

B-1 大気中の水・エネルギー循環の変化予測を目的とした気候モデルの精度向上に関する研究

(1) 対流圏エアロゾルおよびオゾン過程モデルの高度化に関する研究

名古屋大学 大学院環境学研究科	神沢 博
国土交通省気象庁気象研究所	
環境・応用気象研究部	千葉 長・柴田 清孝・田中 泰宙
独立行政法人国立環境研究所	
大気圏環境研究領域 大気物理研究室	日暮 明子
東京大学 気候システム研究センター	高橋 正明
九州大学 応用力学研究所	竹村 俊彦

<研究協力者>

地球環境フロンティア研究センター	
大気組成変動予測研究プログラム	須藤 健悟

平成15～17年度合計予算額	38,814千円
(うち、平成17年度予算額	12,809千円)

[要旨] 主にエアロゾル、オゾンの過程に着目し、それらの過程が全球気候モデルを用いた地球温暖化予測にどのように関係しているかを明らかにすることを目的として、以下の結果を得た。(A) 全球光化学・気候モデルを、対流圏オゾン・硫酸塩エアロゾル相互作用を表現できるように発展させ、既存の大気大循環気候モデルにオンラインで導入して開発したモデルに、人為起源物質のいくつかの将来の排出シナリオを与えて、2100年までの将来予測実験を行った結果、対流圏オゾンの将来予測およびその気候への影響を考える際には、温暖化による気候変化との相互作用も考慮に入れる必要があることが示唆された。(B) 熱帯域対流圏オゾンに見られる季節内振動(マッデン・ジュリアン振動)に着目し、モデル計算と衛星観測とを比較し、モデル再現性を確認するとともに、気候モデル中の水蒸気や積雲対流などの気象要素の表現の妥当性についても評価する試みを行った。(C) 全球エアロゾルモデルを簡略化することにより、大気海洋大循環結合気候モデルに結合したモデルを数十年～数百年の長期にわたって時間積分することが、現在使用可能なスーパーコンピュータで可能となった。(D) 雲微物理過程に基づいたパラメタリゼーションを全球エアロゾルモデルに導入したことにより、現実的なエアロゾル間接効果のシミュレーションを行い、多くの地域では、第2種エアロゾル間接効果だけでは雲・降水の実際的な長期変化は説明できず、フィードバックメカニズムを考慮しなければならないことが示されたが、一方、人為起源エアロゾルが非常に多い東アジア域だけは、エアロゾル増加による雲水量増加・降水量減少という第2種エアロゾル間接効果が具現している傾向が示された。(E) 衛星データによるエアロゾル光学特性(エアロゾルの光学的厚さとオンゲストローム指数)の1981年から約20年分の長期間にわたる全球分布を推定し、エアロゾル光学特性の時空間変動に関し、火山の影響の様相など、より広域で長

期に渡る知見を得るとともに、エアロゾルモデル結果の検証に有用な知見を得た。

[キーワード] エアロゾル、オゾン、放射強制力、化学-気候モデル、衛星観測

## 1. はじめに

産業革命以来の急速な人為起源気体の排出 (emission) の増加は、二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) やメタン (CH<sub>4</sub>) などの長寿命の物質のみならず、対流圏オゾン (O<sub>3</sub>) を中心とする高反応性物質やエアロゾルなどの短寿命の物質の大気中濃度を上昇させ、大気組成に多大な変化をもたらしてきている。対流圏のオゾンは、それ自体が強力な温室効果ガスであり、将来の気候変化・変動に重要な役割を果たすが、それに加え、オゾンを中心とした化学反応過程は、OH ラジカルの生成を通して、メタンやハロカーボン類などの他の温室効果ガスや汚染物質の大気中での寿命・濃度をコントロールする力 (大気酸化能) を持つ。また、気候変化・変動 (および酸性雨) にとって重要な硫酸塩エアロゾルの生成過程は、大気中の過酸化水素(H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)やオゾン、OH の濃度に大きく支配されるため、将来の硫酸塩エアロゾル分布も対流圏オゾン化学場に大きく依存しながら変動していくと考えられる。したがって、対流圏化学の変動が及ぼす気候・大気環境への影響の評価は重要であり、特に正確な気候変化・変動予測のためには無視できない課題と認識されている。

対流圏オゾンやエアロゾルは、大気中 (対流圏) での存在寿命が数日～数週間と短いため、空間的、時間的変動性が非常に高く、直接的な観測だけでは全球かつ定量的な分布の把握は難しい。そのため、それらの気候への影響を全球規模で考察するには、全球数値モデルによるシミュレーションが必要である。対流圏オゾンやエアロゾルのシミュレーションを行えるモデルはこれまでに何例か開発されているが、定量的には未だにモデル間で不一致が多く、これらの過程の理解に不確定性を生じている段階であり、モデル構築と同時に観測データを用いた詳細なモデル評価が必要である。さらに、対流圏オゾンやエアロゾルが及ぼす気候影響を考察する場合には、本サブテーマで構築を行っているモデルのように気候モデルと結合したオンライン化学結合モデルが必要である。加えて、上述のように、対流圏オゾンの光化学過程は硫酸塩エアロゾルとの結びつきが非常に強いため、現実的な気候変化・変動の将来予測のためには、対流圏オゾンのシミュレーションと結合して硫酸塩エアロゾルのシミュレーションを行えるモデル枠組みが要求される。

対流圏オゾンの生成・消滅の過程は主にオゾン前駆気体の emission 変化に左右されるところが大きいと考えられているが、水蒸気量、大規模循環/対流による輸送などの気象場の条件とも密接に関連している。そのため、対流圏オゾンの将来に向けての変動過程を議論する際にもオゾン前駆気体の emission と気象場の両方による変動成分をそれぞれ考慮に入れる必要があるが、今後の地球温暖化による気象場変動が実際どのように対流圏の光化学過程に影響するかということや対流圏の化学が変動を受けることによって逆に気候変化・変動にどのような影響があるかということについては現状ではよく分かっていない。対流圏エアロゾルの過程についても、地表面からのエアロゾルそのものの排出とエアロゾル源気体の排出、オゾン等もかかわったエアロゾル源気体からの大気中でのエアロゾルの生成、乾性沈着や湿性沈着によるエアロゾルの消滅などが重要であることは認識されているが、それぞれの過程に対する理解は、対流圏エアロゾルの気候影響を論ずるには、十分ではない。

産業革命以来、現在までの人為起源気候変化・変動要因が作り出した大気上端での放射強制力については、2001年発行のIPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) 第3次報告書 (TAR: Third Assessment Report) (IPCC TARと略称される) の第1作業部会報告書 (IPCC, 2001) によって、温室効果ガス (Well-mixed GHGs + O<sub>3</sub>) の約 +2.6 W/m<sup>2</sup>はほぼ確定的であること、一方、人為起源エアロゾルが作り出す放射強制力については、いまだに大きな不確定性があることが明らかになった。エアロゾルの放射効果には、直接効果 (Direct effect: エアロゾル自身が太陽放射を散乱・吸収する効果) と間接効果 (Indirect effect: エアロゾルが雲の凝結核となることによって雲の光学的・微物理学的特性を変化させる効果) がある。直接効果については、IPCC TARによると、その正味の効果は -0.43 W/m<sup>2</sup>であるが、100%程度の不確定性がある。最近の我々の研究グループによる値はその半分の約 -0.2 W/m<sup>2</sup>であり、エアロゾルの直接効果が作り出す大気上端での放射強制力は、IPCC TARの評価値より小さいことを示唆する (不確定性の範囲内ではあるけれども)。エアロゾルが作り出す間接効果の放射強制力の値には、もっと大きな不確定性がある。IPCCによると、第1種間接効果 (雲核数の増加による雲粒の収縮により反射率を高くするアルベド効果) の評価は約 -2 W/m<sup>2</sup>から0 W/m<sup>2</sup>と、大きくばらついている。IPCC TARのために行った我々のグループの大気海洋大循環結合気候モデルによるモデル実験値の間接効果は約-1.1 W/m<sup>2</sup>で、第1種間接効果と第2種間接効果 (雲粒の収縮に伴って雲粒が雨粒に成長するまでの時間が長くなって降雨量が減少するために雲水総量が増加する効果、雲の寿命効果ともいう) の値がほぼ半々であった。また、我々のグループによる1990年の衛星データを利用した間接効果の評価では、-1.2 W/m<sup>2</sup>程度であった。この値は海上での値であるが、陸上での値も同程度であると考えられる。これらの考察から、大気上端での放射強制力は、直接効果よりも間接効果の方が大きいと考えられる。今後は、さらに、最近実施されている観測キャンペーンデータとの比較を行うことによって、放射強制力 (特に間接効果) の評価の妥当性を高める必要がある。

上述したように、将来の地球温暖化に対するエアロゾルおよびオゾンの影響の確からしい評価のためには、エアロゾルモデルの大気海洋大循環結合気候モデルへの組み込みやエアロゾルとオゾンとの相互作用過程の大気大循環気候モデルへの組み込みなどを適切に行い、より包括的な化学-気候モデルを構築して、考察をすすめてゆく必要がある。

