shallow cloud development over the Atlantic Ocean, *PNAS*, **102**, 11207 – 11212, 2005.
- Koike, M., Y. Kondo, K. Kita, N. Takegawa, Y. Masui, Y. Miyazaki, M. W. Ko, A. J. Weinheimer, F. Flocke, R. J. Weber, D. C. Thornton, G. W. Sachse, S. A. Vay, D. R. Blake, D. G. Streets, F. L. Eisele, S. T. Sandholm, H. B. Singh, and R. W. Talbot, Export of anthropogenic reactive nitrogen and sulfur compounds from the East Asia region in spring, *J. Geophys. Res.*, **108**(D20), 8789, doi:10.1029/2002JD003284, 2003.
- Kondo, Y., Y. Komazaki, Y. Miyazaki, N. Moteki, N. Takegawa, M. Nogami, S. Deguchi, M. Fukuda, T. Miyakawa, Y. Morino, D. Kodama, and M. Koike, Temporal variations of elemental carbon in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, **111**, D12205, doi:10.1029/2005JD006257, 2006.
- Kondo, Y., Studies on aerosol and ozone in Tokyo, *IGAC Newsletter*, **38**, 30 – 38, 2008.
- Kuwata, M., et al., Cloud condensation nuclei (CCN) activity of non-volatile particles in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, **112**, D11207, doi:10.1029/2006JD007758, 2007.
- Lau, K. -M., and K. -M. Kim, Observational relationship between aerosol and Asian monsoon rainfall, and circulation, *Geophys. Res. Lett.*, **33**, L21810, doi:10.1029/2006GL027546, 2006
- Li, Z., et al., Preface to special section on East Asian Studies of Tropospheric Aerosols: An International Regional Experiment (EAST-AIRE), *J. Geophys. Res.*, **112**, D22S00,

doi:10.1029/2007JD008853, 2007

- Liu, H., D. J. Jacob, I. Bey, R. M. Yantosca, B. N. Duncan, and G. W. Sachse, Transport pathways for Asian pollution outflow over the Pacific: Interannual and seasonal variations, *J. Geophys. Res.*, *108*(D20), D8786, doi:10.1029/2002JD003102, 2003.
- Matsumoto, K., et al., Simultaneous measurements of particulate elemental carbon on the ground observation network over the western North Pacific during the ACE-Asia campaign, *J. Geophys. Res.*, *108*(D23), 8635, doi:10.1029/2002JD002744, 2003.
- Menon, S., J. Hansen, L. Mazaranko, Y. Luo, Climate effects of black carbon aerosols in China and India, *Science*, *297*, 2250–2253, 2002.
- Mikami, M., et al., Aeolian Dust Experiment on Climate Impact: An Overview of Japan-Sino Joint Project ADEC, *Global and Planetary Change*, *52*, 142–172, 2006.
- Miyakawa, T., et al., Removal of sulfur dioxide and formation of sulfate aerosol in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, *112*, D13209, doi:10.1029/2006JD7896, 2007.
- Miyakawa, T., et al., Photochemical evolution of submicron aerosol chemical composition in the Tokyo megacity region in summer, *J. Geophys. Res.*, in press.
- Miyazaki, Y., Y. Kondo, S. Han, M. Koike, D. Komada, H. Tanimoto, and H. Matsueda, Chemical characteristics of water-soluble organic carbon in the Asian outflow, *J. Geophys. Res.*, *112*, D22S30, doi:10.1029/2007JD009116, 2007.
- Mochida, M., et al., Spatial distributions of oxygenated organic compounds (dicarboxylic acids, fatty acids, and levoglucosan) in marine aerosols over the western Pacific and off the coast of East Asia: Continental outflow of organic aerosols during the ACE-Asia campaign, *J. Geophys. Res.*, *108*(D23), 8638, doi:10.1029/2002JD003249, 2003.
- Mochida, M., et al., Relationship between hygroscopicity and cloud condensation nuclei activity for urban aerosols in Tokyo, *J. Geophys. Res.*, *111*, D23204, doi:10.1029/2005JD006980, 2006.
- Mochida, M., et al., Significant alteration in the hygroscopic properties of urban aerosol particles by the secondary formation of organics, *Geophys. Res. Lett.*, *35*, L02804, doi:10.1029/2007GL31310, 2008.
- Morino, Y., et al. (2006), Partitioning of HNO₃ and particulate nitrate over Tokyo: Effect of vertical mixing, *J. Geophys. Res.*, *111*, D15215, doi:10.1029/2005JD006887.
- Moteki, N., Y. Kondo, Y. Miyazaki, N. Takegawa, T. Miyakawa, Y. Komazaki, G. Kurata, T. Shirai, D. R. Blake, and M. Koike, Evolution of mixing state of black carbon particles: Aircraft measurements over the western Pacific in March 2004, *Geophys. Res. Lett.*, *34*, L11803, doi:10.1029/2006GL028943, 2007
- Nakajima, T., et al., Significance of direct and indirect radiative forcings of aerosols in the

- East China Sea region, *J. Geophys. Res.*, *108*(D23), 8658, doi:10.1029/2002JD003261, 2003.
- Nakajima, T., et al., Overview of the Atmospheric Brown Cloud East Asian Regional Experiment 2005 and a study of the aerosol direct radiative forcing in east Asia, *J. Geophys. Res.*, *112*, D24S91, doi:10.1029/2007JD009009, 2007.
- Ramanathan, V., Atmospheric brown clouds: Impacts on South Asian climate and hydrological cycle, *PNAS*, *102*, 5326 – 5333, 2005.
- Ramanathan, V., et al., Atmospheric brown clouds: Hemispherical and regional variations in long-range transport, absorption, and radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, *112*, D22S21, doi:10.1029/2006JD008124, 2007.
- Rosenfeld, D., Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, *Science*, *287*, 1793 – 1796, 2000.
- Seinfeld, J. H., et al., ACE-Asia: Regional climatic and atmospheric chemical effects of Asian dust and pollution, *BAMS*, *85*, 367–380, 2004.
- Sekiguchi, M., et al., A study of the direct and indirect effects of aerosols using global satellite data sets of aerosol and cloud parameters, *J. Geophys. Res.*, *108*(D22), 4699, doi:10.1029/2002JD003359, 2003.
- Shimizu, A., et al., Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia, *J. Geophys. Res.*, *109*, D19S17, doi:10.1029/2002JD003253, 2003.
- Takegawa, N., et al., Seasonal and diurnal variations of submicron organic aerosol in Tokyo observed using the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer, *J. Geophys. Res.*, *111*, D12206, doi:10.1029/2005JD006515, 2006a.
- Takegawa, N., et al., Evolution of submicron organic aerosol in polluted air exported from Tokyo, *Geophys. Res., Lett.*, *33*, L15814, doi:10.1029/2006GL025815, 2006b.
- Takemura, T. et al., Aerosol distributions and radiative forcing over the Asian-Pacific region simulated by Spectral Radiative-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTERS), *J. Geophys. Res.*, *108* (D23), D8659, doi:10.1029/2002JD003210, 2003.
- Takemura, T. et al., Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model, *J. Geophys. Res.*, *110*, D02202, doi:10.1029/2004JD005092, 2005.
- Tanaka, T. Y., and M. Chiba, Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR, *J. Met. Soc. Japan*, *83A*, 255–278, 2005.
- Textor, C., et al., Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 1777–1813, 2006.
- Uno et al., Analysis of surface black carbon distributions during ACE-Asia using a

regional-scale aerosol model, *J. Geophys. Res.*, *108*(D23), 8636,
doi:10.1029/2002JD003252, 2003.

Uno et al., Dust model intercomparison (DMIP) study over Asia: Overview, *J. Geophys. Res.*, *111*,
D12213, doi:10.1029/2005JD006575, 2006.

