

平成 21 年 4 月 30 日現在

研究種目：基盤研究 (C)  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18540439  
 研究課題名（和文） 大気オゾン全球分布の変動過程：化学・気候モデルによる 20 世紀再現実験  
 研究課題名（英文） Changing process of global ozone distribution : past reproduction with a chemistry coupled climate model.  
 研究代表者  
 須藤 健悟 (SUDO KENGO)  
 名古屋大学・大学院環境学研究科・准教授  
 研究者番号：40371744

研究成果の概要：本研究では、成層圏および対流圏における全球オゾン分布の変動とその気候影響について、主に数値モデルシミュレーションを用い、総合的に実験・解析を行った。まず、対流圏化学を中心に開発された化学気候モデル CHASER に成層圏化学過程の計算を導入し、成層圏・対流圏オゾンの同時シミュレーションを可能にした。さらに、本モデルを用い過去から現在までのオゾン変動とその気候影響についての再現計算を実施した。この結果、観測データに見られるような対流圏オゾン変動については、前駆汚染物質の増加による影響だけでなく、成層圏オゾン減少（オゾン層破壊）に伴うオゾン流入量減少の影響も重要であることが定量的に明らかになった。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,500,000	0	1,500,000
2007年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2008年度	700,000	210,000	910,000
総計	3,400,000	570,000	3,970,000

研究分野：大気化学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、気象・海洋物理・陸水学

キーワード：大気化学、成層圏オゾン、大気汚染、気候変動、化学輸送モデル、対流圏オゾン

## 1. 研究開始当初の背景

成層圏のオゾン（オゾン層）は生物に有害な紫外線を遮断するという重要な役割を持ち、気候変動に対しても無視できない要因である。一方対流圏中에서도窒素酸化物（NO<sub>x</sub>）や炭化水素類などの大気汚染物質から化学反応を介してオゾンが生成される。対流圏におけるオゾンはオキシダントとして植物・人体に有害であるだけでなく、強力な温室効果気体としても重要である。さらに対流圏オゾ

ンは水酸化ラジカル(OH)の生成や化学反応過程を介してメタンなどの他の温室効果気体および大気エアロゾルの濃度をも左右する。近年の衛星観測が示すように、成層圏では1980年頃から顕著なオゾン減少傾向が確認されており、南極春季の極域成層圏雲(PSCs)に伴うオゾンホールはその象徴ともなっている。その一方で対流圏中のオゾン濃度は逆に顕著な上昇傾向を見せており、北半球の地表観測からは20世紀中に地表付近の

オゾン濃度は 2~3 倍に増加したことが示されている。成層圏でのオゾン減少は主に大気中のフロン等のハロゲン化合物の増加に起因し、対流圏オゾン増加については大気汚染による NO<sub>x</sub> などのオゾン前駆気体の放出 (emission) 増加によるものと考えられる。しかしながら最近、このような成層圏・対流圏オゾンの変動過程を評価・予測する際には同時に気候変動の影響も無視できないことが研究代表者らの研究などにより認識され始めている (例えば Nagashima et al., 2001; Sudo et al., 2001, 2003)。特に今後予期される地球温暖化は温度・水蒸気・大気循環の変動を通して成層圏および対流圏のオゾン分布に大きな影響力を持つと予想され、将来の全球オゾン分布に対しての重要な変動要因と考えられる。また、成層圏および対流圏のオゾン変動はそれぞれが独立ではないことにも注意が必要である。特に下部成層圏のオゾン量はオゾンの成層圏・対流圏間交換量 (Stratosphere/Troposphere Exchange: STE) を決定し対流圏中のオゾン分布に大きな寄与を及ぼすため、成層圏オゾン変動が対流圏オゾン分布に与える影響も無視できない。さらにこのオゾン STE が将来の温暖化に伴う成層圏循環 (Brewer-Dobson 循環) の強化により顕著に増加する可能性もこれまでの研究により指摘されている (Sudo et al., 2003)。

したがって全球オゾン分布変動の正確な評価・予測のためには成層圏・対流圏オゾンの (1) 大気汚染 (前駆気体 emission)、(2) ハロゲン化合物変動、(3) 気候変動に対する各応答およびこれらの複合的な相互作用について総合的かつ定量的な理解が求められる (図 1)。

そこで本研究では成層圏・対流圏オゾン化学の同時シミュレーションが可能な化学・気候モデルにより全球オゾン場の長期再現実験を行い、20 世紀中に実際に観測された全球オゾン分布変動 (成層圏オゾン減少・対流圏オゾン増加) に対して上述の各変動要因がそれぞれどのように影響していたかを定量的