## 2. 研究目的

主にエアロゾル、オゾン過程に着目し、全球気候モデルを用いた地球温暖化予測に伴う不確定性の幅を明らかにすることを目的とする。これまでの研究により開発済みのエアロゾル、オゾン等の反応・輸送モデルを基礎とし、同モデルに存在する不確定性を明らかにするとともに、その幅を狭めるためのモデルの改良、高度化を行う。従来より行ってきた現在気候の再現性の検討だけでなく、モデルにより表現される気候変化・変動の妥当性についても議論を行うため、雲・降水-エアロゾル相互作用を考慮した全球気候モデルを開発する。モデルの検証には、衛星観測などのデータによるエアロゾル分布の長期解析などを有機的に活用する。

## 3. 研究方法

対流圏エアロゾル輸送モデルの高度化とエアロゾルの気候への影響評価を行う。具体的には、

東大・九大・環境研が開発の対流圏エアロゾル輸送・放射モデルSPRINTARS (Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species) (Takemura et al., 2000; 2002) および気象研が開発の対流圏エアロゾル輸送モデル MASINGAR (Model of Aerosol Species IN the Global AtmosphRe) (Tanaka et al., 2003; Tanaka and Chiba, 2005) の高度化とモデルを用いた気候への影響評価を行う。SPRINTARSは、東京大学気候システム研究センター (CCSR) と国立環境研究所 (NIES) で共同開発された大気大循環気候モデル CCSR/NIES AGCM を土台としている。地球環境フロンティア研究センター (FRCGC) も開発に加わった CCSR/NIES/FRCGC 気候モデルも活用する。MASINGARは、気象研究所 (MRI) と気象庁 (JMA) によって開発された大気大循環気候モデル MRI/JMA AGCM を土台としている。実施内容は、以下の6つに分けられる。

(1) 対流圏オゾン化学・エアロゾル結合大気大循環気候モデルによる予測／再現実験

対流圏エアロゾルモデルSPRINTARSと対流圏オゾンモデル CHASER (Chemical AGCM for Study of Atmospheric Environment and Radiative Forcing) (Sudo et al., 2002a, b) との結合を行う。なお、CHASER もCCSR/NIES AGCM を土台としている。本研究課題とは別途実施されている観測キャンペーンによるプロセス研究に基づいて行う。また、エアロゾルモデルを気候モデルに組み込んだ化学-気候モデルを開発し、エアロゾルの排出データとオゾン前駆物質の排出データとをモデルに与えて、エアロゾルとオゾンの気候変化に対する、特に、放射過程を通じての影響を調べる。本研究課題とは別途実施される地球温暖化実験結果を活用し、将来予想される排出データを与えて、タイムスライス実験を行い、温暖化に伴うエアロゾルおよびオゾン分布への影響を調べる。

(2) 大気海洋大循環結合気候モデルとエアロゾル輸送モデルのオンライン化

これまでは、エアロゾル輸送モデルの風、気温等の気象場は、あらかじめ気候モデルで計算しておいたものを使用 (オフライン) してきたが、エアロゾル分布が放射過程等を通して、気象場を変化させ、その気象場がまたエアロゾルの分布を変えるという過程を表現 (オンライン) する化学-気候モデルの開発を行い、その相互作用プロセスの影響を調べる。地球温暖化の100年以上の長期積分を行うため、開発済みのエアロゾル輸送モデルを、上記プロセスを表現するという条件下で簡便化する。

(3) エアロゾル間接効果モデルの気候モデルへの組み込みと気候変化実験

Nozawa et al. (2001) では、エアロゾルによる間接効果 (第1種のアルベド効果および第2種の寿命効果) を考慮した地球温暖化実験を行った。雲粒数密度はエアロゾル数密度に依存すると仮定し、その関係式は飛行機観測データに基づき経験的に求めた。また、エアロゾル数密度はSPRINTARSにより計算されたデータを用いた。しかし、上述の雲粒数密度とエアロゾル数密度の関係式は物理的根拠に欠けること、計算されたエアロゾル数密度はその検証に必要な観測データが乏しく信頼性が低いこと、等の故、より確かな物理的考察に基づくエアロゾル間接効果モデルの高度化が望まれていることから、本研究課題とは別途実施されている新規開発のエアロゾル間接効果モデルを気候モデルに組み込み、エアロゾル排出源データを与えて気候変化実験を行う。過去20年程度の気候再現実験から得られた雲微物理特性データを、衛星データによる観測データと比較・検討し、新規モデルの気候変化に対する応答特性を調べる。また、簡単な条件下での地球温暖化予測実験を行い、エアロゾル間接効果が温暖化に及ぼす影響についての研究も視野に入れて研究を行う。

(4) 対流圏エアロゾルモデルによる鉱物性ダストの長期変動の解析および大気化学輸送モデルの改良・開発

対流圏エアロゾル輸送モデルMASINGARを使って、対流圏エアロゾルのひとつである鉱物性ダストの発生、輸送、沈着に関する長期間、44年間(1958-2001年)、のシミュレーションを行い、放射強制力の評価や、ダスト発生量の長期変動の解析を行う。粒子形成に最も強く関与しているエアロゾルのひとつである硫酸塩エアロゾルおよびそれを核とした雲粒子の形成、成長に関するビン法モデルの開発を行う。モデルの鉛直分解能が、オゾン、エアロゾルおよびこれらに関連する物質、ガスの鉛直輸送、特に、対流圏と成層圏の交換過程にどの程度の影響を与えるかについて、いくつかの鉛直分解能のもとでの数値実験を行い、観測で得られるオゾン濃度などとの比較を行って精度検証を試みる。

(5) 全球エアロゾル長期変動の衛星観測データ解析

1981年からの約20年間のNOAA/AVHRRの2波長衛星データによる対流圏エアロゾル光学特性(光学的厚さとオングストローム指数)の分布の長期変動の解析を、衛星交代やセンサーの劣化を校正する手法を開発して行う。

(6) 対流圏エアロゾルモデルおよび衛星観測から導かれたエアロゾル光学特性の相互比較

エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数の2つの光学特性に関して、衛星観測MODISから抽出された値と全球大気エアロゾルモデルSPRINTARSとMASINGARで得られた各種エアロゾルを元に導出された2つの値、計3つの値の時空間分布を相互に比較検証する。

#### 4. 結果・考察

(1) 対流圏オゾン化学・エアロゾル結合大気大循環気候モデルによる予測/再現実験

本研究は、対流圏光化学過程を表現可能な全球化学-気候結合モデルの開発、およびこれを用いた対流圏オゾン・硫酸塩エアロゾルの気候影響評価を目的としており、特に対流圏オゾンによる気候変化の不確定性を明らかにすることを旨とする。既存の大気大循環気候モデルにオゾンを中心とした各種化学過程をオンラインで導入して対流圏オゾンの全球分布および収支を計算し、それらの詳細な評価を行う。また、硫酸塩エアロゾル分布は気候変化・変動にとって重要な要素であり、その大気中での生成過程は対流圏オゾン化学と密接に関連するため、硫酸塩エアロゾルの生成過程も上記化学モデルにオンラインで組み込み、対流圏オゾン・硫酸塩エアロゾル相互作用モデルの構築を行う。さらにエアロゾル・大気化学場の気候影響を総合的に論ずるには、硫酸塩以外のエアロゾルについても同時に評価可能な枠組みが必要である。そこでCHASERモデルに硫酸塩以外のエアロゾル種のシミュレーションも行えるようにする結合作業を行い、対流圏化学・エアロゾル完全結合気候モデルを構築し、特にエアロゾル種の濃度分布について計算結果の評価を行う。さらに、対流圏オゾン化学、硫酸塩エアロゾルの変動過程についてIPCC SRESのシナリオに従った将来予測実験を行い、将来の人為起源 emission 変化および気候変動(温暖化)の影響を詳しく解析する。また、このような予測実験を行う一方、産業革命以前から現在までの対流圏オゾン変動についても再現実験を実行し、観測データを用いたモデル再現性評価を行った上で、エアロゾル種と同様に不確定性の高い対流圏オゾンの放射強制力を見積もる。最後に大気化学場変動と気象場変動との相互作用の観点から熱帯域対流圏オゾンの季節内振動に着目した解析を行い、モデル内部の気象場・化学場の表現の妥当性を検討する。

① CHASER-SPRINTARSによる化学・エアロゾル結合モデルの構築

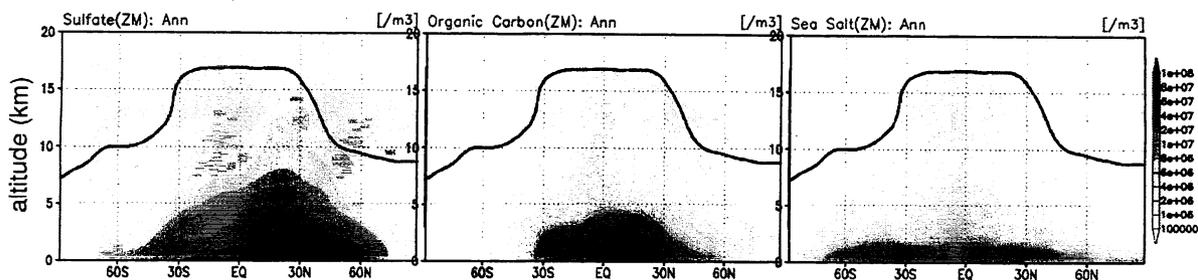


図1：化学・エアロゾル結合モデル（CHASER-SPRINTARS）で計算された各種エアロゾルの年平均東西平均数密度分布( $m^{-3}$ )。硫酸塩（左）、有機炭素エアロゾル（中）、海塩（右）。対流圏界面を実線で示す。

