

令和元年6月14日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H02937

研究課題名(和文) 全球大気酸化能の実態・変動の徹底解明

研究課題名(英文) Intense investigation of the oxidation capacity of global atmosphere and its changes

研究代表者

須藤 健悟 (Sudo, Kengo)

名古屋大学・環境学研究科・准教授

研究者番号：40371744

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、大気中の様々な物質の酸化・除去を担うOHラジカル(ヒドロキシルラジカル)の全球分布について、高精度な推定を行い、大気酸化能の変動の実態とそのメカニズムを定量的に解明した。化学気候モデルによる全球大気化学シミュレーションを主なアプローチとし、モデル中の雲・エアロゾル・成層圏オゾンの計算を各種衛星観測データにより検証・正確化することで、OH濃度場推定の高精度化を行い、雲・水蒸気・オゾン等に加え、自然・人間由来の窒素酸化物(NOx)・一酸化炭素(CO)・揮発性有機化合物(VOCs)の大気への排出量など、OH変動要因の寄与を定量的に整理した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、メタンをはじめ大気中の様々な物質の除去を担うOHラジカルの全球分布の推定を高精度化し、OH変動要因の定量的検討も行った。このような成果は、気候変動や大気環境変動の正確な予測・評価に大きく寄与し、今後の温室効果気体等の排出量削減シナリオの策定にも貢献が大きい。また、次期IPCC報告書に向けたモデル間相互比較プロジェクトであるCMIP6、CCMI、およびAeroChem-MIPにも、本科研費課題の化学気候モデルを用いて参加しており、大気汚染が与える気候影響の理解の高精度化に寄与し、気候政策の策定にも大きく貢献する予定である。

研究成果の概要(英文)：This study improves the estimate of global distributions of hydroxy radical (OH) which controls oxidation and removal processes of various compounds in the atmosphere, and evaluates the recent change in the atmospheric oxidation capacity and its controlling mechanism. The estimate of OH distributions is improved by validating and elaborating the calculations of clouds, aerosols, and stratospheric ozone with combining a chemistry climate model simulation with the observational data as from satellite measurements. This study further investigates contributions of individual controlling factors of OH changes such as anthropogenic and natural emissions of nitrogen oxides (NOx), carbon monoxide (CO), volatile organic compounds (VOCs), in addition to the distributions of clouds, water vapor (H₂O), and ozone.

研究分野：大気化学

キーワード：大気酸化能 OHラジカル 化学気候モデル 化学輸送モデル メタン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

大気中、とくに対流圏に存在する OH ラジカルはメタン (CH₄) 等の温室効果気体や、一酸化炭素 (CO)、窒素酸化物 (NO_x)、硫黄酸化物 (SO_x)、および揮発性有機化合物 (VOCs) 等の大気汚染物質をはじめ、大気中の様々な物質の酸化反応を駆動し、いわゆる「地球大気の空気清浄機」として重要な役割を担っている (全球平均 OH 濃度は大気酸化能と呼ばれる)。しかしながら、大気中の OH の化学的な寿命は 1 秒にも満たず、またその生成・消滅反応プロセスは紫外光や水蒸気など気象学的要因にも大きく左右され複雑であることから (図 1)、直接観測のみによる OH の全球分布の把握は事実上不可能である。これまで、全球化学気候モデルや全球化学輸送モデル等の数値モデルによって OH の全球分布や平均濃度 (大気酸化能) およびこれらの経年変化の推定が行われてきているが、モデル間のバラツキは依然として大きく^{1,2}、観測的裏付けとの食い違いも指摘されており³、全球 OH 分布について十分に科学的理解が得られているとは到底言えない。上述のように、大気 OH は、温室効果気体や大気汚染物質の酸化・除去やエアロゾル (粒子状物質) の生成を支配しているため、気候変動 (温暖化) や大気環境変化の正確な予測に向け、全球 OH 分布の高精度な推定や変動メカニズムの定量的理解の向上が喫緊の課題である。