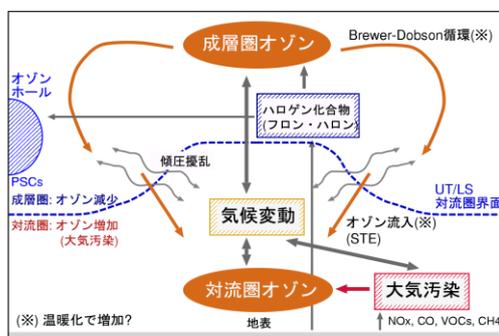


図 1. 成層圏・対流圏オゾンの変動要因と各要因間の相互関係。

に評価し、成層圏・対流圏オゾンの複合的な変動過程を解明する。

## 2. 研究の目的

本研究の具体的なターゲットは以下の通りである。

(1) 研究代表者が開発した化学・気候モデル CHASER (現状では対流圏化学中心) にオゾンホール化学も含めた成層圏化学過程を導入し成層圏・対流圏オゾンの同時高精度シミュレーションを可能にする。

(2) 20 世紀初頭から現在までの大気汚染による対流圏オゾン分布の変動および 1970 年代以降のフロン等ハロゲン化合物の増加による成層圏オゾン量の変動を CHASER モデルによる再現実験を通じてそれぞれ同時に明らかにする。特に成層圏・対流圏の複合領域であり、放射収支にも重要な役割を果たす対流圏界面領域 (Upper Troposphere/Lower Stratosphere: UT/LS) のオゾン変動に注目し、対流圏 (大気汚染) 起源のオゾン増加と成層圏 (ハロゲン) 起源のオゾン減少の相反する変動要因がどのように影響し合っていたかを各種観測データも交えて評価する。

(3) これら対流圏・成層圏のオゾン変動過程に対して現在までの気候変動 (年々変動および温暖化) が大気温度場・循環場の変動を通じてどのように影響していたかを実験・評価する。この際、これまでの温暖化による成層圏循環の強化や対流圏界面の上昇傾向などが成層圏・対流圏間のオゾン交換量 (STE) に与える影響 (上述: Sudo et al. [2003]) を解析する。

(4) 各変動要因 (大気汚染・ハロゲン量増加・気候変動) ごとの対流圏・成層圏オゾン分布変動を整理し、更にそれぞれが及ぼす放射強制力を計算することにより気候への影響 (feedback) を評価する。

## 3. 研究の方法

研究は全球化学気候モデル CHASER と各種観測データを使用し、成層圏・対流圏の全球オゾン分布の変動要因を組織的に解明する。H18 年度の段階で永島研究員の協力の下に、現状では対流圏化学中心の CHASER モデルの計算領域を成層圏・中間圏にまで拡張し、本モデルによる現在の気候値実験についてオゾン分布等の結果を各種観測データを用いて詳しく評価する (H19 年度)。この際オゾン・関連気体の成層圏・対流圏での各分布について最近の衛星データによる検証を行い、妥当性の確認を行った上で H20 年度には 20 世紀オゾン変動の再現実験を実施し、結果を

解析する。

#### 4. 研究成果

##### (1) 化学気候モデルへの成層圏化学の導入

本研究では全球対流圏化学モデル CHASER (Chemical AGCM for Study of Atmospheric Environment and Radiative Forcing) (Sudo et al., 2002a, b, 2003) を基本とし、対流圏オゾンおよび成層圏オゾンの変動とその気候影響を見積もる。CHASER 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)、海洋研究開発機構・地球環境フロンティア研究センター (FRCGC) で共同開発されてきた大気大循環気候モデル CCSR/NIES/FRCGC AGCM を土台としている。CHASER モデル中では化学反応に加え、大規模移流輸送、積雲対流による鉛直輸送、人為・自然起源地表 emission、雷による NO<sub>x</sub> 生成、湿性/乾性沈着が考慮され、光化学過程では対流圏光化学の基本サイクル

(O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-HO<sub>x</sub>-CO-CH<sub>4</sub>) と非メタン炭化水素 (NMHCs) の酸化反応、および不均一反応が考慮されている (表 1)。本モデルで計算されたオゾンや各オゾン前駆気体の分布は各観測値と整合的であり、オゾン生成・消滅過程の表現の妥当性が確認されている (Sudo et al., 2002b)。