化学モデル CHASER に、エアロゾルモデル SPRINTARS を土台としたエアロゾル過程を導入する作業を行った。CHASERモデルは、CCSR/NIES AGCM を土台として、対流圏における化学反応過程を AGCM 中の力学・物理過程と結合して計算を行う。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  $NO_x$  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( $O_3$ - $NO_x$ - $HO_x$ - $CO$ - $CH_4$ ) 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。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)。今回結合を試みたエアロゾル関連過程としては SPRINTARS モデルを基本としたが、硫酸塩エアロゾル（および一部の有機炭素エアロゾル：二次生成有機エアロゾル）に関しては、これまでのように CHASER 内で計算を行う。特に硫酸塩エアロゾル ( $SO_4^{2-}$ ) の雲水中での生成過程では、土壌粒子( $Ca^{2+}$ ,  $Fe^{3+}$ , etc.)やアンモニウム( $NH_4^+$ )などの陽イオンによる中和過程も考慮し、化学場とリンクしたより現実的なシミュレーションを可能とした（※アンモニウムのシミュレーションとしては熱力学平衡モデルを導入し、硝酸・硫酸・アンモニアの系における気相/エアロゾル相の平衡状態を表現するコードを検討中であり、このコードを使った計算は試験的にのみ行う）。さらに、上述のように構築された大気化学・エアロゾル結合モデルについて試験実験を行い、特に化学・エアロゾル関連の結果について、CHASER/SPRINTARS両モデル単体による結果と比較し、整合性のチェックを行った。その結果、CHASER コンポーネントで計算している化学種関連の結果については、CHASER単体で計算を行った場合と同様のシミュレーションが行えていることが確認されたが、一部のエアロゾル関連の出力（エアロゾル濃度分布、光学的厚さ、数密度-CCN分布）に関しては、SPRINTARS単体で計算した場合と有意な差異が見られることがあることを確認した。この大きな原因は、特に硫酸塩エアロゾルについて今回構築を行ったモデルではCHASER内で計算を行っていることであり、SPRINTARSと比較すると特に中上部対流圏で多めの硫酸塩を計算している。例として、図1に本化学・エアロゾルモデルで計算されたエアロゾル数密度(理想的なCCNとして)の東西平均高度分布を示す。他のエアロゾル種についても、湿性沈着過程に関して気相化学種との整合性をとるため、CHASER内の湿性沈着スキームで計算を行うようにしており、SPRINTARSに比べてやや違いを生じる場合もある

が、エアロゾルの基本的な分布パターン・量は近い。エアロゾル量に関してはさらに詳しく評価を行う必要があり、化学・エアロゾル過程のパラメータ調整もしくは気候モデル側の放射過程、大規模凝結過程のパラメータ調整による再チューニングも必要となる可能性がある。

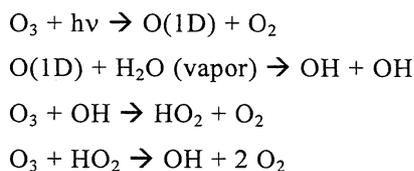
## ② 将来予測実験

### (a) 温暖化の対流圏オゾンへの影響

温暖化・大気組成変化相互作用の見通しを得るため、将来の温暖化（人為起源の温室効果ガスの増加に起因する気候変動）が化学過程（特にオゾン分布）にあたえる影響（フィードバック）についてCHASERを用いて実験を行った。ここではIPCCから提案されている各emissionシナリオに基づいてCHASERモデルで行った対流圏オゾンや硫酸塩エアロゾルなどの大気汚染物質の将来予測実験を報告する。本研究では窒素酸化物NO<sub>x</sub>や一酸化炭素COなどのオゾン前駆気体の放出(emission)変化のみの実験(Exp1)とemission変化に加え気候変動も考慮した実験(Exp2)の2種類の実験を実行した。これらの実験では将来のemission変化、気候変動はともにIPCC SRES A2シナリオ（高emission増加シナリオ）に従い、Exp2の気候変動についてはモデル中でCO<sub>2</sub>などの温室効果気体濃度を増加させるとともに、CCSR/NIES 大気海洋大循環結合気候モデルにより予測された海面水温(SSTs)と海氷(Sea-ice)分布を与えた。

オゾン前駆気体のemission変化のみの変動を考慮した実験(Exp1)では、特にemission増加が大きい東アジア域で光化学的なオゾン生成が増加し顕著な地表オゾン増加が計算された。また、東アジア領域の上部対流圏においても、地表からの前駆気体の活発な鉛直輸送によりオゾン生成が強化されるため、オゾンが偏西風に乗り全球規模での影響が極めて大きいことが分かった。この実験(Exp1)では、1990年から2100年にかけてほぼ直線的な対流圏オゾン総量の増加が計算され、2050年で23%、2100年で約40%の増加が予測された。

しかし、このようなエミッション増加による対流圏オゾンの変動過程は、将来の地球温暖化の影響も考慮に入れると状況が変わってくるということが分かった。図2は2100年の予測実験で温暖化も考慮した場合(Exp2)としない場合(Exp1)で東西平均オゾン分布にどのような差が出るかを示す。温暖化を考慮すると、対流圏下層では水蒸気増加により次の反応によるオゾン破壊が活発化するためオゾン増加は緩和される：



一方、中低緯度上部対流圏(300 hPa)では温暖化によりオゾン増加が計算されているが、これは温暖化の進行とともに成層圏・対流圏の子午面循環（ブルーワー・ドブソン循環およびハドレー循環）が強化され、成層圏からのオゾン流入量が大きく増加した結果であることが確認された（Sudo et al., 2003）。したがって、対流圏オゾンの将来予測およびその気候への影響を考える際には、気候変動（温暖化）との相互作用も考慮に入れる必要があることがこの結果から示唆される。

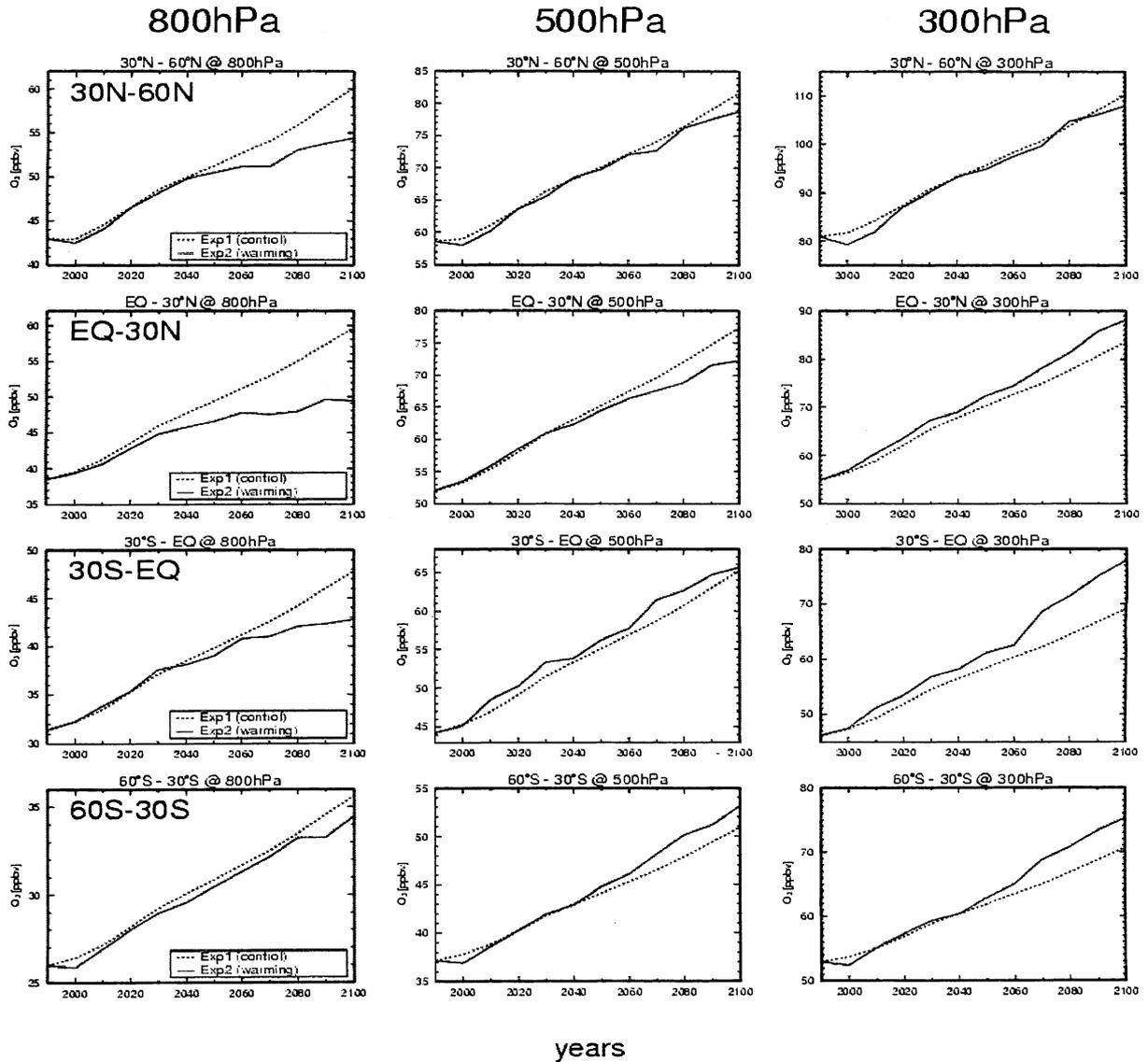


図2：SRES-A2 シナリオを用いて計算した東西平均対流圏オゾン濃度（各高度、各緯度）の時間発展（1990～2000年）。実線：emission変化+温暖化を考慮した実験(Exp2)、破線：emission変化のみを考慮した実験(Exp1)。

