

令和元年6月21日現在

機関番号：82706

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K16186

研究課題名（和文）ヨウ素触媒サイクルを含む化学気候モデルの開発

研究課題名（英文）The development of chemistry climate model to include the catalytic ozone-depleting cycles of iodine

研究代表者

山下 陽介（YAMASHITA, Yousuke）

国立研究開発法人海洋研究開発機構・ビッグデータ活用予測プロジェクトチーム・特任研究員

研究者番号：40637766

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：大気中のヨウ素化合物は海洋から放出される自然起源のもので、光化学反応やエアロゾル上における不均一反応により無機ヨウ素化合物に変化し、大気中の循環によって成層圏にまで到達すると考えられている。本研究では、化学気候モデルに海洋上におけるヨウ化メチルの放出やヨウ素触媒サイクルを加えたモデルの開発を行い、光化学反応やエアロゾル上における不均一反応も導入した。開発したモデルで現在気候、将来気候実験を行い、成層圏の無機ヨウ素濃度やオゾン濃度の変化幅を推定した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

成層圏プロセスとその気候における役割研究と地球圏-生物圏国際協同研究計画の下部組織である「地球大気化学国際協同研究計画」の2つの機関が共同で、Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI)という国際プロジェクトを立ち上げ、世界のCCMで近過去のオゾン層変動やオゾン層将来予測結果を比較するために共通のシナリオ実験を行っている。このCCMIに参加している研究機関のどのモデルも、ヨウ素触媒サイクルを考慮していないのが現状であるが、本研究によりヨウ素触媒サイクルを考慮したモデルの開発を行うことができた。

研究成果の概要（英文）：The atmospheric iodine is naturally emitted from ocean and reacts to inorganic iodine compounds through photochemical reactions and heterogeneous reactions on aerosols, moving to stratosphere by atmospheric circulation. The chemistry climate model developed in this study includes the emission of methyl iodide from the ocean and catalytic ozone-depleting cycles of iodine, with involving in photochemical reactions and heterogeneous reactions on aerosols. The recent and future simulations are performed with this model, and the variation range is determined for the concentration of inorganic iodine species and ozone.

研究分野：気候力学、大気化学、コンピュータ科学

キーワード：化学気候モデル オゾン ヨウ素触媒サイクル

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

これまでの知見 (例えば Solomon et al. 1994) では、ヨウ素触媒サイクルによるオゾン消失は無視できるほど小さいとされていたが、近年の研究 (Saiz-Lopez et al. 2015) で、熱帯域の対流圏界面付近の下部成層圏におけるオゾン消失の 3 割がヨウ素触媒サイクルによって説明されるという推定結果が提示された。しかし、Saiz-Lopez et al. (2015) ではオゾン消失の推定にとって重要な成層圏を十分に解像できておらず、エアロゾル輸送や雲微物理なども十分に考慮できていない。

2. 研究の目的

本研究では、国立環境研究所で成層圏のオゾン層変動などを研究するために開発が進められてきた化学気候モデル (CCM) (Akiyoshi et al. 2009; Yamashita et al. 2010) に、これまで導入されていなかったヨウ素化合物の化学反応計算を加えたモデルを開発し、そのモデルを用いて実験を行うことで、ヨウ素化合物によるオゾン消失量の見積もりの不確実性を低減する。

3. 研究の方法

(1) 国立環境研究所の CCM には、チャップマン反応の他に水素酸化物ラジカル (HO_x)、窒素酸化物ラジカル (NO_x)、塩素ラジカル (ClO_x)、臭素ラジカル (BrO_x) によるオゾンの消失プロセスが導入されているが、ヨウ素ラジカル (IO_x) による消失プロセスは含まれていない。そこで、海洋上からのヨウ化メチル (CH_3I) の放出・輸送プロセスやヨウ素化合物の気相化学反応計算を加えたモデルを開発する。CCM は大きな計算資源を必要とするため、組み込む化学反応を絞っておく必要があり、あらかじめ box モデルを用いて主要な反応式の特定を行う。それらを CCM に組み込み、ヨウ素化合物の化学反応計算を加えたモデルと加えないモデルとの差を取ることで、ヨウ素化合物によるオゾン消失プロセスや輸送プロセスが現在のオゾン量に及ぼす影響を推定する。