4. 2. 化学気候モデル研究の新たな展開

(1) はじめに

大気中のエアロゾル(浮遊微粒子)や人為起源の気体の一部(光化学オゾン(O_3)、窒素酸化物(NO_x)、一酸化炭素(CO)等)は、大気環境悪化や健康被害をもたらすだけではなく、気候変動因子の1つと考えられている。気象学・環境学・医学等の観点から、エアロゾルやオゾン、 NO_x 、CO等の広域的な動態を把握することは大変重要であるため、観測網を展開したり人工衛星搭載センサによるリモートセンシングを用いたりすることにより、それらの特性や分布に関するデータが蓄積され、解析が行われている。しかし、時空間的に連続的な分布の把握・予測、および観測からは得られないパラメータの見積もりなどを行なう場合には、モデリング研究によるシミュレーションが有効である。例えば、「放射強制力」という気候変動を定量的に表す重要な指標があるが、気候変動に関する政府間パネル(IPCC)の報告書(第4次評価報告書(IPCC, 2007)など)では、エアロゾルおよびオゾンの放射強制力の評価を主にモデルにより行っている。人為起源物質による全球的な放射強制力を観測のみから評価することは、困難であるためである。

本節では、これまでに日本で開発が進められ、世界的に認められている全球エアロゾル気候モデル SPRINTARS (Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species)と全球化学気候モデル CHASER (CHemical AGCM for Study of atmospheric Environment and Radiative forcing)を紹介し、IPCCにおいて気候変動評価を大きく左右すると位置づけられているエアロゾルの気候影響評価や、大気化学モデルによる化学・気候モデリング研究に関して、これまでの研究を振り返る。それを踏まえた上で、エアロゾル・化学気候モデルを用いた研究に関する今後の課題・展望を述べる。

(2) SPRINTARS と CHASER の概要

SPRINTARS (Takemura et al., 2000, 2002a, 2005)は、東京大学気候システム研究センター(CCSR)/国立環境研究所(NIES)/地球環境フロンティア研究センター(FRCGC)共有の全球大気海洋結合モデル MIROC (K-1 Model Developers, 2004)をベースとしている全球3次元エアロゾル気候モデルである。標準的な水平分解能は T42(約2.8度×約2.8度)もしくは T106(約1.1度×約1.1度)、鉛直分解能は20層もしくは56層である。扱っている物質は、対流圏主要エアロゾルである土壌・海塩・黒色炭素(すす)・有機物・硫酸塩の他、硫酸塩エアロゾルの前駆物質気体である二酸化硫黄(SO_2)と硫化ジメチル(DMS)である。エアロゾル輸送過程は、発生・移流・拡散・化学反応・除去に大別される。発生過程では、モデル内部のパラメータを用いて発生させる物質(土壌エアロゾル・海塩エアロゾル等)と排出量データベースを用いて与えられる物質(黒色炭素・ SO_2 等)とがある。気候に対するエアロゾルの効果として、直接効果・準直接効果・間接効果があると言われている。直接効果とは、エアロゾルが太陽放射や赤外放射を散乱・吸収することにより大気のエネルギー収支に変化をもたらす、気候変動を引き起こすことである。準直接効果は、放射を吸収するエアロゾル(黒色炭素・土壌エアロゾル等)により大気が加熱され、大気の安定度が

変化することや、それに伴い雲生成が変化することにより気候変動を引き起こすことである。また、凝結核や氷晶核の役割をするエアロゾルが存在しないと、雲は生成されない。したがって、エアロゾルが増減することにより雲の性質が変化することになり、これが間接効果と呼ばれている。これらエアロゾルの気候に対する影響が、SPRINTARS には含まれている。

CHASER (Sudo et al., 2002a, 2002b)も、MIROC をベースとした全球 3 次元化学モデルである。標準的な水平分解能は T42、鉛直分解能は 32 層である。対流圏化学版では 53 の化学種を扱い、152 の化学反応を考慮し、オゾン、メタン(CH₄)、CO、NO_x、NMVOCs、および硫酸塩・硝酸塩エアロゾルのシミュレーションを行なう。モデル内では、大気中の光化学反応・人為および自然起源気体放出過程・地表面および降水による沈着過程等の詳細な化学過程が計算される。CHASER により計算されるオゾン(O₃)や前駆気体(NO_x, CO, 炭化水素類 VOCs 等)および重要関連気体の分布は、人工衛星や航空機を利用した各種観測データと定量的にも良い一致を見せており、対流圏オゾン化学のシミュレーション能力としては世界的にも最先端をいくものである。CHASER モデルは対流圏オゾン化学を主眼として開発されたものであるが、現在は成層圏オゾン化学のシミュレーションも同時に行なえるよう、開発・改良が継続されており、気候と成層圏・対流圏化学の相互作用の研究を目指している。さらに、エアロゾルモデル SPRINTARS と結合し、大気化学・エアロゾルの結合シミュレーションが行なえるようになってきており、地球環境フロンティアが中心となって実施している地球システムモデリングの一部として研究・開発が進められている(図 4.2-1)。

(3) モデルによるエアロゾルの分布の再現および気候影響の評価

モデル内のエアロゾル輸送過程では、質量濃度もしくは混合比をベースとして計算が行われているため、「輸送」モデルとしての目的はエアロゾル濃度を適切に表現することである。しかし、「気候」モデルとして活用するためには、エアロゾルと大気放射との関係が重要となってくるため、質量濃度よりも光学特性を検証することがより直接的なアプローチとなる。また、人工衛星もしくは地上からの広域的なエアロゾル光学特性分布との比較を行うことによりモデルの妥当性を評価する場合にも、シミュレーションによるエアロゾル光学特性分布を導出することが必要となる。図 4.2-2 には、SPRINTARS によるエアロゾル光学的厚さ・オンゲストローム指数・1 次散乱アルベドの年平均分布を示す。光学的厚さとは、大気放射のある波長(ここでは太陽光の領域である波長 0.55 ミクロン)における「光」から見た該当物質の大気中の積算値であり、エネルギーが 1/e に減衰する場合に光学的厚さは 1 となる。オンゲストローム指数は、ある 2 波長間の光学的厚さの対数の傾きであり、エアロゾルの粒径の指標となる。1 次散乱アルベドは、消散(散乱+吸収)に対する散乱の比である。北半球中緯度の都市域では、人為起源の炭素性・硫酸塩エアロゾルにより光学的厚さが大きく、また、大きいオンゲストローム指数により人為起源の特徴である小粒子が卓越していることがシミュレートされている。さらに、黒色炭素(すす)の排出が多いアジア域では 1 次散乱アルベドが小さいことを示している。また、森林火災・焼き畑地域であるアフリカ中南部・南アメリカ・東南アジアでもオンゲストローム指数は大きく、1 次散乱アルベドは小さい。一方、土壌エアロゾルが多い砂漠域や海塩エアロゾルが多い海上ではオンゲストローム指数は小さくなっている。

一般的に海上では、海塩や硫酸塩といった放射吸収をほとんどしないエアロゾルが支配的であるために、1次散乱アルベドは海陸コントラストが顕著である。光学的厚さ・オンゲストローム指数・1次散乱アルベドのこれらの特徴は、地上や衛星からのリモートセンシングによる解析結果と類似していることが確認されている(Takemura et al., 2002a)。SPRINTARS は、時空間的により限定された現象も再現可能であることが確認されている。例えば、東アジア域における黄砂現象や人為起源エアロゾルの長距離輸送が詳細に再現されている(Takemura et al., 2002b, 2003)。

図 4.2-3 は、産業革命以前を基準に取った場合の、現在におけるエアロゾルの直接・間接効果放射強制力である。すなわち、人為起源エアロゾルによる放射強制力と考えられる。放射強制力とは、該当する気候強制因子による大気放射収支の変化であり、重要な気候変動の指標である。IPCC での定義に則り、対流圏界面での計算結果を示している。直接効果は、北半球中緯度の都市域で工業・生活燃料起源、アフリカ中南部や南アメリカで森林火災・焼き畑起源の硫酸塩エアロゾルや有機物エアロゾルにより、負の放射強制力が -1 W m^{-2} を超える地域が広範囲に渡っている。これらの起源では同時に放射吸収特性を持つ黒色炭素も排出されているが、その効果は、対流圏界面における放射強制力に関しては硫酸塩エアロゾルや有機物に打ち消されている。一方、それらの流出域では、正の強制力を持つ地域が多くなっており、特に北太平洋・アフリカ南部沖・ペルー沖といった低層雲が広がる地域で顕著である。これは、低層雲により多重散乱された太陽放射が都市域や森林火災地域から流出した黒色炭素により吸収されるためであり、雲の高度がエアロゾルの高度と同程度か低い場合に、この現象が起こる(Takemura et al., 2002a)。したがって、直接効果を精度良く評価するには、雲の3次元分布も正しくシミュレートする必要があることが分かる。間接効果には、大別して、雲水量を固定して考えた場合、エアロゾル数の増減により雲粒径が増減し、雲アルベドが変化して大気放射収支が変調する第1種間接効果と、雲粒径の増減に伴い雲から降水への成長過程速度に変化が生じ、降水効率や雲寿命が変調する第2種間接効果とがある。図は第1種・第2種間接効果合計の結果を示しているが、全球的に負の強制力を持つ領域が大部分を占める。特に、人為起源エアロゾルの影響が強いアジア・ユーラシア・南北アメリカ・アフリカ中南部で負の強制力が強いことを示している。対流圏界面での人為起源エアロゾルの直接・間接効果放射強制力の全球平均値は、それぞれ -0.1 , -0.9 W m^{-2} と見積もられている。