本研究では、成層圏オゾン化学も含めた議論を行うため、CHASER モデルに成層圏化学過程を導入する作業を行った。まず、本モデルに以下の化学種をトレーサーとして新たに導入した。

- ClO<sub>x</sub> = Cl + ClO + (ClO)<sub>2</sub> + OC10
- Cl<sub>2</sub>, Br<sub>2</sub>
- BrO<sub>x</sub> = Br + BrO
- BrONO<sub>2</sub>
- HOBr, HBr, BrCl, CH<sub>3</sub>Br
- H1211, H1301
- OCS
- CFC11, CFC12, CFC113, HCFC22
- CH<sub>3</sub>Cl, CCl<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>

このうち、CFCs, HCFCs などのハロゲン前駆物質に関しては、年々ごとの地表濃度を与え、実験を行う。また、これらの化学種について、オゾン破壊に関する化学反応系 (約 50 本) をモデルに新しく導入した。この際、成層圏における光解離過程の正確な表現を行うため、CHASER で使用されていた放射スキームを新 version (MSTRN-X, Sekiguchi 2006) に更新した。さらに、極域におけるオゾンホール (オゾン破壊) を表現するため、Akiyoshi et al. (2004) による PSCs (極域成層圏雲) 生成スキーム、および PSCs 上の不均一反応スキーム (Nagashima et al., 2001) も導入した。モデル最上層の高度は CHASER では、40 km であ

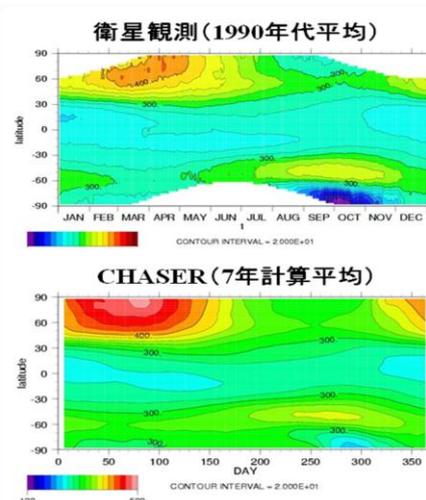


図 2. 带状平均オゾン全量 (カラム) の衛星観測データ (TOMS) との比較。

ったが、本研究では、約 80 km とした。

図 2 は、本研究で拡張された CHASER モデルにより計算されたオゾンカラムの時空間分布の衛星観測 (TOMS) との比較である。これによると、CHASER は、低緯度のオゾン量や、中高緯度のオゾン南北勾配については、観測をよく再現しているものの、北半球高緯度春季のオゾンは過大評価傾向であり、南極オゾンホールについては、80 DU 程度の過小評価が見られる。北半球高緯度春季のオゾン過大および南極オゾンホールの過小評価は、力学過程とリンクしている可能性も大きく、重力波パラメタリゼーションなどについて、再検討する必要がある。

##### (2) 過去の全球オゾン場の再現計算

上述のように改良された CHASER モデルを用い、20 世紀における全球オゾン場の変動再現実験を行い、計算結果の評価を行った。

地表オゾン変動の再現結果として、特に変動が大きかった 1970 年以降に着目し、北半球平均地表オゾン濃度の時系列を図 3 に示す。80 年代以降はヨーロッパで前駆気体エミッションの減少、北米でエミッション増加傾向の鈍化がみられるが、中国などのアジア域のエミッション増加が顕著であるため、ほぼ直線的なオゾン増加が計算されている。また、このような地表オゾン変動のシミュレーション結果を各地点について、オゾン長期観測データと比較したところ、定量的にも、ほぼ整合的であることが確認されている。

次に、全球オゾン変動場に対して、ハロゲン化学種による成層圏オゾンの破壊と、汚染物質 (前駆気体) 増加による対流圏オゾンの増加がそれぞれどのような役割をしていたかについて、実験結果の解析を行った。図 4

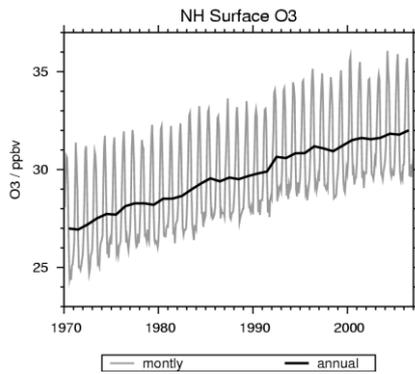


図 3. CHASER により計算された、北半球平均の地表オゾン濃度の経年変化 (1970-2006 年)。

は、CHASER で計算された対流圏オゾン増加、および成層圏オゾン減少の寄与を示す。大気汚染による前駆気体増加は北半球圏界面領域にオゾン増加のピークを生じさせることが分かる。