(b) 硫酸塩エアロゾルの時間発展

また本実験ではメタンや硫酸塩エアロゾルの予測も行ったが、これらの将来の分布についても化学反応を通じてemission変化によるオゾン化学場(OHラジカル、 $H_2O_2$ 濃度場など)の変動、さらに温暖化による変動に大きく依存しながら変化していくことを明らかにした。図3は本実験で得られた今後100年間の硫酸塩エアロゾル全球総量の時間発展である。ここで注目すべきは硫酸塩エアロゾルの前駆気体である  $SO_2$  の emission 自体は 2050 年以降減少に向かうが、硫酸塩の総量は 2050 年以降も比較的高いレベルが維持されていることである。これは特に2050年以降、 $SO_2$  を酸化するのに必要な OH、 $H_2O_2$ 、およびオゾンなどがインドなどの低緯度領域で増加し、 $SO_2$  から硫酸塩( $SO_4^{2-}$ )への変換効率が上昇したことに起因する。図3では温暖化も考慮すると(Exp2)、さ

らに硫酸塩エアロゾル量が増加することが示されているが、これは温暖化による対流圏中の水蒸気増加により OH や H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> などの生成がさらに活発化するからである。このように本実験では硫酸塩エアロゾルが SO<sub>2</sub> の emission だけではなく、化学反応を介して対流圏オゾン化学および温暖化ともリンクしながら変動して行くことが示唆された。

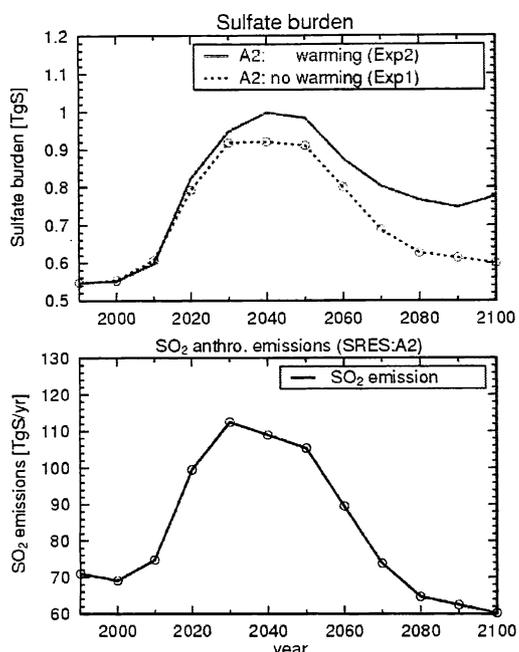


図 3 : SRES-A2シナリオを用いて計算された硫酸エアロゾル全球総量 (TgS) の時間発展 (上図)、および SRES-A2シナリオの人為起源 SO<sub>2</sub> emission の時間発展 (下図)。上図において、実線 : emission変化 + 温暖化を考慮した実験(Exp2)、破線 : emission変化のみを考慮した実験(Exp1)。

(c) 排出シナリオ間の違い (排出シナリオ依存性)

上述では大気化学過程・温暖化相互作用についての基礎的な予測実験をIPCCの SRES-A2 シナリオに従って行った研究(Sudo et al., 2003)を報告した。IPCCから提唱されているSRESシナリオは、A2 以外にも複数通り存在し、それぞれのシナリオ間での違いについても評価することが重要である。本研究ではA2 シナリオ (高emission増加) に加え、A1B (中emission増加) およびB1 (低emission増加) の emission 時間発展シナリオについても実験を行った。上述のA2シナリオ実験と同様に窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) や一酸化炭素 (CO) などのオゾン前駆気体の排出(emission)変化のみの標準実験 (Exp1)とemission変化に加え気候変化・変動 (SSTs、Sea-ice分布変動および CO<sub>2</sub> 濃度変動を与える) をも考慮した実験(Exp2)との2種類の実験を実行した。

まず、emission 変化のみのExp1 ではシナリオごとに大きく異なった対流圏オゾン変動が計算された。全球的に最もオゾン増加が大きかったのはやはりA2 シナリオであり、A1B やB1 シナリオでは2050-2100 年で北米やヨーロッパ周辺でオゾン減少となった。地表でのオゾンの増加率を見ると、2000-2100年の100年間にA2シナリオでは東アジア域を中心に+40%程度の増加が計算されているが、B1シナリオでは同期間で逆に北米中緯度で-10%以上の減少となっており、東アジア域でも-5%の減少が計算された (図示せず)。

次に各シナリオの2100年について、温暖化の東西平均オゾン分布への影響を解析した。emission 変化に加えて温暖化も考慮した実験(Exp2)の結果を見ると、emission変化のみの場合(Exp1)に比べて、高度 5 km 以下の対流圏下層 (特に熱帯域) でオゾン濃度が10-20%減少 (特に温暖化の進行

が大きいA2およびA1Bシナリオの場合) することが分かった。これは前述のように温暖化に伴う水蒸気増加により、オゾンが光化学的に破壊され易くなったことを反映するものである。逆に中上部対流圏熱帯域では10%程度のオゾン濃度上昇が見られ、特に南半球で顕著である (A2およびA1Bシナリオの場合)。これに関しては、前述のA2シナリオ実験と同様に、気候変化・変動 (対流圏における温暖化) により大気の循環が大きく変動した結果であり、特に成層圏における循環 (Brewer-Dobson循環) が強化されたことにより、成層圏からのオゾン流入量が顕著に増加したことにより起る。成層圏循環の強化により、熱帯域下部層圏では上昇流の増加、中・高緯度の下部成層圏では下降流の増加が起こり、これらに対応するように、熱帯域対流圏界面付近ではオゾン濃度の減少、中・高緯度では増加が計算されている。なお、温暖化 (気候変化・変動) の度合いが比較的小さいB1シナリオでも、A2、A1Bシナリオと同様・同程度の影響が計算されており、どのシナリオに従っても将来の温暖化は今後の対流圏オゾン化学にとって無視できない要因であることを示している。

将来の温暖化は、オゾン分布のみならず光化学反応を介して、他の物質・プロセスにも大きく影響を与える。例として、図4に今回の将来実験で予測された全球平均メタン濃度の時間発展を示す。まず、温暖化を考慮しない標準実験 (Exp1:点線) に注目すると、シナリオにより異なったメタンのemissionが想定されているので、メタン濃度の時間発展の仕方は大きく異なることが分かる。A2シナリオの場合には、2100年までに現在の濃度 (~1.8 ppmv) から大きく増加し、4 ppmv近くにまでなることが計算され、21世紀中盤からのemission減少を想定しているA1B、B1シナリオにおいては、2100年では現状と同じ程度かそれよりも低い値になることが計算されている。このように、emission変化の仕方によって異なった時間発展をするが、どのシナリオについても温暖化を考慮すると (Exp2)、20-30%の顕著なメタン濃度減少の効果があることが分かる。これは対流圏の温暖化に伴う水蒸気量増加・温度上昇により、メタンを破壊する化学反応 ( $\text{CH}_4 + \text{OH} \rightarrow$ ) が活発化することを反映している。

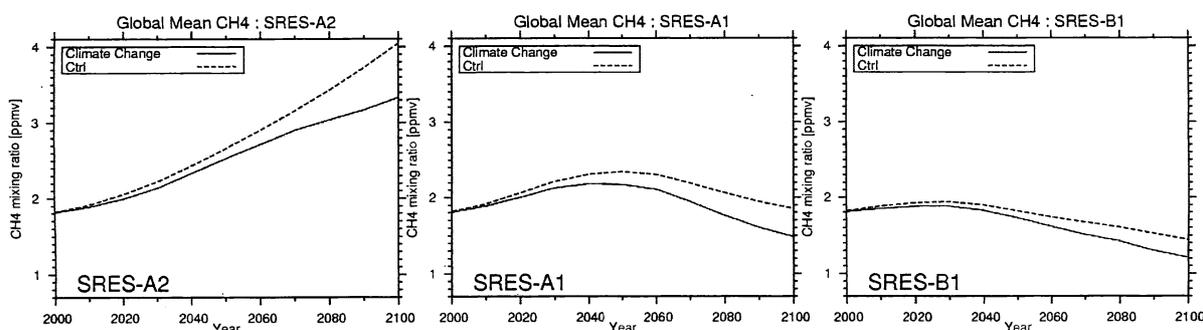


図4： SRES各シナリオに従って計算された全球平均メタン濃度(ppmv)の時間発展。実線：温暖化実験(Exp2)、破線：標準実験(Exp1)。

さらに、硫酸塩エアロゾルの全球総量についても、温暖化を考慮した実験(Exp2)では、標準実験 (Exp1:emission変化のみ) と比較してより大きな値が計算され、2100年の時点では、Exp2の硫酸塩量は Exp1のものよりも (シナリオによらず) 20-30%大きいことが分かった (図示せず)。これは温暖化による対流圏中の水蒸気増加により、OH や  $\text{H}_2\text{O}_2$  などの生成がさらに活発化し気相お