SPRINTARS によるエアロゾル放射強制力の評価は、IPCC 第4次評価報告書(IPCC, 2007)に引用された。また、CHASER による対流圏オゾンの放射強制力の評価も同報告書に引用された。

(4) モデルによる全球オゾン変動とその気候影響の評価

CHASER によるオゾンおよび関連化学種のシミュレーションについては、地上、ゾンデ、航空機、衛星による各種観測値を用い、詳細に評価されている(Sudo et al., 2002b)。これらの化学種が持つ直接的な気候影響としては、特にオゾンの放射強制力が重要であり、産業革命以前から現在までの全球的なオゾン分布変動とともにその評価が行なわれている。図 4.2-4 は CHASER によって計算された産業革命以前(1850年)から現在(2000年)までの全球オゾン分布の変化である。汚

染起源の前駆気体の増加により中上部対流圏および対流圏界面領域で顕著にオゾンが増加したことが分かる。さらに、ハロゲン化学種(フロンなど)に起因する成層圏オゾン破壊も考慮すると、成層圏で著しくオゾンが減少する様子が見られるだけでなく、このオゾン減少により対流圏へのオゾン流入量も減少し、対流圏でのオゾン増加が抑制されることが計算されている。このような20世紀中の複合的な全球オゾン変動の計算は、オゾンゾンデによる観測データと比較され、概ね整合的であることが確認されている。図 4.2-5 は対流圏オゾン増加(成層圏オゾン減少の影響は含まず)による放射強制力分布を示す。北半球夏季では、ユーラシア大陸中央部や中米付近に顕著な強制力($>1.5 \text{ W m}^{-2}$)が計算されている。これは、オゾン増加の水平分布だけでなく、雲の分布などに起因する長波・短波放射の水平分布も反映したものであることが判明している。全球平均の強制力としては、 4.8 W m^{-2} と計算され、このうち、長波放射によるものが 4.0 W m^{-2} 、短波放射が 0.8 W m^{-2} である。このような放射強制力計算は、IPCC-AR4 (IPCC, 2007)に関連するモデル間相互比較プロジェクト(ACCENT-MIP)でも行なわれ、各モデルによる放射強制力の平均や偏差が詳しく議論された(Gauss et al., 2006; IPCC, 2007)。

(5) エアロゾル・化学気候モデルの今後の課題および展望

CHASERとSPRINTARSの結合は、前述の通り、フレームワークは完成している。これは文部科学省新世紀重点研究創生プラン「人・自然・地球共生プロジェクト」第2課題の下に行なわれ、現在は21世紀気候変動予測革新プログラムの「地球システム統合モデルによる長期気候変動予測実験」に引き継がれている。この結合モデルを用いることにより、例えば、硫酸塩エアロゾル生成に必要な過酸化水素(H_2O_2)・水酸化ラジカル(OH)・および O_3 との相互依存性が陽に計算可能となる。さらに、CHASER-SPRINTARS結合モデルは、炭素循環モデル等も含まれる、いわゆる「地球システムモデル」にも組み込まれており、今後は地球システムモデルを用いた統合的なシミュレーションによる研究という方向性が具体化していくものと思われる。

国際的な動向としては、Atmospheric Chemistry and Climate (AC&C)の活動が重要となってきている。これは、IGBP/IGAC および WCRP/SPARC の連携プロジェクトであり、これまでに活動が進展している Aerosol Model Intercomparison Project (AeroCom), Chemistry-Climate Model Validation Activity (CCM-Val), TropoChem, Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution (TF HTAP)等の研究グループを取り込みながら、IPCC 第5次評価報告書(AR5)への貢献を目指している。AC&Cでは、化学種およびエアロゾルに関する過去20~30年の再現、鉛直分布の検証、雲の化学、将来予測や、気候との相互作用の解明といった活動を行っていくことになっている。

2008年下半期には、IPCC AR5 へ向けた次期排出量予測シナリオが公表予定となっている。このシナリオに沿って気候変動の将来予測実験が行われることになるが、各気候強制因子の気候変動に対する寄与を明確にする上で、放射強制力の経年変化を見積もることが重要である。産業革命から現在にかけての放射強制力の変化は、図 4.2-6 のように見積もられており(Takemura et al., 2006)、この図はIPCC AR4にも掲載されている。図の太線は、温室効果気体・オゾン・エアロゾ

ル合計の放射強制力を示している。全球平均地表気温は、20 世紀前半と後半に上昇した一方、20 世紀中盤には変化なし若しくはわずかに下降したことが知られている。地表気温が上昇している時期には、合計放射強制力は対流圏界面で主に温室効果気体により上昇し、地表では大きな変化が見られない。一方、20 世紀中盤には、合計放射強制力は対流圏界面で大きな変化がなく、地表では主にエアロゾル直接・間接効果により下降していることが示されている。これらのことから、放射強制力の変化量は気温変化と密接な関係があることが示唆される。主要気候強制因子全ての放射強制力の産業革命以降の経年変化を対流圏界面だけでなく地表でも示したことは、人為起源による気候変動を考察する上で非常に有用であると考えられる。このような検証を、将来予測に関しても行う必要がある。

エアロゾル気候モデルおよび化学モデルは、最近約 10 年間で著しく高度化してきており、その気候影響評価の不確実性が小さくなっていることが期待される。しかし一方で、モデリングによる研究が多くのグループでなされるようになり、評価が分散する傾向にあることも否めない。モデルによるシミュレーションの不確実性を小さくするために、適切な排出量の推定値データベースの構築をさらに進めることはもちろんのこと、モデルを検証するという側面から、以下のような事項が観測に求められる。

- モデルを用いて化学種やエアロゾルの「気候」に対する影響を研究する場合には、基本的なパラメータのみでも構わないので、空間代表性の高い長期間の観測データが非常に有用である
- 大気汚染の研究をする場合やプロセス研究をする場合には、長期間の観測データと短期間でも詳細な観測データの両方が必要である
- 能動センサによるエアロゾル・雲の鉛直分布観測に関して、空間代表性の高い長期間のデータが気候研究・大気汚染研究両者に重要である

特に、エアロゾルモデルの今後の課題としては、以下の事項が挙げられる。

- エアロゾル気候影響シミュレーションのより詳細な解析
本章でも示したように、エアロゾルが気象場に与える影響を具体的に解析するためのシミュレーションに関する研究は行われてきている(例えば Takemura et al. (2007))。しかし、エアロゾルによる影響として様々な効果が挙げられていることもあり、依然として解析は不十分である。
- エアロゾルおよび雲の鉛直分布観測との比較
航空機観測による雲・エアロゾルの鉛直分布の測定はこれまでに数多く行われてきた。また、近年ではレーダやライダーを用いたこれらの鉛直分布の観測が地上や船舶から行うことが可能となり、各地域のデータが急速に蓄積され、エアロゾルモデルとの比較も断片的ではあるが行われている。さらに、人工衛星搭載の能動センサにより広域的な 3 次元分布をとらえる国際プロジェクトが複数あり、モデルの精度向上に資することが期待される。特に、モデルによる雲・エアロゾル相互作用の解明においては、雲とエアロゾルの鉛直方向の分布を同時に如何に精度良く行えるかが大きなポイントである。
- 雲解像モデルや bin モデルとの融合
計算機リソースの問題等から、雲解像モデルや bin モデルにエアロゾル輸送過程までも導入す

ることは現状では難しく、特に全球モデルでは非常に困難である。しかし、将来的には、雲・エアロゾル相互作用を比較的陽に表現できるこれらのモデルを用いて、エアロゾルの統合的なシミュレーションが行われ、エアロゾル気候影響が解明されていくことが期待される。実際に、全球雲解像モデル NICAM への SPRINTARS の導入は、コーディングのレベルではすでに終了しており、今後シミュレーション結果の解析に移ることになる。