(2) 海洋から放出されたヨウ素化合物は大気中で光化学反応やエアロゾル上における不均一化学反応を受けて無機ヨウ素化合物 (I_y) に変化する。ヨウ素化合物のうち CH_3I 、次亜ヨウ素酸 (HOI) は大気中で気相・固相間の分離が起こっており、反応効率に影響するため、その効果を取り入れる。さらに、CCM で濃度計算を行なっている海塩粒子エアロゾル上における不均一反応を導入する。

(3) 開発した CCM を用いて、現在の観測で知られているオゾン破壊物質や温室効果ガス濃度を入力した実験 (現在気候実験)、及び、それに対して将来シナリオの濃度を入力した実験 (将来気候実験) を行う。現在気候、将来気候実験でヨウ素化合物の放出を行い、オゾンに対するヨウ素化合物の影響を推定する。ヨウ素化合物の放出量は観測値に幅があるため、これら現在気候、将来気候実験のいずれにおいても観測値の幅を考慮し、海面上の CH_3I 濃度に入力量の幅を持たせた実験を行う。

4. 研究成果

(1) 化学種濃度の時間発展を計算する box モデルを用いて、気相化学反応計算のうち CCM に組み込む化学反応を選定した。用いた box モデルは Brasseur and Solomon (2005) を基にしており、 O_3 、 $\text{O}(^3\text{P})$ 、 $\text{O}(^1\text{D})$ の他に HO_x 濃度変化を $10 \mu\text{s}$ の時間ステップで計算している。さらに CCM で出力された NO_x 、 ClO_x 、 BrO_x 濃度分布と光解離反応速度定数を入力することで、これらの触媒サイクルによるオゾン消失反応 (Lee et al. 2002) を表現している。この box モデルに対して、Brasseur and Solomon (2005) に示されている I-IO の触媒サイクルを導入した。反応速度定数は Saiz-Lopez et al. (2014) の値を用いた。光解離反応速度定数の算出を行うには CCM など放射伝達モデルが組み込まれたモデルを用いて光化学作用フラックスを計算する必要があり、この時点では box モデルに入力する光解離反応速度定数データがないため、 CH_3I などから光解離反応などで I を生じたと仮定して、一定量の I を入力した。入力する I の濃度を観測されている全無機ヨウ素化合物濃度に相当する 1 pptv 程度に設定すると、オゾン消失量が過大評価されることが分かった。そこで、図 1 の