研究代表者はこれまで、科研費・基盤研究(A)「大気化学・陸域生態系モデルの結合による CH₄・N₂O の変動要因の解明」の研究代表者として、独自開発した化学気候モデル CHASER を用い、CH₄ の全球収支やこれに寄与する OH 変動の研究を推進してきた。これまでの研究から、メタン排出量を一定とした場合、全球平均メタン濃度の増加率が、近年顕著に低下する傾向にあることが示された。研究代表者のモデル実験・解析は、このメタン変動傾向の原因として、対流圏の OH ラジカルが、気候変動に伴う気象場の変化 (水蒸気増加、雲分布変化にともなう紫外光強度の変化、および雷からの NO_x 生成量の増加) によって増加し、メタンの増加を抑制している可能性を示した⁴。これが事実ならば、近年のメタンの排出量推定の大幅な上方修正が必要となる。しかしながら、現段階では、モデル中の雲の変動やこれに伴う紫外光・雷 NO_x の変動について観測データを用いた十分な検証は行っておらず、確定的な結論には到達していない。さらに、実際には、気象場変動に加えて、成層圏オゾンや対流圏中のエアロゾル分布の変動による紫外光変動、人為・汚染起源の NO_x・CO の排出量変化や植物起源の VOCs の変化なども、同時に全球 OH 分布に影響している可能性がある。したがって、全球 OH 変動の実態解明のためには、化学気候モデル中の雲分布変動などの表現をより現実的なものに改良したうえで、各変動要因を個別に定量化し、より高精度かつ網羅的な OH 変動推定へと発展させる必要がある。

2. 研究の目的

上述の学術的背景をうけ、本研究では、まず、研究代表者が独自に開発を行っている大気化学・気候モデル (CHASER)^{5,6} を土台とし、紫外光変動など、とくに不確定性の大きい過程に着目しながら OH 分布・変動の推定を高精度化する。その上で、大気酸化能力の各変動要因の役割を網羅的に定量化し、メタンなどの重要温室効果気体の全球収支・排出量変動の理解を格段に向上させる。本研究では、以下のような目標を設定する。

- 1) 紫外光変動再現の高精度化: オゾン光解離を駆動する紫外光は OH の重要な生成源である。まず、モデル中でとくに不確定性の大きい雲の全球分布について、各種衛星データを用いた検証・正確化を行う (雲衛星データの利用にあたっては、研究分担者が構築した解析手法やモデル検証方法を用いる)。雲分布の正確化によって紫外光や OH の全球分布・変動にどのような修正が適用されるか精査し、モデルスキームの改良を行う。さらに、成層圏オゾンや対流圏中のエアロゾルについても衛星データと融合し、精度の高い紫外光変動再現を実現する。
- 2) 各種気体排出量が及ぼす影響の網羅的解析: OH 分布は、NO_x、CO、VOCs などの排出量の自然・人為的変動にも大きく左右される。このような排出量変動について、排出量データや衛星データを考慮しながら、CHASER モデルにより再現計算を行い、OH 変動における各気体の役割を分離・定量化する。研究代表者のこれまでの研究から OH 変動への寄与が大きいことがわかっている雷からの NO_x 発生量については、衛星データを利用した高精度化を行う。
- 3) OH 変動の総合評価: 1) および 2) を併せ、気象学・大気化学的要因の寄与を整理し、複合的な OH 変動メカニズムの実態 (OH がどのように変動してきたか?) を総合的に解明する。
- 4) OH 変動推定の高精度化の波及効果: 以上のように高精度化された全球 OH 分布・変動の推定結果をメタンの再現計算に適用し、既存データのメタン排出量やそのトレンドを再評価する。

3. 研究の方法

本研究では、全球 OH 分布の高精度計算の実現にあたり、まず、OH 生成源である紫外光強度等の変動について、モデル推定の高精度化を行う。このため、1-2 年目には、ISCCP 等の衛星雲データを化学気候モデル CHASER に融合・同化し、その効果の検証・解析を行う。成層圏オゾンやエアロゾルの分布についても、モデル計算を検証した上で、衛星データとの融合を行