- 氷晶核を考慮したパラメタリゼーションの導入

現在のほとんどの気象・気候モデルでは、エアロゾルの氷晶核としての機能を考慮していない氷雲のパラメタリゼーションが行われている。氷雲の微物理プロセス自体に解明されていない部分が多いが、氷雲量や氷晶粒径が氷晶核の数や化学的特性に依存していることが観測的事実から言われているため、可能な限り適切にこれらを表現して、気候変動シミュレーションに活用できるようなパラメタリゼーションの導入は必要であろう。

- データ同化手法を用いたモデルの精度向上及びエアロゾル・化学種排出量の推定

エアロゾルおよび化学種の観測をモデルで利用する従来の方法は、結果を比較してモデル自体を改良することであった。しかし、データ同化手法を用いて観測値をより直接的にモデルへ入力することは、高精度を求められる短・中期的(数日～数年)なシミュレーションや予報シミュレーションには非常に有効であろう。また、エアロゾル・化学モデルで不確定性の最も高い要素の1つが、入力する排出量データであるが、これもデータ同化手法により導出する研究が行われつつある。

- 化学・気候相互作用の定量的解明

大気化学・気候相互作用としては、将来の温暖化による、水蒸気分布、循環場、温度場などの変化だけでなく、メタン、VOCs、DMS などの自然起源エミッションがどのように変動するかということも重要である。とくに、VOCs や DMS などの変化はエアロゾル生成を介して雲・気候にフィードバックする可能性があり、その相互作用をできるだけ定量的に評価する必要がある。また、それを裏付ける観測データも当然必要であり、それには、上述のように長期間の測定データの蓄積が求められる。

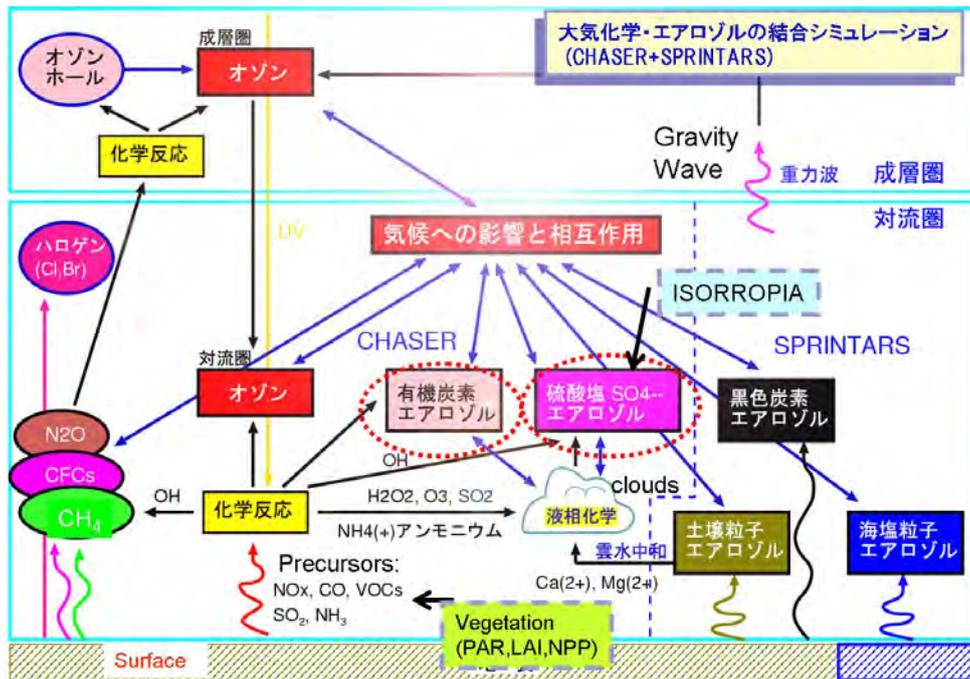


図 4.2-1 化学モデル CHASER とエアロゾルモデル SPRINTARS を用いた、大気化学・エアロゾル結合気候モデル(地球システムモデル)。

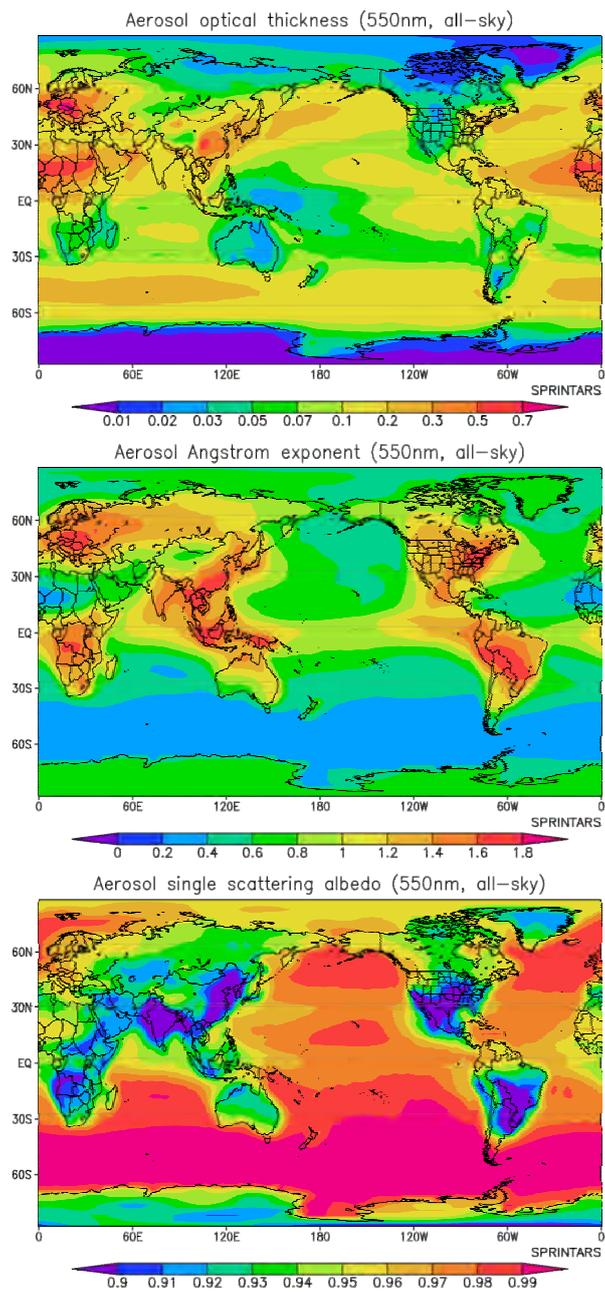


図 4.2-2 SPRINTARS によりシミュレートされたエアロゾルの光学的厚さ(550nm) (上)・オングストローム指数(中)・1次散乱アルベド(550nm) (下)の年平均分布(Takemura et al., 2002a)。

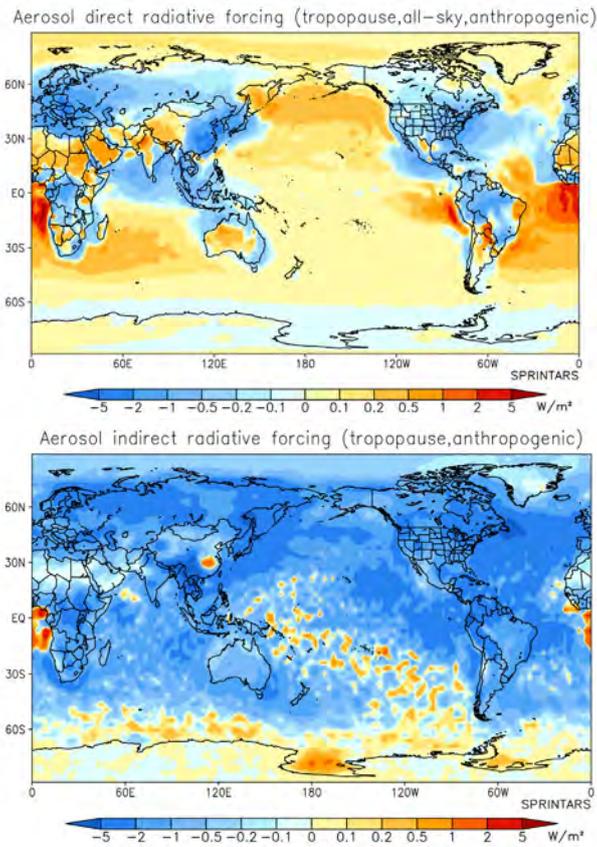


図 4.2-3 SPRINTARS によりシミュレートされた人為起源エアロゾルによる直接効果放射強制力(左)と間接効果放射強制力(右)の年平均分布(Takemura et al., 2005)。