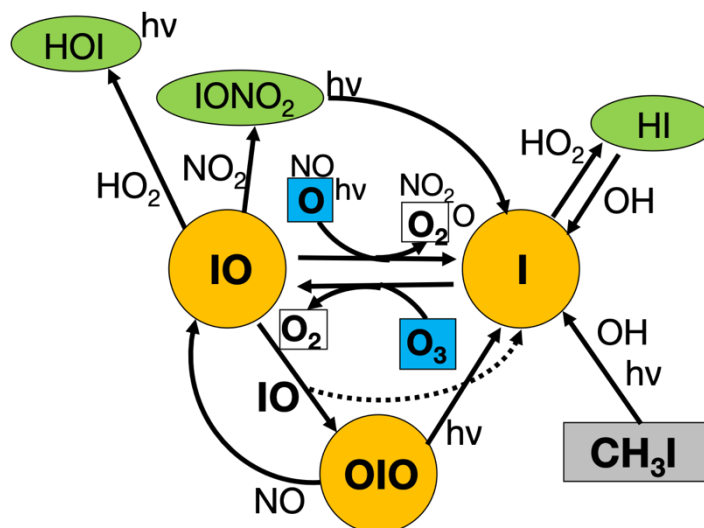


図 1 box モデルに組み込んだヨウ素化合物の気相反応

ような IO_x と HOI 等のリザーバーとの相互変換反応や、 CH_3I から IO_x を生成する反応等を組み込むことで現実的な消失量を再現した。CCM では計算上の制約から box モデルのように時間ステップを短く取ることができないため、オゾン消失の律速となるような反応の特定や IO_x に含まれる I 、 IO 、 OIO 比などの近似計算を行っている。それらの妥当性を box モデルの計算結果と比較することで検証した。その結果を基に、オゾン消失や光解離反応速度定数計算などを CCM に組み込む作業を行った。CCM では海洋から放出された CH_3I が大気中で光化学反応、及び OH ラジカルとの反応により I_y に変換されることを仮定している。このため、 I_y 濃度の推定には対流圏における OH ラジカル濃度が重要となる。そこで CCM に組み込まれていなかった非メタン炭化水素の反応を組み込み、観測に比べて過大評価であった OH 濃度のバイアスが小さくなり CCM の再現性が向上することを確認した。

これまでの CCM では化学モデルで 360 s の時間ステップを用いていたが、ヨウ素化合物の化学反応速度が速いため、box モデルで複数の時間ステップに設定した実験を行い、CCM に導入した近似計算に適切な化学モデルの時間ステップを評価した。box モデルの結果から、CCM の時間ステップを 60 s に設定した。化学モデルの時間ステップを短くしたために CCM 全体の計算コストが元の CCM の 3 倍程度になっており、長期計算を行うために化学反応計算コードの高速化を行ない元の CCM の 2 倍程度まで高速化した。

これらの作業により、ヨウ素化合物の気相化学反応計算を導入することができ、長期計算を行うことも可能となった。ヨウ素化合物の化学反応計算の有無だけが異なる 2 種類の CCM で 2000 年条件に設定した 110 年間の気候固定実験を行った。スピニングが終わったと考えられる後 100 年分の結果を比較すると、対流圏界面付近でヨウ素化合物の化学反応によるオゾン量の減少が確認された (図 2)。

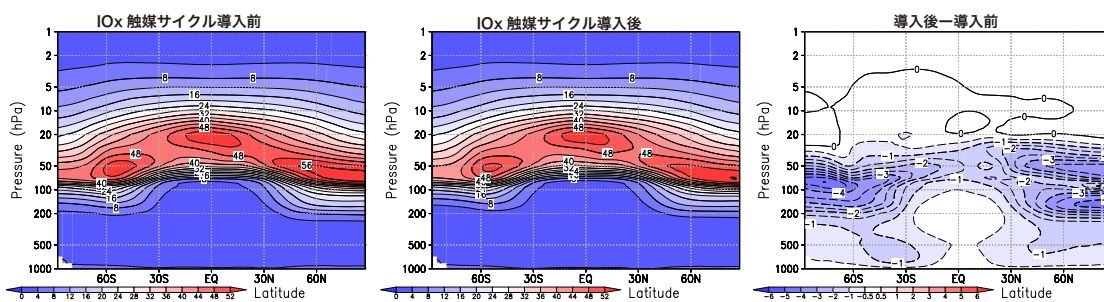


図 2 (左・中) 気相化学反応計算導入前後のモデル結果から 100 年間の平均をとったオゾン個数密度の緯度-高度断面図 ($\times 10^{14}/\text{cm}^3$)。 (右) 導入後から導入前の値を引いたもの

(2) 気相化学反応に加えて、ヨウ素化合物では気相・固相間の分離やエアロゾル上での不均一化学反応が起こっている。ヨウ素化合物のうち CH_3I 、 HOI の気相・固相間の分離を、塚田他 (1995) で推定されている分配係数を仮定して行なった。これにより成層圏の I_y が 1 割程度減少した。次に Saiz-Lopez et al. (2014) の反応パラメータを用いて、海塩粒子エアロゾル上での不均一化学反応計算を導入した。その結果、不均一化学反応により増加する成層圏の I_y 濃度は気相・固相間の分離により減少する分を相殺する程度であることが解析された。