い、紫外光・OH 変動の推定精度をさらに高める。また、2 年目には、NO_x,CO,VOCs など、OH 濃度に影響する物質の排出量変動についての再現・感度実験を行い、紫外光や水蒸気など気象学的要因と併せ、全球 OH 変動のメカニズム・要因を総合的に整理する。3 年目では、2 年目までの結果をまとめるとともに、メタンについての再現計算を実施し、メタンの全球収支・排出量の再評価を行う。

4. 研究成果

本研究では、上述の方法に従い、対流圏 OH (大気酸化能) 推定の精度向上のための研究を実施した。このなかでは、化学気候モデルの検証・改良に加え、雲が OH の分布変動に与える影響を定量化し、OH 変動の各種要因を整理するとともに、OH 変動がメタン等に与える影響を精査した。以下では、特に重要な成果について記述する。

(1) 化学気候モデルの雲分布計算の検証および改良

まず、OH 分布に顕著な影響をおよぼす雲の分布について、化学気候モデル CHASER による計算を衛星データと比較・検証した。図 1 はモデル結果と衛星観測について、雲量の東西平均を比較したものである。モデル結果は、雲のグリッド内の鉛直方向の重なり(重複)について、3 種のスキームによる計算を示すが、定量的には、標準スキーム (RAN) が最もよく衛星観測を再現していることがわかる。しかしながら、衛星データとの相関は、上下隣り合う雲は最大限に重なり合う仮定を置く MRAN スキームが良いことが判明した。このため、本研究では、RAN と MRAN の 2 種のスキームを組み合わせたハイブリッドスキームにより、化学気候モデル中の雲計算の精度を向上させ、このスキームを以降の本研究の OH 推定研究の標準設定として使用した。さらに、雲分布に加え、オゾンや窒素酸化物、一酸化炭素など OH 分布に影響を与える重要物質についても、全球分布や経年変動に関する詳細な検証を行い、モデル計算の妥当性を確認した。

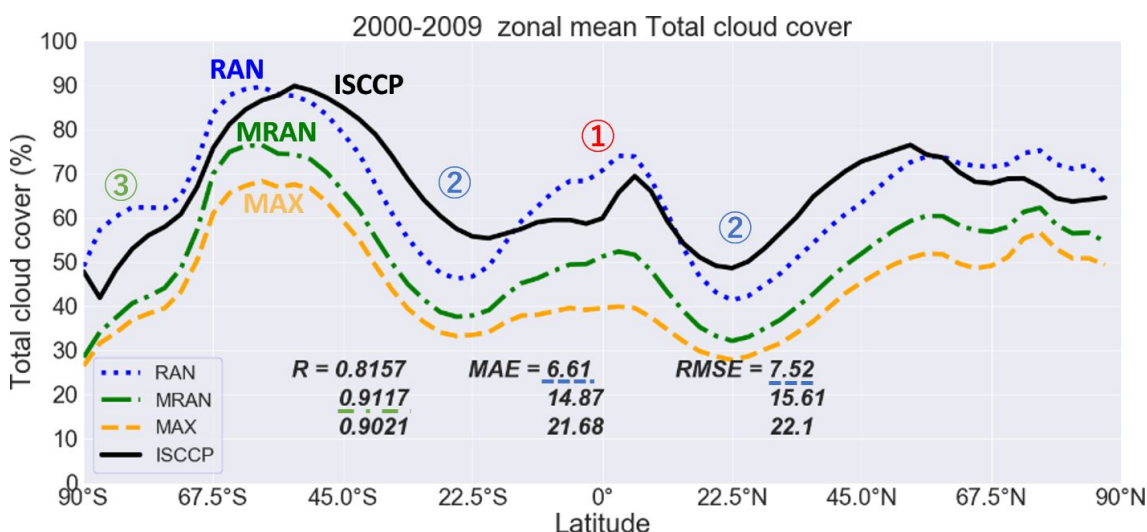


図 1. 化学気候モデル CHASER および衛星データセット (ISCCP) による東西平均・雲量の緯度分布の比較。モデル結果は、雲のグリッド内の重なり合いの表現について、3 種の異なるスキーム (RAN, MRAN, および MAX) による計算結果を示す。