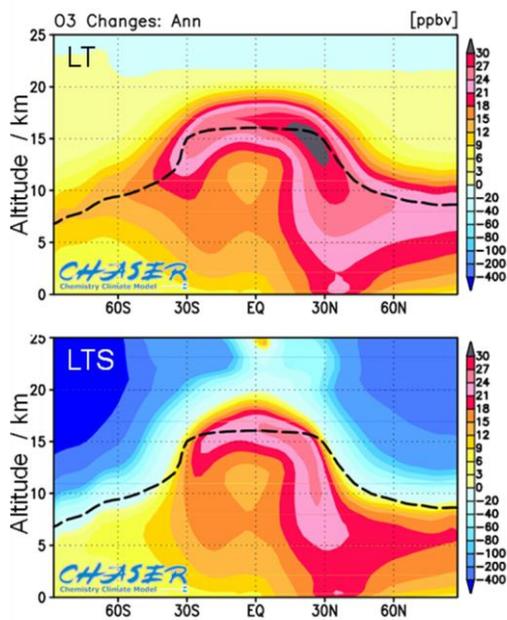


図 4. CHASER により計算された年平均オゾン変動分布 (2006 年と 1850 年の差分)。上は、対流圏オゾン増加 (大気汚染物質増加による) のみを考慮、下は、対流圏オゾン増加に加え、成層圏オゾン破壊も考慮した実験結果を示す。

さらに成層圏オゾン破壊の効果を考慮すると、成層圏におけるオゾン量が顕著に減少する。同時に、対流圏内においても有意なオゾン減少がみられるが、成層圏オゾン破壊により、成層圏から対流圏へのオゾン流入量が顕著に減少していることを反映したものである。

次に、このようなオゾン分布変動が観測と

整合的であるかを確認するため、オゾンゾンデ (WMO ステーション) による長期観測データと比較を行った (図 5)。CHASER は、観測から得られるオゾンの対流圏での増加および成層圏での減少を定量的にもよく再現している。また、成層圏におけるオゾン破壊の効果は、成層圏内に限らず、対流圏内でも顕著であることが示唆される。

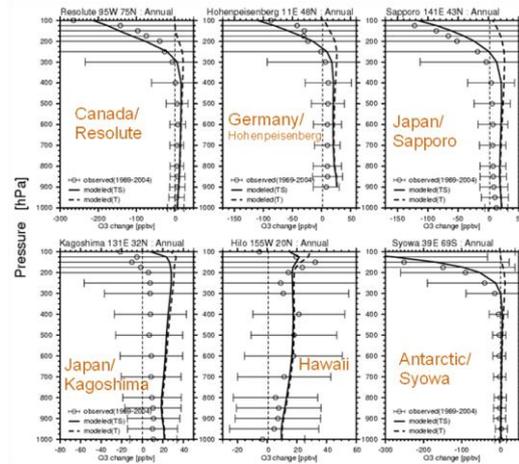


図 5. 1970 年から 2000 年までのオゾン変動の鉛直プロファイル。白丸はオゾンゾンデ観測データ、線は CHASER による計算結果であり、破線は対流圏オゾン増加のみを考慮した計算、実線はそれに加え成層圏オゾン減少を加味した計算をそれぞれ示す。

### (3) オゾン変動が及ぼす気候影響

#### ① 放射強制力の計算

対流圏オゾンの増加は、中東域を中心とするユーラシア大陸中央で大きな強制力 ( $> 1 \text{ W m}^{-2}$ ) を及ぼすことが分かる。また、オゾン増加の不均一な水平パターンは放射強制力の分布にも顕著に影響することも確認された。本研究で得られた、対流圏オゾン増加の放射強制力は、 $0.49 \text{ W m}^{-2}$  であり、二酸化炭素などの長寿命温室効果気体 (LLGHGs) の強制力 ( $0.22 \text{ W m}^{-2}$ ) と比較しても無視できない影響を及ぼすことが示唆される。