(3) 気相・固相間の分離やエアロゾル上での不均一化学反応を含むモデルを用いて、現在気候実験、及び、将来気候実験を行った。現在気候、将来気候実験では、海洋上で放出する CH_3I 濃度に 0.2 pptv から 2.0 pptv の範囲で入力量の幅を持たせた。オゾン破壊物質や温室効果ガス濃度が同じ条件で CH_3I 濃度を徐々に変えた複数の実験を行なうことで、観測値の幅による不確実性を考慮してヨウ素化合物の影響を推定することが可能である。現在気候実験で CH_3I の入力量を徐々に増加させていくと、 I_y 濃度が追従して増加した。成層圏におけるオゾン個数密度の最大値は I_y 濃度増加に伴い徐々に低下するが、2.0 pptv の入力値付近では必ずしも I_y 濃度に追従しない。将来シナリオ実験で CH_3I の入力量を変えた場合には、0.2 pptv 程度の入力量では現在気候実験との差が不明瞭だが、1 pptv 以上の入力がある実験では現在気候実験よりも I_y 濃度が低下した。またオゾン個数密度の最大値の高度は将来シナリオ実験で高くなったが、 CH_3I の入力値依存性は変化しない。オゾン個数密度の最大値の高度の違いは、残差平均子午面循環の鉛直成分の違いと整合的であった。

<引用文献>

- ① Akiyoshi et al. (2009), A CCM simulation of the breakup of the Antarctic polar vortex in the years 1980-2004, J. Geophys. Res., 114, D03103, doi:10.1029/2007JD009261.
- ② Brasseur, G., and S. Solomon (2005), Aeronomy of the Middle Atmosphere, 3rd revised and enlarged edition, Springer.
- ③ Lee et al. (2002), Diagnosing ozone loss in the extratropical lower stratosphere,

- J. Geophys. Res., 107(D11), doi:10.1029/2001JD000538.
- ④ Saiz-Lopez et al. (2014), Iodine chemistry in the troposphere and its effect on ozone, Atmos. Chem. Phys., 14(23), 13, 119-13, 143.
 - ⑤ Saiz-Lopez et al. (2015), Injection of iodine to the stratosphere, Geophys. Res. Lett., 42, doi:10.1002/2015GL064796.
 - ⑥ Solomon et al. (1994), On the role of iodine in ozone depletion, J. Geophys. Res., 99, 20, 491-20, 499, doi:10.1029/94JD02028.
 - ⑦ 塚田他 (1995), 千葉市大気中における粒子状およびガス状塩素, 臭素およびヨウ素について, エアロゾル研究, 10(3), 214-220.
 - ⑧ Yamashita et al. (2010), Ozone and temperature response of a chemistry climate model to the solar cycle and sea surface temperature, J. Geophys. Res., 115, D00M05, doi:10.1029/2009JD013436.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 21 件)

- ① Kawatani, Y., K. Hamilton, L. J. Gray, S. M. Osprey, S. Watanabe, and Y. Yamashita (2019): The effects of a well-resolved stratosphere on the simulated boreal winter circulation in a climate model, Journal of the Atmospheric Sciences, 76(5), 1203-1226, doi:10.1175/JAS-D-18-0206.1. 査読有
- ② Kinoshita, T., K. Sato, K. Ishijima, M. Takigawa, and Y. Yamashita (2019): Formulation of three-dimensional quasi-residual mean flow balanced with diabatic heating rate and potential vorticity flux, Journal of the Atmospheric Sciences, 76(3), 851-863, doi:10.1175/JAS-D-18-0085.1. 査読有
- ③ Yamashita, Y., H. Naoe, M. Inoue, and M. Takahashi (2018): Response of the Southern Hemisphere atmosphere during winter and spring to the stratospheric equatorial quasi-biennial oscillation (QBO), Journal of the Meteorological Society of Japan, 96(12), pp. 587-600, doi:10.2151/jmsj.2018-057. 査読有
- ④ Hirota, N., M. Ohta, Y. Yamashita, and M. Takahashi (2018): Roles of intraseasonal disturbances and diabatic heating in the East Asian jet stream variabilities associated with the East Asian winter monsoon, Journal of Climate, 31(7), 2871-2887, doi:10.1175/JCLI-D-16-0390.1. 査読有
- ⑤ Yamashita, Y., M. Takigawa, K. Ishijima, H. Akiyoshi, C. Kodama, H. Yashiro, and M. Satoh (2017): Resolution dependency of numerically simulated stratosphere-to-troposphere transport associated with mid-latitude closed cyclones in early spring around Japan, SOLA, 13, pp. 186-191, doi:10.2151/sola.2017-034. 査読有
- ⑥ 山下陽介, 直江寛明, 井上誠, 高橋正明 (2019): 南半球の冬季から初夏における QBO の極渦への影響の解析, 月刊海洋, 51(2), 78-88. 査読無