(2) 雲の紫外光散乱による OH 分布への影響

次に、雲の存在が全球の対流圏化学場にどのような影響を及ぼすかについて、感度実験を実施した。この結果 (図 2) によると、雲の紫外光散乱により、OH 濃度が地表面付近では約 10~20% 減少、上空では約 10~20% 増加することがわかった。この傾向は、低中層雲による太陽光の散乱・反射を反映したものであり、先行研究とも整合的であるが、全球平均の OH 濃度変化は、本研究では 13% と推定され、先行研究よりも大きな影響が示唆された。また、オゾンは上部対流圏で増加、下層で減少することが示された。とくに上部対流圏におけるオゾン増加は大気放射的に重要であり、雲分布の変化がオゾン変化を通じて気候変動に間接的なフィードバックを及ぼしている可能性が示唆される。本研究で示された雲による大気化学場への影響については、航空機観測データを用いた検証を実施し、雲のオゾン・OH への影響が妥当に計算されていることが確認されている。

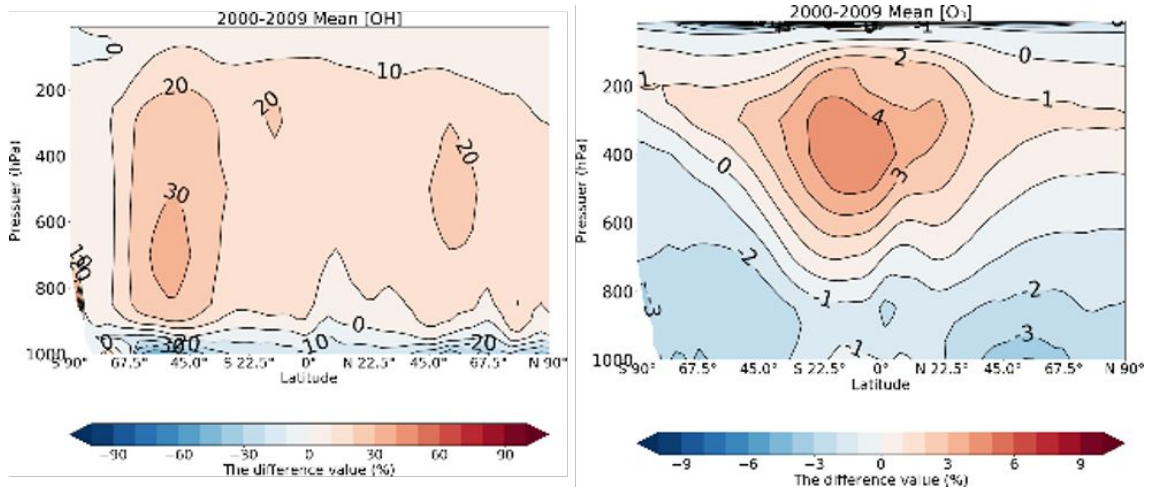


図2. 雲による紫外光散乱が及ぼす対流圏光化学場への影響。左は東西平均 OH 濃度、右は東西平均オゾン濃度について、雲による影響 (%) を示す。

(3) OH 変動要因の推定

本研究では、化学気候モデル CHASER を使い、大気酸化能、OH 濃度の変動要因を精査した。この結果、対流圏中の平均 OH 濃度の変動は、雷からの NO_x 生成、水蒸気、紫外光、オゾン濃度、および一酸化炭素濃度の各種変動によって定量的によく説明できることがわかった(図3)。このうち、紫外光の変動は主に雲変動に起因したものであり、一酸化炭素は、バイオマス燃焼を反映したものである。本研究では、この解析手法を、長期間の OH 変動にも適用し、1960 年～2015 年の OH 変動についても要因ごとに定量化し、メタン変動への影響も明らかにした。

図: OH および各アノマリの回帰後の積み上げグラフ(全球)