よび雲水中の硫酸塩生成が増加したためである。したがって、この実験結果により、将来のemission変化および気候変化・変動がどのシナリオに従った場合においても、硫酸塩エアロゾル分布は化学反応を介して温暖化と強くリンクしながら変動してゆくことが示唆される。

### ③ 過去の対流圏オゾン変動：再現実験と放射強制力の推定

過去から現在までの対流圏オゾンの変動について化学-気候モデルを用いて再現実験を行い、観測との比較を行った上で、その変動要因についての考察を行い、放射強制力の見積もりを行った。実験対象期間は1850-2000年とし、この間の対流圏オゾン前駆気体の産業起源emissionに関してはEDGAR emission inventoryの枠組みで作成されたデータセット(HYDE)を用いた。森林火災起源のemissionについては産業革命以前のemission量(E0)と人口の関数(P)として表現した：

$$E = E(P, E0)$$

本研究では、E0として現在のemission量の10%を仮定した。また、過去の船舶や航空機からのemissionについても、航行・飛行の全球トレンドデータを用いて再現した。本実験ではCCSR/NIES/FRCGCの気候モデルを土台とした化学-気候モデル(CHASER)を用いた。気象場については海面水温や海水分布データ(HadISST & Hadice)および過去の温室効果気体濃度(CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>Oなど)を与え、気候モデル中でオンラインで計算される(この実験により1850-2000年で+0.6°Cの全球平均地表気温上昇が計算されている)。さらに1970年代以降のオゾン層破壊による成層圏オゾン減少を表現するため、モデル中の対流圏界面よりも高い高度の東西平均オゾン分布をTOMSやSAGE-I/IIなどの衛星観測により得られたデータ(SPARC Ozone Trend Estimate)に緩和(ナッジング)する操作を行った(1970年以降に適用)。

まず、過去の地表付近のオゾン濃度について本再現実験の結果と観測データの比較を行った。観測に見られるような1960年から2000年にかけての顕著なオゾン増加傾向は本再現実験でも定量的に良く捉えられていることが確認された。しかしながら、1850-1900年の地表オゾン濃度については、これまでの先行研究例と同様に、モデルは観測値を50-100%の範囲で過大評価する傾向にあった。モデルによる地表オゾンの過大評価傾向の原因としては、土壌からのNO<sub>x</sub>放出や雷によるNO<sub>x</sub>生成などの自然起源のemissionの過大評価、気候モデル中の気象場の妥当性、臭素(Br)などのハロゲン化学種によるオゾン破壊の可能性などが挙げられる。産業革命以前の絶対濃度(量)は放射強制力の見積もりに大きく影響するので、上述のような可能性に関して感度実験を行い、より詳しく評価することが必要である。図5は各高度においてモデルで再現された東西平均オゾン濃度の時間発展を示す。これによるとどの領域においても1960年以降に顕著なオゾン増加が起きていることが分かる。しかしながら、1980年から2000年の間ではオゾン増加傾向が鈍化もしくは停止しているように見える。これは1970年代後半から顕在した成層圏オゾンの減少傾向と対流圏の温暖化傾向に帰することができることを本研究の解析は示している。中上部対流圏(500, 300 hPa)のオゾン増加傾向の弱体化は主に成層圏オゾン減少により成層圏からのオゾン輸送量が減ったことを反映するものである。対流圏下層については、同様に成層圏からのオゾン輸送量減少の影響もあるが、成層圏オゾン減少に伴う対流圏への入射紫外光増加によりオゾンの光化学的寿命が短くなったことが大きく影響している(地表付近でのオゾンの光化学的寿命は1~数週間)。さらに1980年以降の顕著な温暖化傾向による水蒸気増加も同様にオゾンの光化学寿命を短くし、地表付近のオゾン増加抑制に働く。図6は過去

から現在までの対流圏オゾンの光化学的な生成効率（単位NOx emission量に対するオゾン増加量）を示す。オゾンの生成に関わる光化学反応の非線形性により、全球のオゾンの生成効率はNOx濃度の上昇に伴って顕著に減少していくこと分かり、1900年から2000年の間で50%以上の減少が計算されている。これは先行研究（Lamarque et al., 2005）によく一致する結果である。南北半球の違いに着目すると、南半球ではNOx emission量、対流圏オゾン量がともに小さいため、比較的高いオゾン生成効率が維持されていることが分かる。1980-2000年で南半球のオゾン生成効率が大きく減少しているが、これは成層圏オゾン減少による対流圏への入射紫外光の増加および、温暖化に伴う水蒸気増加による対流圏オゾンの光化学的寿命の減少を反映するものと考えられる。

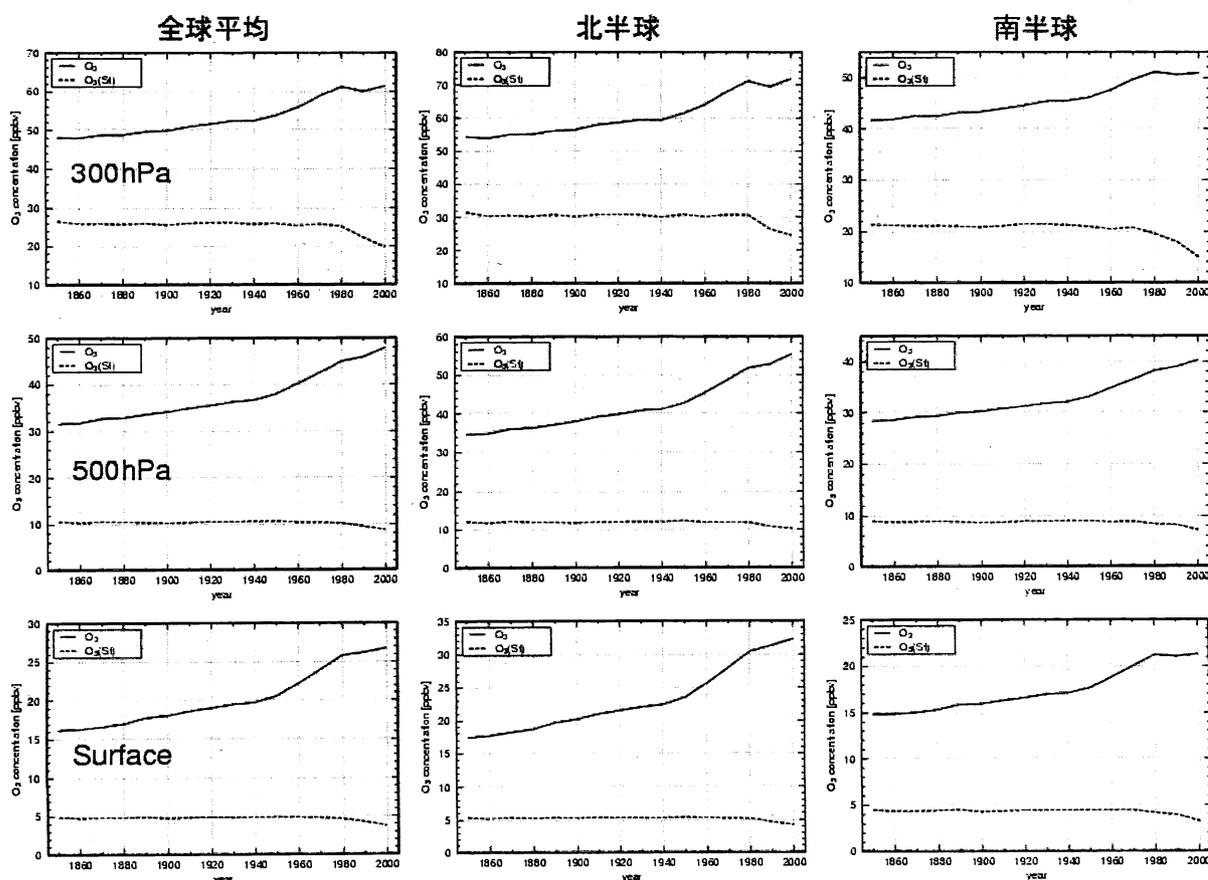


図5：各高度（地表、500 hPa、300 hPa）における対流圏オゾン濃度の時間発展（1850-2000年）。実線はオゾン濃度、点線は成層圏起源のオゾン濃度をそれぞれ示す。

本再現実験で計算された対流圏オゾン変動による放射強制力（瞬時強制）は、全球平均で $0.47 \text{ Wm}^{-2}$ （長波 $0.41$ 、短波 $0.06 \text{ Wm}^{-2}$ ）であり、メタン変動による放射強制力と同等であることが示された。計算された対流圏オゾンの放射強制力分布にはエアロゾルのそれと同様に顕著な地域性があり、東アジア域などの陸地上で大きな強制力が計算され、このような領域では大きな気候影響を及ぼす可能性があることが示唆された。図6が示すように過去に遡るほどオゾンの生成効率は高くなるので、過去の対流圏オゾン量の再現結果は実験で想定する過去のemission量