#### ② 気温平衡応答の評価

対流圏オゾン増加および成層圏オゾン減少に対し、気候平衡応答実験を実施した。ここでは、複数のシナリオを設定し、対流圏オゾン増加、成層圏オゾン破壊、LLGHGs の変動、それぞれの影響を詳しく見積もった。この結果、対流圏オゾン増加は、対流圏全域で昇温を生じさせ、特に熱帯域上部対流圏で  $0.5 \text{ K}$  以上の強い加熱を及ぼすことが分かった (図 6)。対流圏オゾン増加は同時に、熱帯域下部成層圏において、強い冷却をもたらしていることにも注意が必要である。成層圏オゾンの

減少も加味した場合、成層圏全域で降温となる。成層圏オゾンの減少は、対流圏オゾン(増加)量を減少させるため(図4)、対流圏にも影響し、対流圏オゾン増加による昇温を緩和するように働いている。

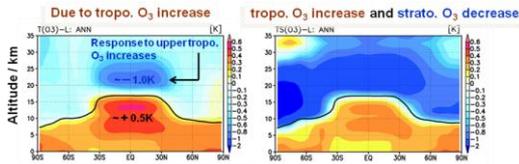


図 6. オゾン分布変動が及ぼす東西平均気温応答 (K)。左は、対流圏オゾン増加による影響のみ、右は、対流圏オゾン増加に加え、成層圏オゾン減少も考慮した実験。

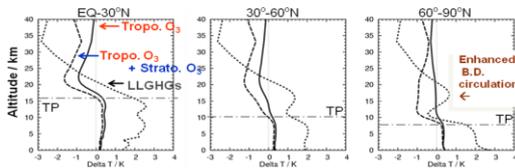


図 7. 北半球各緯度帯における気温応答プロファイル。実線は LLGHGs 増加、点線は対流圏オゾン増加、破線は対流圏オゾン増加および成層圏オゾン減少、をそれぞれ考慮した実験。

図 7 は、LLGHGs、対流圏・成層圏オゾンの各変動による気温応答プロファイル(各緯度帯)を示す。対流圏・成層圏におけるオゾン変動はともに成層圏で降温を生じさせるが、LLGHGs による降温よりも低い高度に影響している。高緯度では、LLGHGs 増加は成層圏において Brewer-Dobson 循環の強化を起こすため、下部成層圏で昇温(断熱圧縮による)をもたらす。しかしながら、オゾン変動に対しては、このような降温パターンは見られない。

表 1 に、全球・半球平均の気候応答をまとめる。対流圏オゾン増加は北半球で、 $0.3^{\circ}\text{C}$  以上の強い昇温を起し、成層圏オゾン減少の影響も無視できない。成層圏オゾン減少による  $0.04^{\circ}\text{C}$  の降温は、長波加熱の減少の効果だけでなく、対流圏へのオゾン流入量減少による間接的な効果も含んでいる。

表 1. オゾン、LLGHGs 変動による気候応答

	全球	北半球	南半球
対流圏 O <sub>3</sub> 増加	+0.28 °C	+0.31 °C	+0.25 °C
成層圏 O <sub>3</sub> 減少	-0.04 °C	-0.04 °C	-0.04 °C
全 O <sub>3</sub> 変動	+0.24 °C	+0.20 °C	+0.21 °C
LLGHGs	+2.29 °C	+1.78 °C	+2.80 °C

#### \*参考文献

Akiyoshi, H (2000), Modeling of chemistry and chemistry-radiation coupling processes for the middle atmosphere and a numerical experiment on CO<sub>2</sub> doubling with a 1-D coupled model, JMSJ, 78, 563-584.

Akiyoshi, H., et al., (2004) Ozone perturbations in the Arctic summer lower stratosphere as a reflection of NO<sub>x</sub> chemistry and wave activity, J. Geophys. Res., 109(D03), D03304, doi:10.1029/2003JD003632.

Nagashima, T., et al., “Future development of the ozone layer calculated by a general circulation model with fully interactive chemistry”, Geophysical Research Letters, 29, No. 8, 10.1029/2001GL014026 (2001).

Sudo, K. and M. Takahashi, Simulation of tropospheric ozone changes during 1997-1998 El Nino: Meteorological impact on tropospheric photochemistry, Geophysical Research Letters, 28, 4091-4094 (2001).

Sudo, K., et al., CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description, J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001JD001113 (2002a).

Sudo, K., et al., CHASER: A global chemical model of the troposphere 2. Model results and evaluation, J. Geophys. Res., 107, 10.1029/2001JD001114 (2002b).