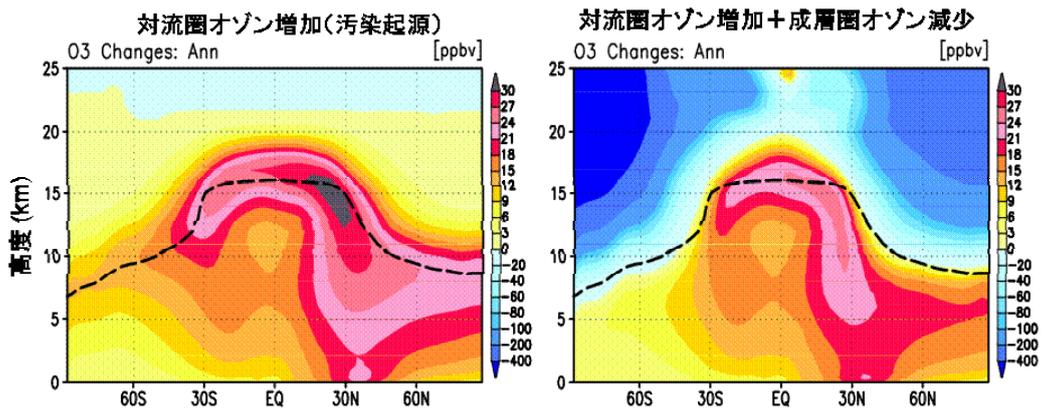


図 4.2-4 CHASER により計算された前駆気体の増加(汚染起源)による対流圏オゾン増加分布(左)と成層圏オゾン減少の影響(右)。変化量は 1850 年から 2000 年の期間に対応する。

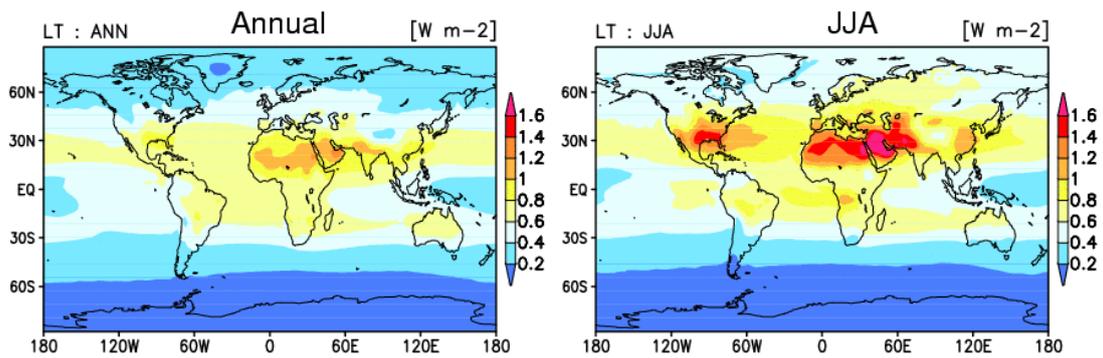


図 4.2-5 CHASERにより計算された対流圏オゾン増加による放射強制力。年間平均(左)と北半球夏季(右)。

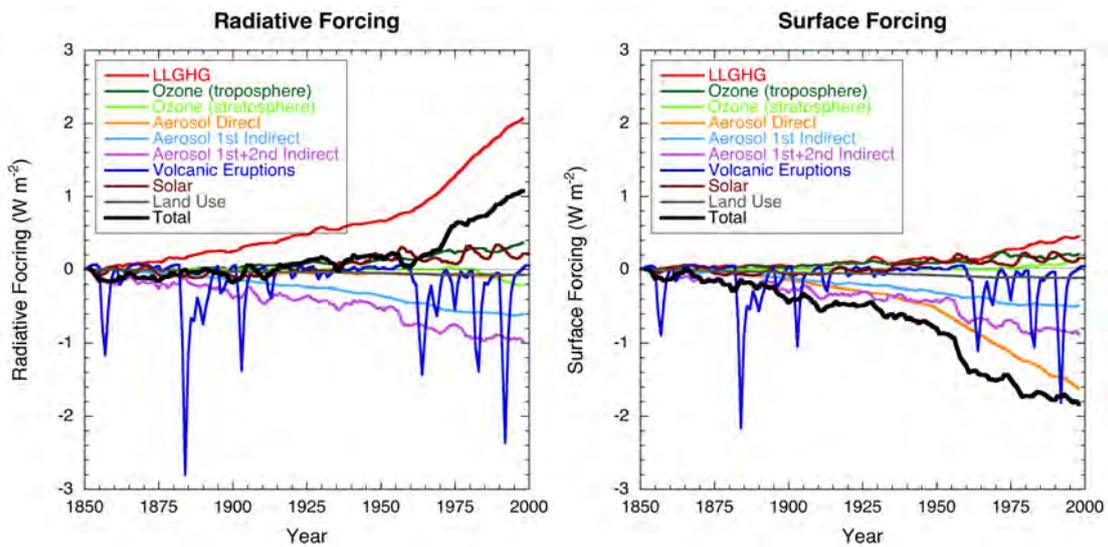


図 4.2-6 各気候強制因子による 1850 年から 2000 年までの対流圏界面(左)および地表面(右)における放射強制力の全球・年平均値の経年変化(Takemura et al., 2006)。

Gauss M., G. Myhre, I. S. A. Isaksen, W. J. Collins, F. J. Dentener, K. Ellingsen, L. K. Gohar, V. Grewe, D. A. Hauglustaine, D. Iachetti, J.-F. Lamarque, E. Mancini, L. J. Mickley, G. Pitari, M. J. Prather, J. A. Pyle, M. G. Sanderson, K. P. Shine, D. S. Stevenson, K. Sudo, S. Szopa, O. Wild, and G. Zeng, 2006: Radiative forcing since preindustrial times due to ozone change in the troposphere and the lower stratosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 575–599.

IPCC, 2007: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis*. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. edited by S. Solomon et al., 996 pp., Cambridge Univ. Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.

- K-1 Model Developers, 2004: K-1 coupled GCM (MIROC) description. edited by: Hasumi, H., and Emori, S., K-1 Tech. Rep. 1, 34 pp., Center for Climate System Research, University of Tokyo, Tokyo, Japan.
- Sudo K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto, 2002a: CHASER: A global chemical model of the troposphere, 1. Model description. *J. Geophys. Res.*, 107 (D17), 4339, doi:10.1029/2001JD001113.
- Sudo K., M. Takahashi, and H. Akimoto, 2002b: CHASER: A global chemical model of the troposphere, 2, Model results and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 107 (D21), 4586, doi:10.1029/2001JD001114.
- Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima, 2000: Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins. *J. Geophys. Res.*, 105, 17853–17873.
- Takemura, T., T. Nakajima, O. Dubovik, B. N. Holben, and S. Kinne, 2002a: Single-scattering albedo and radiative forcing of various aerosol species with a global three-dimensional model. *J. Climate*, 15, 333–352.
- Takemura, T., I. Uno, T. Nakajima, A. Higurashi, and I. Sano, 2002b: Modeling study of long-range transport of Asian dust and anthropogenic aerosols from East Asia. *Geophys. Res. Lett.*, 29(24), 2158, doi:10.1029/2002GL016251.
- Takemura, T., T. Nakajima, A. Higurashi, S. Ohta, and N. Sugimoto, 2003: Aerosol distributions and radiative forcing over the Asian-Pacific region simulated by Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS). *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8659, doi:10.1029/2002JD003210.
- Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima, 2005: Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model. *J. Geophys. Res.*, 110, D02202, doi:10.1029/2004JD005029.
- Takemura, T., Y. Tsushima, T. Yokohata, T. Nozawa, T. Nagashima, and T. Nakajima, 2006: Time evolutions of various radiative forcings for the past 150 years estimated by a general circulation model. *Geophys. Res. Lett.*, 33, L19705, doi:10.1029/2006GL026666.
- Takemura, T., Yoram J. Kaufman, Lorraine A. Remer, and Teruyuki Nakajima, 2007: Two competing pathways of aerosol effects on cloud and precipitation formation. *Geophys. Res. Lett.*, 34, L04802, doi:10.1029/2006GL028349.