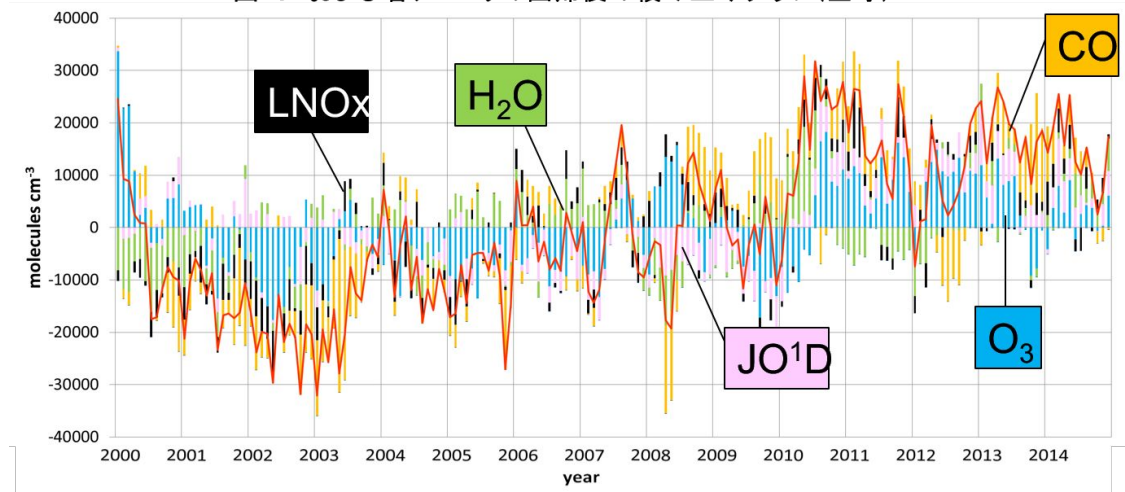


図3. 全球平均 OH 濃度の重回帰分析。説明変数として、雷 NO_x 生成(LNO_x)、水蒸気(H₂O)、紫外光(JO¹D)、オゾン(O₃)、および一酸化炭素(CO)を対象とした。

(引用文献)

- IPCC-AR5 (WG-1) (2013).
- Naik, et al. (2013) Atmos. Chem. Phys., 13, 5277-5298.
- Patra et al. (2014), Nature, 513, 219-223.
- Sudo et al. (2014) AGU Fall meeting.
- Sudo et al. (2002) J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001JD001113.
- Watanabe et al. (2011) Geosci. Model Dev., 4, 845-872.
- Miyazaki et al. (2015) Atmos. Chem. Phys., 15, 8315-8348.

[雑誌論文](計6件)

Dhomse, S. S., Kinnison, D., Chipperfield, M. P., Salawitch, R. J., Cionni, I., Hegglin, M. I., Abraham, N. L., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Bednarz, E. M., Bekki, S., Braesicke, P., Butchart, N., Dameris, M., Deushi, M., Frith, S., Hardiman, S. C., Hassler, B., Horowitz, L. W., Hu, R.-M., Jöckel, P., Josse, B., Kirner, O., Kremser, S., Langematz, U., Lewis, J., Marchand, M., Lin, M., Mancini, E., Marécal, V., Michou, M., Morgenstern, O., O'Connor, F. M., Oman, L., Pitari, G., Plummer, D. A., Pyle, J. A., Revell, L. E., Rozanov, E., Schofield, R., Stenke, A., Stone, K., **Sudo, K.**, Tilmes, S., Visionsi, D., Yamashita, Y., and Zeng, G.: Estimates of ozone return dates from Chemistry-Climate Model Initiative simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 8409-8438, <https://doi.org/10.5194/acp-18-8409-2018>, 2018. (査読有り)

須藤 健悟 (2017) 化学気候モデルで探る大気微量成分の全球変動、大気化学研究、36、036A03. (査読有り)