Sudo, K., M. Takahashi, and H. Akimoto, “Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations”, Geophysical Research Letters., 30, 24, 2256, doi:10.1029/2003GL018526 (2003).

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

① Watanabe et al. (須藤:5 番目、永島:3 番目), Development of an Atmospheric General Circulation Model for Integrated Earth System Modeling on the Earth Simulator, J. Earth Simulator, 9, 27-85, 2009, 査読あり.

② Yashiro, H., S. Sugawara, K. Sudo, S. Aoki, and T. Nakazawa, Temporal and spatial variations of carbon monoxide over the western part of the Pacific Ocean, J. Geophys. Res.

doi:10.1029/2008JD010876, 2009, 査読あり.

- ③ Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, H. Tanimoto, Z. Wang, J.F. Gleason, and E. J. Bucsela, Validation of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006: Mount Tai Experiment 2006, Atmos. Chem. Phys., 8, 6577-6586, 2008, 査読あり.
- ④ Sudo, K., and H. Akimoto, Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, J. Geophys. Res., 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007, 査読あり.

[学会発表] (計 12 件)

- ① 須藤健悟, 秋元肇, “半球規模大気汚染のシミュレーション”, 第14回大気化学討論会, 地球フロンティア, 2008年10月31日.
- ② 永島達也、須藤健悟、秋元肇 (2008): 東アジア地域の対流圏オゾンに関する発生源別寄与率評価、平成19年度第14回大気化学討論会, 海洋研究開発機構 横浜研究所、横浜, 2008年10月31日
- ③ Sudo K., and H. Akimoto, Climate response to global ozone changes: impacts of tropospheric ozone increase and stratospheric ozone decrease during the 20th century, IGAC 10th International Conference, 7-12 September, 2008, Annecy, France.
- ④ Sudo K., Changes in tropospheric chemistry and their impacts on climate: roles of climate change and the stratosphere, SPARC 4th General Assembly 31 August - 5 September 2008, Bologna, Italy.
- ⑤ Sudo K., H. Akimoto, Climate Response to Global Ozone Changes: Impacts of Tropospheric Ozone Increase and Stratospheric Ozone Decrease During the 20th Century, AGU Fall meeting 2007, Sanfrancisco, 2007年12月10-15日.
- ⑥ 須藤健悟, 秋元肇, “全球オゾン変動に対する気候応答: 20世紀中の対流圏オゾン増加および成層圏オゾン減少の影響”, 第13回大気化学討論会, 名古屋大学, 2007年11月27-29日.

- ⑦ 永島達也、須藤健悟、秋元肇 (2007): タグ付きトレーサーによる日本の対流圏オゾンに対する発生源別寄与率評価、平成19年度第13回大気化学討論会, 名古屋大学、名古屋, 2007年11月27日
- ⑧ 須藤健悟, 秋元肇, “全球オゾン分布変動の気候影響: 化学気候モデルによる気候応答実験”, 日本気象学会2007年度秋季大会, 北海道大学, 2007年10月14-16日.
- ⑨ 須藤健悟, 秋元肇, “産業革命以前から現在までの対流圏オゾン変動が気候に及ぼす影響”, 日本地球惑星科学連合2007年大会, 幕張メッセ, 2007年5月21-22日.
- ⑩ 須藤健悟, 秋元肇, “対流圏オゾン変動の気候影響評価: 化学気候モデル実験による初期結果”, 第17回大気化学シンポジウム, 豊川市民プラザ, 2007年1月10-12日.
- ⑪ 須藤健悟, 高橋正明、秋元肇、“全球対流圏オゾンの変動要因: エミッション・気候・成層圏オゾンの各変動の影響”, 日本気象学会2006年度春季大会、つくば国際会議場、2006年5月21-24日.
- ⑫ Sudo, K., Akimoto H., Hirenzaki M., K. Iwao, and Takahashi M., Source attribution of global O<sub>3</sub> and CO: climatology and interannual variability, Joint IGAC/CACGP/SOLAS/WMO Symposium: Atmospheric Chemistry at the interfaces, 17-23 September 2006, Cape Town, South Africa.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

須藤 健悟 (SUDO KENGO)

名古屋大学・大学院環境学研究科・准教授  
研究者番号: 40371744

### (2) 連携研究者

永島達也 (NAGASHIMA TATSUYA)

独立行政法人国立環境研究所・大気圏環境研  
領域・研究員

研究者番号: 50391131

入江仁士 (IRIE HITOSHI)

独立行政法人海洋研究開発機構・研究員  
研究者番号: 40392956