4. 3. 有機エアロゾル研究の新たな展開

(1) 有機エアロゾルの組成・起源

エアロゾル中には数百・数千種の有機化合物が検出されている。しかし、それら有機物がエアロゾル炭素質量に占める割合は、せいぜい20–30%程度に過ぎない。有機物の大部分の構造は未だわかっていないのが現状である。これらの一部は、ガスクロマトグラム上でピークとして検出できるので、GC/MS による解析を進めることにより、構造決定は可能であろう。また、多くの部分がフミン様物質としてポリマーとして存在している可能性が指摘されているが、これらの構造解析は今後の重要な課題であろう。こうした解析において、LC/MS によるアプローチは有益であろう (Iinuma et al., 2004)。

大気中での二次有機エアロゾルの生成に関しては、半揮発性有機物 (SVOC) のガス・粒子での分配を明らかにすることも今後の大きな課題である。特に、低分子モノカルボン酸、アルデヒド、ジカルボニル類については、これまでの研究では不十分であり、都市・森林・海洋での分布を明らかにする必要がある。これらは、大気中での酸化過程の反応中間体であり、シュウ酸など水溶性有機物の重要な前駆体となる物質である。

生物圏からの有機物の放出と有機エアロゾルとの関係は、依然として大きな課題である。特に、陸上植物からの VOC のエミッションとその光化学的酸化による有機エアロゾルの二次的生成は、二酸化炭素濃度が増加している状況の中で植生による CO₂ の吸収と VOC の放出・有機エアロゾル生成がどうバランスしているのか、その収支を明らかにすることが求められている。そうした研究に対して、VOC と有機エアロゾルの組成解析からの解明が有力なアプローチを提供できる可能性が高い。SOLAS に代表されるように、海洋表面から大気への海洋起源有機物の放出は重要な課題である。特に、植物プランクトンのブルームが起こる時期には、海洋生物の大気組成への寄与が大きくなることが報告されており (Mochida et al., 2002)、海洋大気においてエアロゾルの有機物組成と海洋生物活動がどうリンクしているかを解明することは今後の重要な課題である。

有機エアロゾルへの C3 および C4 植物からの寄与の評価および起源域を推定する上で、個別有機化合物の安定炭素同位体比の測定は、有力なアプローチである [Fang et al., 2002; Bendle et al., 2007]。また、光化学反応によって生成されるシュウ酸などの安定炭素同位体比の測定から有機エアロゾルの光化学的エイジングを議論することが可能となっている [Wang and Kawamura, 2006; Aggarwal and Kawamura, 2008]。今後、有機エアロゾルの起源・変質を解明する上で、個別有機化合物の安定炭素同位体比の測定は、重要な研究手法となってくるであろう。

(2) 質量分析計による有機エアロゾルの研究

二次有機エアロゾル (SOA) の生成過程については未解明の部分が多く、3 次元化学輸送モデルは SOA 生成量を過小評価する傾向がある。ACE-Asia 観測キャンペーンにおいてアジアの自由対流圏で見られた過小評価のケースについて Heald et al. [2005] により報告されている (図 4.3-1)。SOA 過小評価の要因については、最新のチェンバー実験に基づくイソプレン酸化の粒子

生成効率の見直しや、グリオキサールの粒子化の考慮など様々な説が提案されている [Ervens and Kreidenweis, 2007 など]。一方、自由対流圏における有機エアロゾルの観測データ自体が非常に限られているため、ACE-Asia 観測以外のケースについて系統的に比較した例は少ない。

前述のエアロダイン社のエアロゾル質量分析計 (AMS) は粒径別の有機物総量の濃度を高速分析できることが利点である。従来は四重極質量分析計 (QMS) のタイプが主流であったが、近年は飛行時間型質量分析計 (ToF-MS) 対応モデルの開発が行われ、高感度化・高分解能化が進んできた [DeCarlo et al., 2006]。AMS (またはそれ以外的高速分析が可能な装置) による航空機観測は、アジアまたは他地域の自由対流圏における有機エアロゾル収支の問題を解明するうえで有用であり、今後推進すべき重要な研究テーマである。

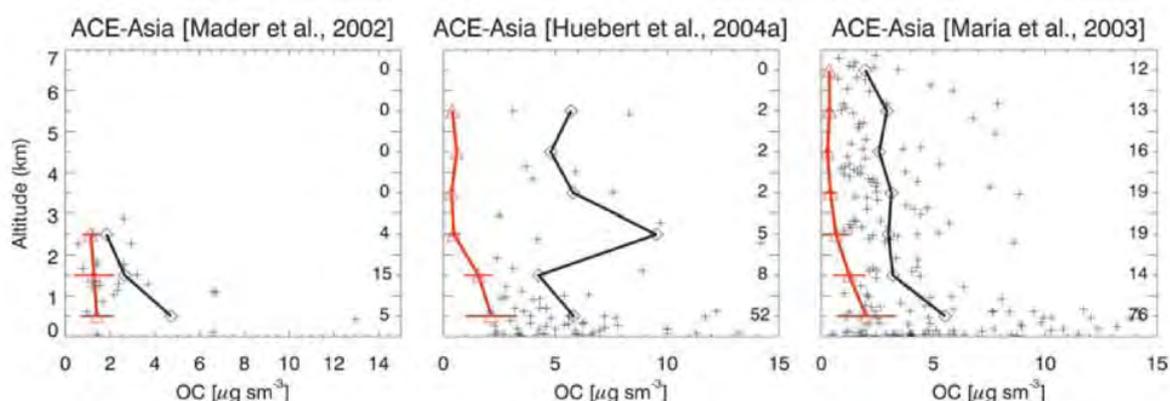


図 4.3-1. アジアの自由対流圏における有機炭素総量の観測とモデルの比較 [Heald et al., 2005]。ACE-Asia 観測データ (黒) に対して、GEOS-CHEM によるモデル計算値 (赤) が大幅に過小評価している。

前述の PALMS や AMS は高時間分解能が得られる一方で、化合物レベルの情報は失われるという大きな問題がある。これは気化・イオン化の方法に起因する。レーザーアブレーションでは強力なパルスレーザーにより粒子を瞬時に分解・イオン化するため、著しいフラグメント化が起こる。また、AMS では 600°C 加熱後に電子衝撃イオン化を行うため、レーザーアブレーションほどではないものの、やはりフラグメント化が著しい。

この問題を解決するために、光イオン化やイオンアタッチメントなどのソフトイオン化を組み合わせる試みがなされている。図 4.3-2 は実験室で発生させたオレイン酸粒子に対して、電子衝撃イオン化とソフトイオン化を比較したものである [Canagaratna et al., 2007]。電子衝撃イオン化では分子ピークは見えないが、ソフトイオン化では分子ピークやそれに近いものが強く見えている。ソフトイオン化ではイオン化効率が低いという問題があるが、今後はこのような問題を改善できるような装置の開発が期待される。