[学会発表] (計 27 件)

- ① 山下陽介他 (2019): 冬季から初夏における南半球大気 of QBO に対する応答, 日本地球惑星科学連合 2019 年大会
- ② 山下陽介他 (2019): Analysis of relatively low ozone in Arctic spring during the QBO-westerly and solar-minimum years, 日本地球惑星科学連合 2019 年大会
- ③ 山下陽介他 (2019): The NICAM-SPRINTARS simulation of the long-range transport of black carbon using the K computer, 日本地球惑星科学連合 2019 年大会
- ④ Yamashita et al. (2019): NICAM-Chem: Atmospheric chemical transport model based on the non-hydrostatic icosahedral atmospheric model, The 1st R-CCS International Symposium
- ⑤ 山下陽介他 (2018): 冬季から初夏における南半球大気 of QBO に対する応答, 研究集会「季節予測システムの進展と異常気象の要因分析」
- ⑥ Yamashita et al. (2018): Two possible pathways of the Southern Hemisphere polar vortex response to the QBO from winter to early summer, SPARC General Assembly 2018
- ⑦ 山下陽介他 (2018): 南半球の冬季から初夏における QBO の極渦への影響の解析, 2018 年度大槌シンポジウム
- ⑧ Yamashita et al. (2018): Resolution dependency of numerically simulated stratosphere-to-troposphere transport associated with mid-latitude closed cyclones in early spring around Japan, EGU2018
- ⑨ Yamashita et al. (2017): Resolution dependency of stratosphere-to-troposphere transport estimated by the global multi-resolution simulations, AGU 2017 Fall Meeting
- ⑩ 山下陽介他 (2017): 日本周辺域の春先における発達した低気圧イベントに伴う成層圏から対流圏への物質輸送の解像度依存性評価, 日本気象学会 2017 年度秋季大会
- ⑪ 山下陽介, 秋吉英治 (2017): 3次元化学気候モデルへのヨウ素触媒サイクルの導入状況

の報告, 第 23 回大気化学討論会

- ⑫ Yamashita et al. (2017): The CCSR/NIES-MIROC3.2 CCM simulations of the low ozone anomaly in Arctic spring in the QBO-westerly and solar-minimum years, The fifth Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Science Workshop
- ⑬ 山下陽介他 (2016): 人工的なトレーサーを用いた対流圏界面付近の物質交換量推定, 日本気象学会 2016 年度秋季大会
- ⑭ 山下陽介, 秋吉英治 (2016): Box モデルを用いた下部成層圏ヨウ素触媒サイクルの検討、及び 3 次元化学気候モデルへの導入状況の報告, 第 22 回大気化学討論会
- ⑮ Yamashita et al. (2016): Influences of QBO and solar cycle on the Arctic ozone, Quadrennial Ozone Symposium (QOS) 2016
- ⑯ 山下陽介, 秋吉英治 (2016): QBO と太陽活動が北極域オゾンに及ぼす影響, 日本地球惑星科学連合 2016 年大会

6. 研究組織

(1) 研究協力者

研究協力者氏名 : 秋吉 英治

ローマ字氏名 : (AKIYOSHI, Hideharu)

※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。