に敏感に反応し、このことが放射強制力の見積もりに不確定性を与える可能性があることに注意が必要であり、今後も詳細な議論が求められる。

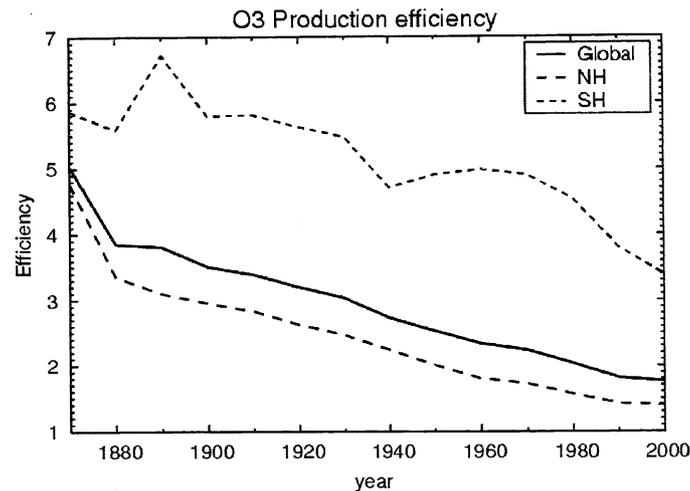


図6：過去から現在まで（1870-2000年）の対流圏オゾンの化学的生成効率の変遷。生成効率はNO<sub>x</sub>エミッションの単位増加量（1TgN）当たりの対流圏オゾン全球総量の増加量（TgO<sub>3</sub>）で定義する。

#### ④ 熱帯域オゾンの季節内振動と気候モデル評価

熱帯域で見られる比較的短周期の対流圏オゾンの振動（季節内振動）に着目し、衛星観測データとの比較を行い、化学-気候モデル中の気象場表現およびその大気化学過程との相互作用表現について評価を行った。熱帯大気において地上気圧や循環、降水・対流活動などは30-60日程度の変動を示すことが知られており、この変動は、マッデン-ジュリアン（MJO）振動と呼ばれている。Ziemke and Chandra (2003)はこの熱帯気象場の振動に伴う水蒸気・積雲対流の変動が光化学過程や輸送過程を通じて熱帯域対流圏オゾン量に影響を与え、対流圏オゾンの衛星観測データにもMJOに対応した振動が存在することを示唆した。ここではZiemke and Chandra (2003)が解析に用いた時期のオゾン場を対象として、化学-気候モデルにより再現実験を行い、モデル計算の評価を行った（モデル中のu,v,Tなどの気象変数はECMWFデータに緩和させた）。

図7は衛星観測による熱帯域対流圏カラムオゾン量の時系列（Ziemke and Chandra, 2003）と化学-気候モデルによる再現結果である。衛星データに見られるようなオゾンの振動成分がモデル結果にも見られることが確認できる。Ziemke and Chandra (2003)はこのよな対流圏オゾンの振動を上部対流圏の水蒸気振動に結びつけ、積雲対流による鉛直輸送の変動により対流圏のカラムオゾン量が変動することを示唆した。モデル再現結果では対流圏カラムオゾンと積雲対流フラックスは概ね逆相関にあり、Ziemke and Chandra (2003)の示唆と整合的である。しかしながら、モデルに見られる対流圏オゾン振動の振幅は衛星観測に比べて概して小さいようである。このことと、モデル中の対流圏下層の水蒸気変動は観測と良い一致が見られることを考慮すると、モデル中の熱帯域積雲対流自体、もしくはそれに伴う鉛直輸送過程が過小評価である可能性が示唆される。

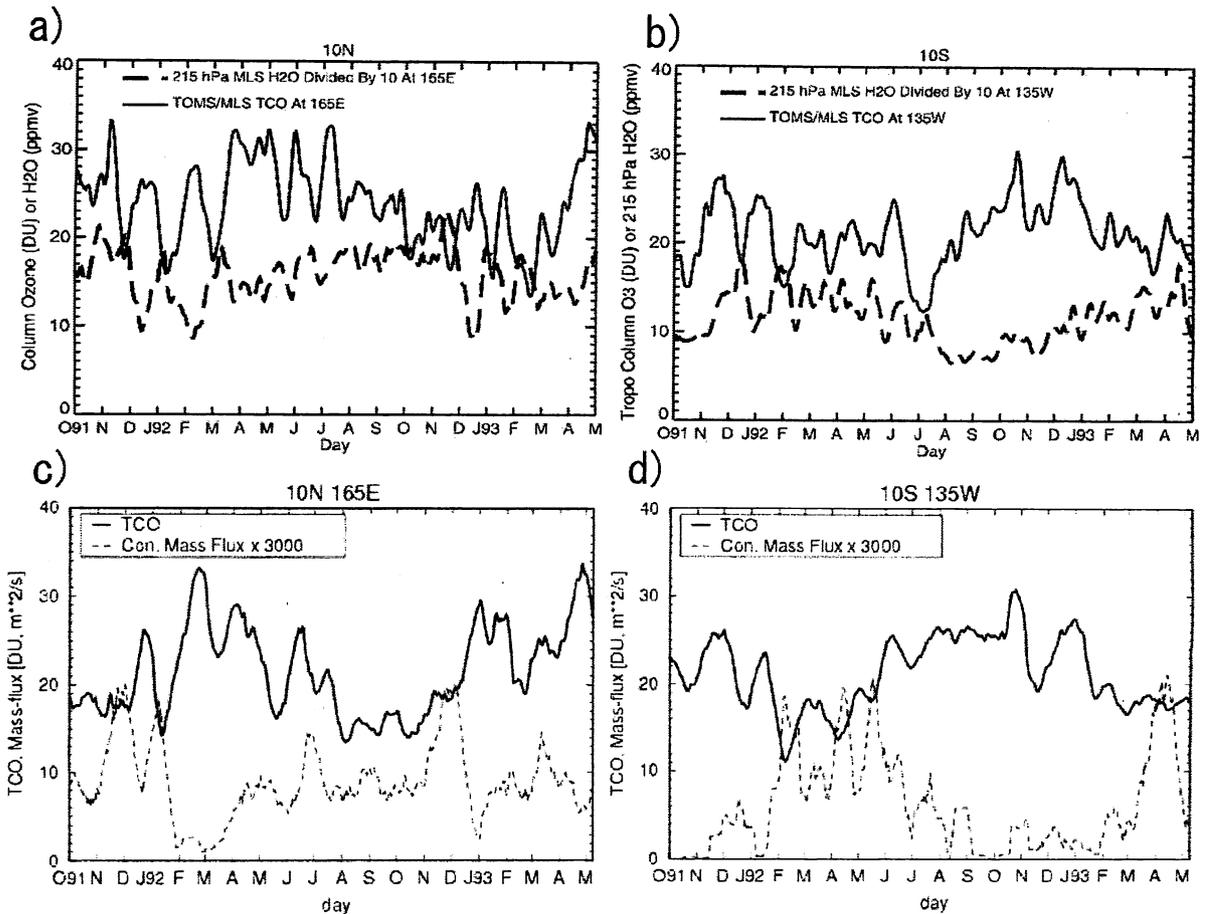


図7：熱帯域対流圏カラムオゾンTCO (DU) の時間変動 (1991年10月-1993年5月)。TOMS-MLS 衛星観測によるTCOとMLSによる上部対流圏水蒸気：(a)10°N,165°E, (b)10°S,135°W、および化学-気候モデル (CHASER) シミュレーションによるTCO (積雲対流の質量フラックスも示す)：(c)10°N,165°E, (d)10°S,135°W。衛星観測データ (a,b) はZiemek and Chandora (2003) による。

## (2) 大気海洋大循環結合気候モデルとエアロゾル輸送モデルのオンライン化

これまで開発・改良を進めてきた全球エアロゾル輸送・放射モデルSPRINTARS (Takemura et al., 2000, 2002) を長期積分に耐えるように簡略化し、大気海洋大循環結合気候モデルとSPRINTARSとを結合するモデル開発を行った。シミュレーションに必要なメモリや計算時間を減少させるには、扱うトレーサーの数を減らすことが最も効果的である。そこで、SPRINTARSでは対流圏主要エアロゾルである炭素性・硫酸塩・土壌・海塩粒子を扱うが、土壌・海塩粒子ではサイズビンの数を減らし、また炭素性粒子では発生源別であったトレーサーを組成別 (黒色炭素・有機炭素) にすることによりトレーサーの数を減らした。具体的には、オリジナルSPRINTARSではエアロゾル関連トレーサー数が24であったのを11に減らした。

簡略化の結果、国立環境研究所のスーパーコンピュータNEC SX-6で計算を実行したところ、オリジナルのSPRINTARSと比較して計算時間は約50%、メモリは約35%を節約することが可能となった。図8に各エアロゾルの鉛直積算値分布を示すが、この結果はオリジナルのSPRINTARSのシミュレーション結果とほぼ同等であり、観測値との一致度も高い。