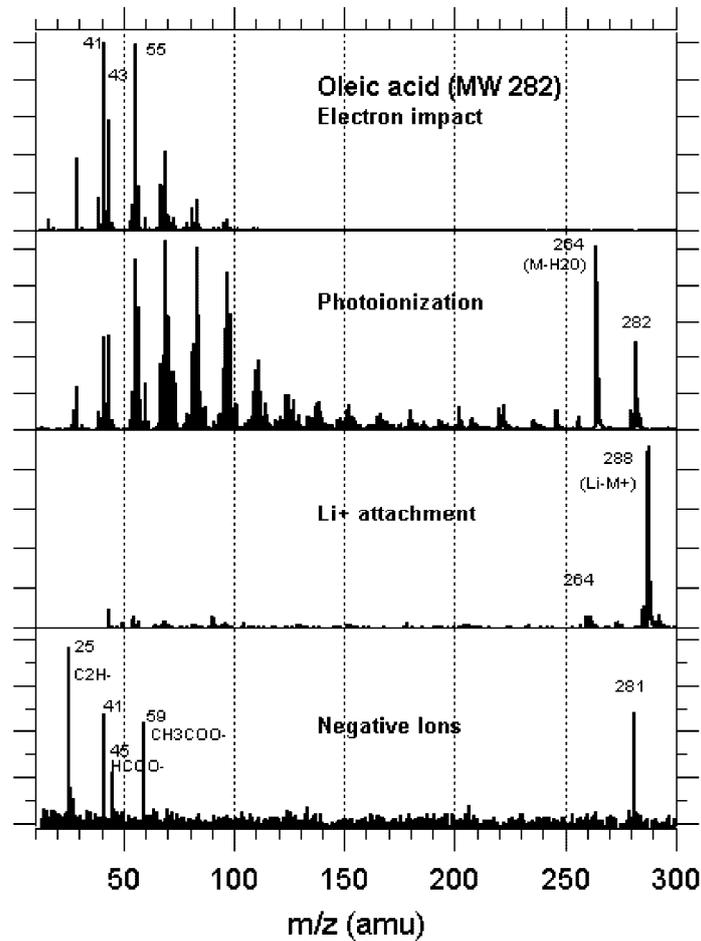


図 4.3-2. AMS において異なるイオン化方法を用いた場合のオレイン酸粒子の質量スペクトル [Canagaratna et al., 2007]。上から順に、電子衝撃イオン化、真空紫外光イオン化、リチウム付加イオン化、電子付加負イオン化。

(3) 有機エアロゾルの吸湿特性

有機物がエアロゾル粒子の吸湿特性に与える影響については、観測域による違いが指摘されている [Saxena et al., 1995]。しかし、吸湿特性の差異が空気塊の起源や輸送に伴う変質過程とどのように結びついているのかについては、現在まで十分に解明されていない。エアロゾルの起源や変質に着目した大気観測研究を、有機エアロゾルの吸湿特性あるいは密接に関連する粒子特性である雲凝結核能力や光学特性に対して行うことは、有効な取り組みのひとつに挙げることができる。

近年注目を集めているフミン様物質は、その放出・生成過程や変質の程度について不明な部分が多く、吸湿特性の差異の有無や変化の可能性についても検証が待たれる。最近では、捕集された大気エアロゾル粒子からフミン様物質を抽出し、吸湿特性が関与している粒子の雲凝結核活性を測定する試みも行われている [e.g., Dinar et al., 2006; Ziese et al., 2008]。フミン様物質は粒

子状有機成分の主要な画分のひとつであることから、その特性解明は有機エアロゾルの吸湿特性を理解する上で重要である。

大気エアロゾル粒子の吸湿特性の測定においては、静電分級の原理により粒径の相対湿度依存性を測定する吸湿タンデム DMA (HTDMA) が主要な手法の一つとして用いられてきた [Rader and McMurry, 1986]。DMA は高い分級の精度を持つことなどから、今後の大気観測研究においても HTDMA は吸湿特性測定の有効な手法に成り得ると考えられる。しかし、HTDMA には、測定できる粒径・相対湿度条件の範囲や、非球形粒子の扱いに制限があり、エアロゾル粒子の吸湿特性を測定する新規な手法の確立や、その大気観測への応用についての検証も有用である。それに伴い、吸湿特性を測定する異なる手法の相互比較も求められる。

有機エアロゾルの吸湿特性を本質的に理解するためには、吸湿特性の規定要因である粒子の化学組成を理解する必要がある。これまで、化合物群、官能基、あるいは分子レベルの有機組成解析が行われてきたが、これらの研究は、粒子状有機物の吸湿特性の理解にも貢献すると期待される。また、粒子の化学組成の情報に基づき吸湿特性を推定するためには、大気エアロゾル気相／粒子間の水の分配を扱うことのできる熱力学モデルの開発・検証が求められる。これらの開発・検証に有用なデータを取得する手段としては、大気エアロゾルの化学組成および吸湿特性の同時観測や、モデル粒子を用いた吸湿特性測定が挙げられる。

(4) 粒子表面での不均一反応とエアロゾル特性変化の解明

有機エアロゾルの大気中酸化に関する知見は、近年徐々に蓄積が開始された段階にあるといえるが、現在まだ断片的・定性的な情報しか得られておらず、過程を定量的に記述するにはほど遠い状況にある。特に、二次有機物の生成はこれまでの予想に反して格段に速く進むことが明らかになったが [de Gouw et al., 2005; Robinson et al., 2007]、その過程は未解明である。こうした有機エアロゾル粒子酸化過程の理解を進め、気候影響を扱う大気化学モデルシミュレーションにおいて少なくともパラメタリゼーションの形で表現できるようになることは、今後の大気科学研究の重要課題の一つである。この観点で、今後実施されるべき課題を以下に例示したい。

- 組成既知(単成分または複数成分)の模擬有機エアロゾル粒子や組成未知の大気エアロゾル粒子試料を用いた実験室反応実験を用い、OH, HO₂ ラジカル, O₃ などの取り込み係数や酸化に伴う粒子側の化学組成・光学特性・親水性・CCN 活性の変化を測定する。酸化速度の支配要因やプロセスの定性/定量的な解明を行う。
- とくに反応生成物に着目し、1)陸上植物起源物質の影響を強く受けた有機エアロゾル成分の場合と、人為起源物質が主の場合で生成物が異なるか、2)これまで提案されてきた光化学的酸化の指標の変化が上記のような模擬実験でも認められるか、3)アジア大陸で捕集したエアロゾルサンプルについて酸化実験を行い、風下側に位置する日本や西太平洋まで大気中を飛来する時間スケールに経験すべき酸化を模擬したときに、風下で捕集されたエアロゾル粒子の特性が得られるようになるか、などを検討する。また、有機エアロゾルとラジカルの反応によってガス状の VOC が生成するかどうか検証し、生成する VOC の

特性を捕らえ、エアロゾル相—気相の有機物分配を定量化する。

- 上記のような実験を行うための新しい反応装置を考案・製作する。とくに、エアロゾルフローチューブ装置以外にも、長時間、反応を追跡できるような実験系を考案する。また、有機エアロゾルの大気中酸化反応の経路を特定するためのトレーサー実験を考案し実施する。
- 多機関が協力して、可能な限り多くの装置(CCN 計、吸収計、エアロゾル質量分析計、H-TDMA など)を検出器として反応実験システムに取り付け、反応で変質した有機物の特性を同時・多角的に測定する。
- 最終的には、実験や観測によって示唆された反応経路や速度、適切なパラメタリゼーションを大気化学モデルに反映できるようにする。光化学反応が有機物変質を通してどのような気候影響などをもたらすか解明する。

以上のような研究取り組みから、科学的に興味深く、かつ地球大気環境の高精度な将来予測に資する知見が得られるものと考えられる。

(5) 衛星観測とモデルからみた有機化合物・有機エアロゾルの放出と収支

有機化合物は、ガス・粒子状を問わず、それらの放出・変質(生成・消失含む)・収支などについて、まだまだその多くが未知である。宇宙から地球を見渡すことができる衛星センサーと、全球の分布を計算できる化学輸送モデルは、有機化合物を研究する上で強力なツールとなりつつあり、グローバルやリージョナルな収支やフローを導出するには最適であるが、一方で、特にモデルにおける有機エアロゾルの取り扱いには多くの仮定を含むため、不確実性が大きいことに注意を払う必要がある。例えば、グリオキザールやメチルグリオキザールはイソプレンからの生成が5-8割を占めるが、それらが液相のエアロゾルや雲に不可逆的に取り込まれると仮定すると $\sim 11 \text{ C Tg/year}$ ものSOA発生源となり、これだけで従来のSOAの発存量と同程度になることが示唆されている[Fu et al., 2008]。

今後、実験室研究で得られている最新の化学的知見(例えば、イソプレンからのSOA生成)の影響を精査し、実大気環境下における妥当性を検証したり、観測とモデルの不一致を埋める努力がより一層必要となろう[e.g., van Donkelaar et al., 2007]。特に、モノテルペン、セスキテルペン、イソプレン、芳香族の酸化で生成し、SOAの前駆物質となる半揮発性有機化合物の挙動、気相・不均一反応をより良く解明していく必要があると思われる。この観点からは、有機物については野外観測の重要性がこれまで以上に増すものと思われる。有機化合物についてはその種類の多さから、信頼性の高い観測データが不十分であり、特に広大な海洋上や森林地帯でのデータがまだまだ少ないことは、自然起源(海洋、生物、バイオマスバーニング含む)の寄与が大きい有機化合物・有機エアロゾル研究においては現在の課題である。正確なデータが得られるが労力がかかる測定手法(質量分析法など)、確度・精度は劣るが簡便に計測できる手法(燃焼法など)、DOASなどリモートセンシング手法など、特徴に応じて観測データを質・量ともに蓄積していくことが重要であろう。特に、有機エアロゾルの種類については、AMSの発展で格段の情報量の増大を見たが、