Bian, H., Chin, M., Hauglustaine, D. A., Schulz, M., Myhre, G., Bauer, S. E., Lund, M. T., Karydis, V. A., Kucsera, T. L., Pan, X., Pozzer, A., Skeie, R. B., Steenrod, S. D., **Sudo K.**, Tsigaridis, K., Tsimpidi, A. P., and Tsyro, S. G. (2017) Investigation of global particulate nitrate from the AeroCom phase III experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 12911-12940, <https://doi.org/10.5194/acp-17-12911-2017>. (査読有り)

Anderson, D. C., J. M. Nicely, G. M. Wolfe, T. F. Hanisco, R. J. Salawitch, T. P. Canty, R. R. Dickerson, E. C. Apel, S. Baidar, T. J. Bannan, N. J. Blake, D. X. Chen, B. Dix, R. P. Fernandez, S. R. Hall, R. S. Hornbrook, L. G. Huey, B. Josse, P. Jockel, D. E. Kinnison, T. K. Koenig, M. Le Breton, V. Marecal, O. Morgenstern, L. D. Oman, L. L. Pan, C. Percival, D. Plummer, L. E. Revell, E. Rozanov, A. Saiz-Lopez, A. Stenke, **Sudo K.**, S. Tilmes, K. Ullmann, R. Volkamer, A. J. Weinheimer and G. Zeng (2017) Formaldehyde in the Tropical Western Pacific: Chemical Sources and Sinks, Convective Transport, and Representation in CAM-Chem and the CCMI Models, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 122(20), 11201-11226, doi:10.1002/2016jd026121. (査読有り)

Morgenstern, O., Hegglin, M. I., Rozanov, E., O'Connor, F. M., Abraham, N. L., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Bekki, S., Butchart, N., Chipperfield, M. P., Deushi, M., Dhomse, S. S., Garcia, R. R., Hardiman, S. C., Horowitz, L. W., Jöckel, P., Josse, B., Kinnison, D., Lin, M., Mancini, E., Manyin, M. E., Marchand, M., Marécal, V., Michou, M., Oman, L. D., Pitari, G., Plummer, D. A., Revell, L. E., Saint-Martin, D., Schofield, R., Stenke, A., Stone, **Sudo K.**, K., Tanaka, T. Y., Tilmes, S., Yamashita, Y., Yoshida, K., and Zeng, G. (2017) Review of the global models used within the Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI), *Geosci. Model Dev.*, 10, 639-671 doi:10.5194/gmd-10-639-2017. (査読有り)

Miyazaki, K., Eskes, H., **Sudo, K.**, Boersma, K. F., Bowman, K., and Kanaya Y. (2017) Decadal changes in global surface NOx emissions from multi-constituent satellite data assimilation, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807-837, doi:10.5194/acp-17-807-2017. (査読有り)

[学会発表](計4件)

須藤健悟, 長谷川晃一, 竹村俊彦, 微量気体 SLCPs の長期変動と気候影響, 日本気象学会 2018 年秋季大会

須藤健悟, 趙舒悦, 宮崎和幸, 伊藤昭彦, Improving estimation of global BVOCs emissions using ground-based VOCs observations and satellite data of atmospheric HCHO, 地球惑星科学連合大会 (JPGU) 2018 年 5 月 22 日、幕張。

Kengo Sudo, Interannual variability and long-term trends in global tropospheric chemistry and aerosols during recent decades and in the future, Chemistry-Climate Model Initiative Science Workshop 2017 (招待講演)

Kengo Sudo, Interannual variability and long-term trends in global tropospheric ozone and related chemistry during recent decades, Quadrennial Ozone Symposium 2016 (招待講演)

[その他]

<https://www.youtube.com/channel/UCpd0cI8kEBCtElm8zRTt8Xw>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：増永 浩彦

ローマ字氏名：(MASUNAGA, Hirohiko)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：宇宙地球環境研究所

職名：准教授

研究者番号（8桁）：00444422

(2)研究協力者

研究協力者氏名：宮崎 和幸

ローマ字氏名：(MIYAZAKI, Kazuyuki)

研究協力者氏名：伊藤 昭彦

ローマ字氏名：(ITO, Akihiko)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。