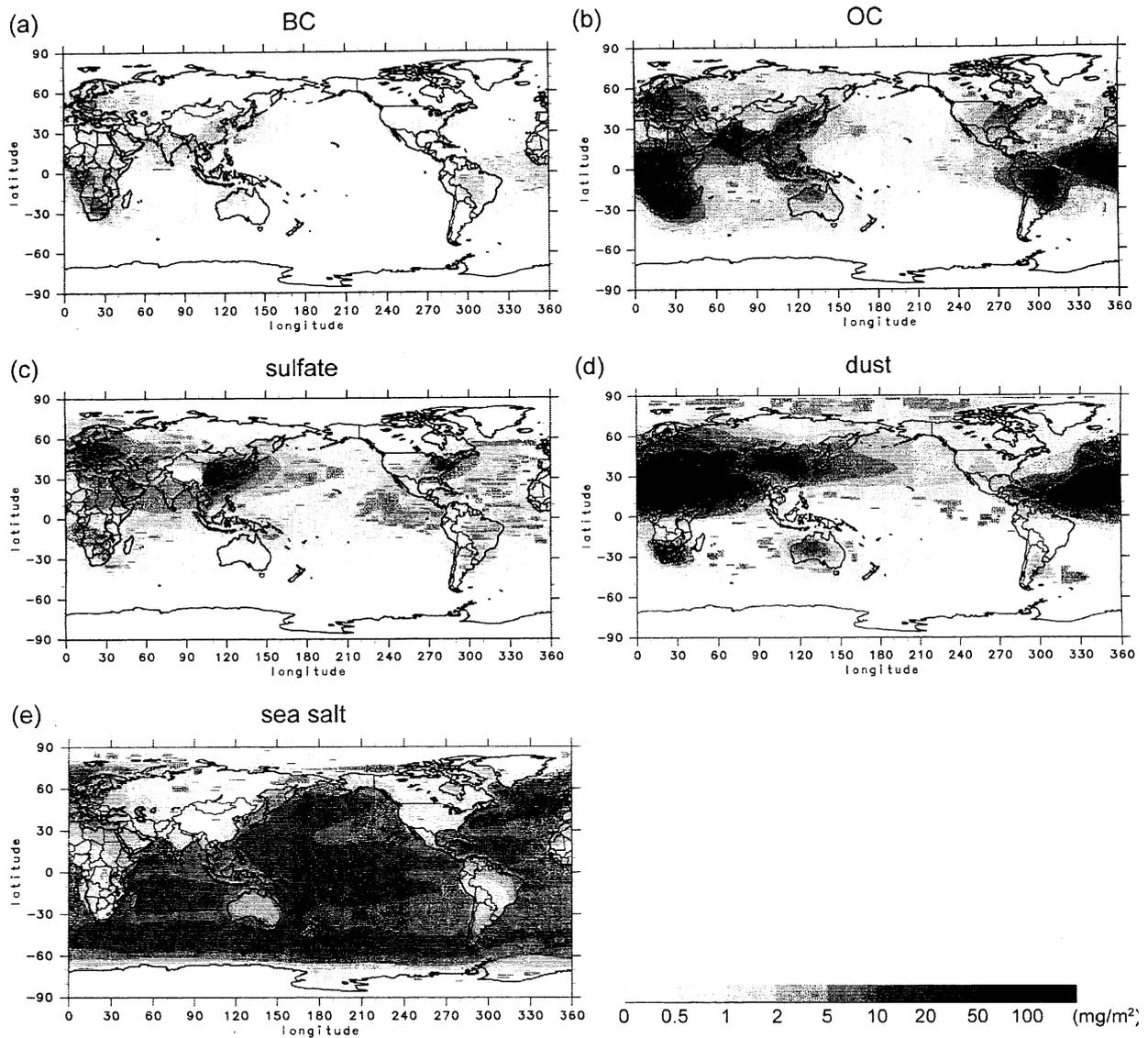


図8：SPRINTARSによる各エアロゾルの年平均分布。(a) 黒色炭素、(b) 有機炭素、(c) 硫酸塩、(d) 土壌粒子、(e)海塩粒子。

SPRINTARSを簡略化したことにより、大気海洋大循環結合気候モデルにSPRINTARSを結合したモデルを数十年～数百年の長期にわたって時間積分することが、現在使用可能なスーパーコンピュータで可能となった。ここで開発したモデルを用いて、エアロゾルの気候に対する影響を考慮した気候変動シミュレーションがなされ、精度の高い温暖化評価等が実施されている。

### (3) エアロゾル間接効果モデルの気候モデルへの組み込みと気候変化実験

#### ① 対流圏エアロゾルモデルSPRINTARSにおけるエアロゾル間接効果スキームの改良

これまでの全球スケールのモデリング研究では、雲・エアロゾル相互作用を考慮する際に、エアロゾル数濃度が決まれば一意的に雲粒数濃度が診断されるという、観測から得られた経験則を用いるのが一般的であった。さらに、用いるエアロゾル数濃度は親水性か疎水性かの2つの分類のみであり、それ以上の化学組成依存性は含まれなかった。そこで全球エアロゾル輸送・放射モ

デルSPRINTARSにおいて、雲粒数濃度を診断する際に、雲微物理過程の基礎に基づき、エアロゾル数濃度だけでなく、エアロゾル粒径分布や化学組成・上昇流速度・曲率効果を考慮したパラメタリゼーションを導入した。さらに、雲粒径・雲水量・降水量が雲粒数濃度に依存するスキームも導入した。全球スケールのモデルの解像度では雲微物理過程で用いる上昇流速度は直接的には表現ができないため、乱流運動エネルギーを用いたパラメタリゼーションも導入した。これにより、エアロゾル間接効果のシミュレーションが、より現実的になる。この新しいエアロゾル間接効果スキームの詳細な記述は、Takemura et al. (2005)を参照のこと。

図9には、シミュレーションにより得られたエアロゾル数濃度と雲粒数濃度の関係を示す。先に述べたように、過去の全球スケールのモデリングでは、両者の関係は一对一であったため、ある1つの曲線状に乗ることになっていた。しかし、本研究で導入したパラメタリゼーションを導入したところ、エアロゾル粒径分布や化学組成・上昇流速度等により、両者の関係にばらつきが生じ、より現実的な表現が可能となった。

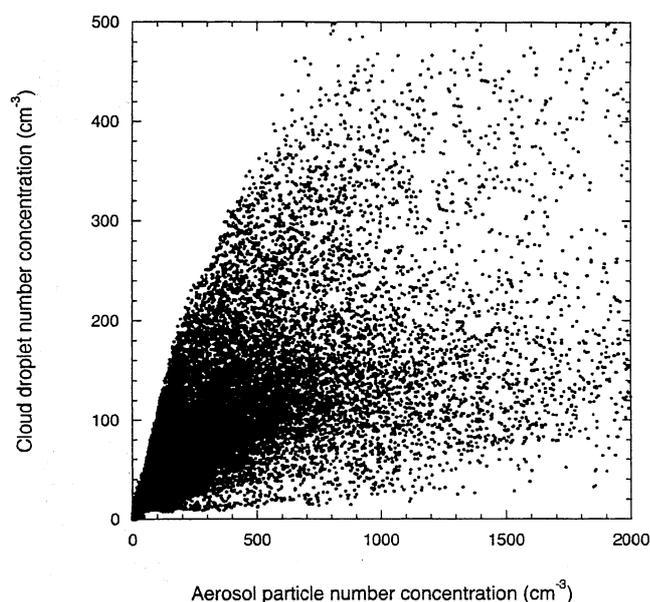


図9：SPRINTARSによるエアロゾル数濃度（半径0.05 μm以上）と雲粒数濃度の関係

図10には、雲粒有効半径と、産業革命以前及び現在のエアロゾル関連物質排出量を用いた2つのシミュレーション間の雲粒有効半径の差を示す。雲粒径はエアロゾル第1種間接効果と密接な関係があり、雲粒径に依存して雲反射率が変化するため気候に影響を及ぼす。シミュレーションでは、雲粒径が海上で大きく陸上で小さいという特徴が上手く再現され、特にヨーロッパ・アジア・北アメリカの都市域周辺ではエアロゾル間接効果により小さくなっている。一方、人為起源エアロゾルの影響の少ない海洋上のほとんどの地域では有効半径が14ミクロン以上と大きくなっている。ただし、北半球中緯度では都市起源のエアロゾル、またアフリカ・南アメリカ周辺では森林火災起源エアロゾルの流出により、海上でも雲粒径が小さくなっている。これらをAVHRR, MODISといった衛星観測データと比較し、一致度が高いことを確認した(Takemura et al., 2005)。産業革命以前から現在にかけて、雲粒径は、ほぼ全域小さくなっており、陸上、特に北半球中緯度

の都市域や熱帯・南半球の森林火災地域でより小さくなっていて変化が著しい。また、図11には雲水総量と降水量の分布も示すが、これらも観測との妥当な一致を見た (Takemura et al., 2005)。