より詳細な化合物の組成や構造を知ることができる計測装置の開発も今後の一つの方向である。

- Aggarwal S. G. and K. Kawamura, Molecular distributions and stable carbon isotopic compositions of dicarboxylic acids and related compounds in the aerosols from Sapporo, Japan: Implications for the photochemical aging during long-range atmospheric transport, *J. Geophys. Res.*, 113, D14301, doi:10.1029/2007JD009365, 2008.
- Bendle J., K. Kawamura, K. Yamazaki, and T. Niwai, Latitudinal distribution of terrestrial lipid biomarkers and n-alkane compound specific stable carbon isotope ratios in the atmosphere over the western Pacific and Southern Ocean. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 71, 5934–5955, 2007.
- Canagaratna, M. R., et al. (2007), Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the Aerodyne aerosol mass spectrometer, *Mass Spectrometry Reviews*, 26, 185–222.
- DeCarlo, P. F., et al. (2006), Field-deployable, high-resolution, time-of-flight aerosol mass spectrometer, *Anal. Chem.*, Article 10.1021/ac061249n.
- de Gouw, J. A., et al. (2005), Budget of organic carbon in a polluted atmosphere: Results from the New England Air Quality Study in 2002, *J. Geophys. Res.*, 110, D16305, doi:10.1029/2004JD005623.
- Dinar, E., I. Taraniuk, E. R. Graber, S. Katsman, T. Moise, T. Anttila, T. F. Mentel, and Y. Rudich (2006) Cloud Condensation Nuclei properties of model and atmospheric HULIS, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2465–2481.
- Ervens, B. and S. Kreidenweis (2007), SOA Formation by Biogenic and Carbonyl Compounds: Data Evaluation and Application, *Environ. Sci. Technol.* 41, 3904–3910.
- Fang J., K. Kawamura, Y. Ishimura, and K. Matsumoto, Carbon isotopic composition of fatty acids in the marine aerosols from the western North Pacific: Implication for the source and atmospheric transport, *Environmental Science & Technology*, 36, 2598–2604, 2002.
- Fu, T.-M. Fu, D. J. Jacob, F. Wittrock, J. P. Burrows, and M. Vrekoussis (2008), Global budgets of atmospheric glyoxal and methylglyoxal, and implications for formation of secondary organic aerosols, *J. Geophys. Res.*, in press.
- Heald, C. L. et al. (2005), A large organic aerosol source in the free troposphere missing from current models, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L18809, doi: 10.1029/2005GL023831.
- Iinuma, Y., O. Boge, T. Gnauk and H. Herrmann (2004) Aerosol-chamber study of the α -pinene/O₃ reaction: influence of particle acidity on aerosol yields and products, *Atmos. Environ.*, 38, 761–773.
- Mochida M., Y. Kitamori, K. Kawamura, Y. Nojiri and K. Suzuki (2002) Fatty acids in the marine atmosphere: Factors governing their concentrations and evaluation of organic films on sea-salt

- particles. *J. Geophys. Res.*, 107, 4325, doi: 10.1029/2001JD001278.
- Rader, D. J., and P. H. McMurry (1986) Application of the tandem differential mobility analyzer to studies of droplet growth or evaporation, *J. Aerosol Sci.*, 17, 771–787.
- Robinson, A. L, N. M. Donahue, M. K. Shrivastava, E. A. Weitkamp, A. M. Sage, A. P. Grieshop, T. E. Lane, J. R. Pierce, S. N. Pandis (2007), Rethinking organic aerosols: Semivolatile emissions and photochemical aging, *Science*, 315, 1259– 1262.
- Saxena, P., L. M. Hildemann, P. H. McMurry, and J. H. Seinfeld (1995) Organic alter hygroscopic behavior of atmospheric particles, *J. Geophys. Res.*, 100(D9), 18,755–18,770.
- van Donkelaara, A., R. V. Martina, R. J. Park, C. L. Heald, T.-M. Fu, H. Liao (2008), A. Guenther, Model evidence for a significant source of secondary organic aerosol from isoprene, *Atmos. Environ.*, 41, 1267–1274.
- Wang H. and K. Kawamura, Stable carbon isotopic composition of low-molecular-weight dicarboxylic acids and ketoacids in remote marine aerosols, *J. Geophys. Res.* 111, D07304, doi: 10.1029/2005JD006466, 2006.
- Ziese, M., H. Wex, E. Nilsson, I. Salma, R. Ocskay, T. Hennig, A. Massling, and F. Stratmann (2008) Hygroscopic growth and activation of HULIS particles: experimental data and a new iterative parameterization scheme for complex aerosol particles, *Atmos. Chem., Phys.*, 8, 1855–1866.

おわりに

この文書は、日本学術会議の WCRP/IGBP 合同分科会の下部組織として設置された IGAC 小委員会において、平成18－20年の第20期の活動期間において重ねてきた議論に基づいて編纂された、学術会議の記録文書である。

本文書は3つの目的をもって作成された。

- (1)内外の研究者・行政関係者・一般の方々に大気化学研究の重要性と方向性を示すこと。
- (2)大気化学研究者コミュニティやこの分野の学生に、大気化学研究の重要性と方向性を示し、意識を共有すること。
- (3)大気化学研究の推進の上で、研究計画の策定・実行に自由に有効活用してもらうこと。

本文書がこれらの目的に役立てば幸いである。ただし本文書の内容を引用する際には、「日本学術会議 IGAC 小委員会記録文書 “今後の日本の大気化学研究”」からの引用であることを明記されたい。

また、本文書では触れられていないが、大気化学の一層の発展のためには、将来を担う若手研究者の育成が不可欠である。自然科学を体系的に理解する理学的な知識と、自然現象の本質を深く洞察し創造的な研究を展開する能力を兼ね備えた研究者を養成することが必要である。また大気化学の深い理解と広い視野をもつ人材は、社会の様々な分野においても活躍できると確信する。この分野の大学の学部教育・大学院教育の一層の充実化が必要である。

執筆者

はじめに

- | | |
|--------------------------------|----------------|
| 1. 概要 | |
| 2. 国際IGACと大気化学研究の動向 | 小池、中根、秋元、近藤 |
| 3. 研究課題 | |
| 3. 1. アジアの対流圏オゾンとその影響 | 谷本、須藤、滝川、小林、秋元 |
| 3. 2. アジアのエアロゾルとその気候変動影響 | 小池、近藤、竹村 |
| 3. 3. 越境大気汚染 | 畠山、大原、兼保、高見、 |
| 3. 4. 極域の大気環境変動 | 山内 |
| 3. 5. 熱帯のオゾンと熱帯対流圏界層(TTL) | 藤原、塩谷、小池 |
| 3. 6. 化学気候モデル研究 | 竹村、須藤 |
| 3. 7. 有機エアロゾルの組成と起源 | 河村、竹川、持田、金谷、谷本 |
| 3. 8. 長寿命温室効果気体 | 中澤、松枝、吉田、横内 |
| 3. 9. 海洋との相互作用(SOLASとの連携) | 植松 |
| 3. 10. 陸上生態系との相互作用(iLEAPSとの連携) | 八木 |
| 3. 11. 成層圏との相互作用(SPARCとの連携) | 林田、須藤 |
| 3. 12. 静止衛星による大気環境観測 | 秋元、北 |
| 3. 13. 測定手法の開発と室内実験 | 松見 |
| 3. 14. アジアの排出インベントリ | 大原 |
| 3. 15. 観測の標準化とアジア観測ネットワーク | 谷本 |
| 3. 16. アジア大気化学データベース構築 | 小池、村山、高見 |
| 4. 研究計画 | |
| 4. 1. アジアのエアロゾル研究の新たな展開 | 小池、近藤、竹村 |
| 4. 2. 化学気候モデル研究の新たな展開 | 竹村、須藤 |
| 4. 3. 有機エアロゾル研究の新たな展開 | 河村、竹川、持田、金谷、谷本 |

おわりに