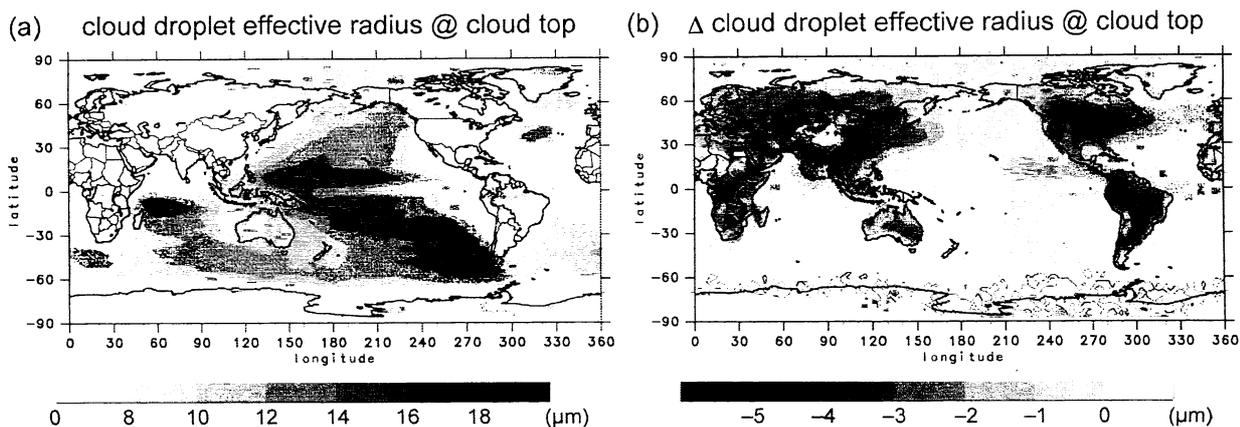


図10：SPRINTARSによる気温273 K以上の雲頂における雲粒有効半径の年平均分布(a)と産業革命以前から現在にかけての変化量(b)。

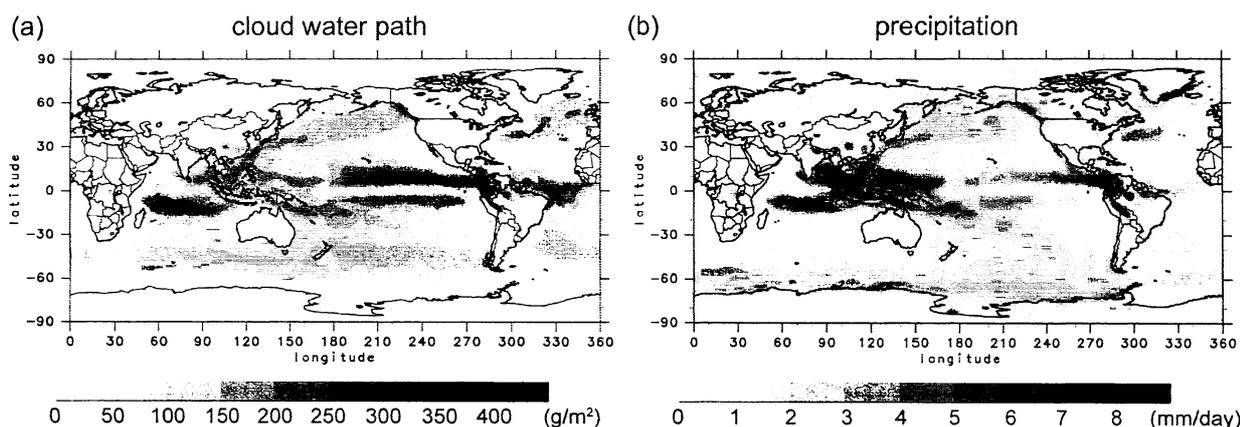


図11：SPRINTARSによる雲水総量(a)と降水量の年平均分布(b)。

## ② 対流圏エアロゾルモデルSPRINTARSを用いた人為起源エアロゾルによる気候影響評価

エアロゾルが及ぼす気候に対する影響を具体的に評価するため、SPRINTARSに海洋混合層モデルを結合した3つの異なる平衡実験を行った。実験1では現在のエアロゾル排出量と現在の温室効果気体濃度を与え、実験2では産業革命以前のエアロゾル排出量と現在の温室効果気体濃度を与え、実験3では産業革命以前のエアロゾル排出量と産業革命以前の温室効果気体濃度を与えた。いずれの実験も50年積分を行い、後半の30年間を解析対象とした。各実験は3つのアンサンブルシミュレーションから構成されている。実験1と実験2との差は人為起源エアロゾルのみの気候に対する影響を表現し、実験1と実験3との差は人為起源エアロゾル及び人為起源温室効果気体両者の影響を表現する。また、海洋混合層モデルを結合せずに気象場や海面温度に同じ外部のデータを与える実験を、実験1と実験2に該当する条件で行った（それぞれ実験1f・実験2fとする）。

図12には、雲水総量の各実験間の変化率を示す。気象場に同じ外部データを与えた実験（実験

1f-実験2f) では、エアロゾル第2種間接効果の定性的な説明の通り、人為起源エアロゾルが新たに雲凝結核の役割をすることにより、ほとんどの地域で雲水量の増加が見られる(図12a)。特に、人為起源エアロゾルの多いアジア・北アメリカ東部・ヨーロッパでの変化率が大きい。一方、海洋混合層を結合してエアロゾルの効果により気象場全体が変化する実験(実験1-実験2)では、エアロゾル直接効果及び第1種間接効果により、地表付近の放射量が減少して気温が低下し、地表からの水蒸気蒸発量が減少して雲水量も減少する様子が見られる(図12b)。ただし、人為起源エアロゾルが非常に多い東アジアや北アメリカでは雲水量が増加している。また、気温変動に伴う水循環の変化により、熱帯域では緯度帯に依存した雲水量の増減が見られる。温室効果気体の濃度の違いも考慮した現実に近い実験(実験1-実験3)においては、中高緯度では温暖化により地表面からの水蒸気蒸発量が大きくなり雲水量は増加傾向である(図12c)。しかし、熱帯や亜熱帯域では雲水量が減少する地域も見られ、例えばインドでは、大気を暖める一方で地表面付近の日射量を減少させて気温低下を招き、また吸湿性に乏しく雲凝結核となりにくい黒色炭素が多く存在するため、温室効果気体の影響を考慮しても雲水量が減少している可能性がある。

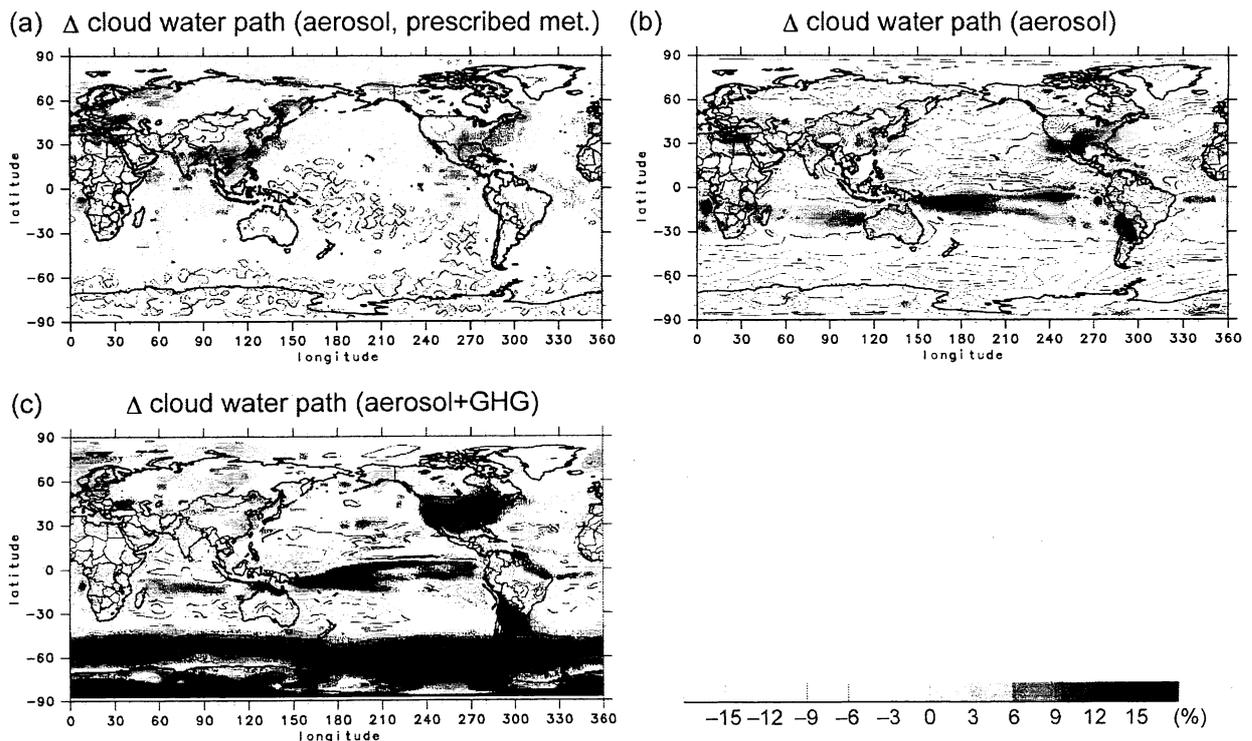


図12：SPRINTARSによる雲水総量の産業革命以前から現在にかけての変化率。(a) 外部気象データを用いたエアロゾルの効果(実験1fと2fの差)、(b) 海洋混合層モデルを用いたエアロゾルの効果(実験1と2の差)、(c) 海洋混合層モデルを用いたエアロゾルと温室効果気体の効果(実験1と3の差)。

図13は、降水量の各実験間の変化率を示す。外部気象データを与えた実験(実験1f-実験2f)では、海上では系統的な変化はないが、陸上ではエアロゾル第2種間接効果による降水量減少が見られる(図13a)。一方、エアロゾル効果により気象場が変化する実験(実験1-実験2)では、雲水

量が増加している地域では降水量も増加し、雲水量が減少している地域では降水量も減少している場合が大半を占める（図13b）。しかし、東アジアだけは、エアロゾル効果と気象場のフィードバックを考慮しても、雲水量増加・降水量減少という傾向が見られ、エアロゾル第2種間接効果が非常に大きいことを示唆している。温室効果気体の影響も考慮すると、世界各地に存在する100年スケールの降水量変化の観測データと比較可能となる。図13c（実験1-実験3）と観測データとを比較すると、各地域で妥当な一致が見られ、特にアフリカ北中部での数十%の変化は観測でも見られる。図13bと13cとを比較すると、このサヘル地域での干ばつ傾向は、エアロゾルの寄与も非常に大きいというシミュレーション結果となっている。図12と図13から、エアロゾルの長期的な気候に対する影響を評価する場合には、エアロゾルと気象場のフィードバックメカニズムを考慮しなければならないことが示唆される。

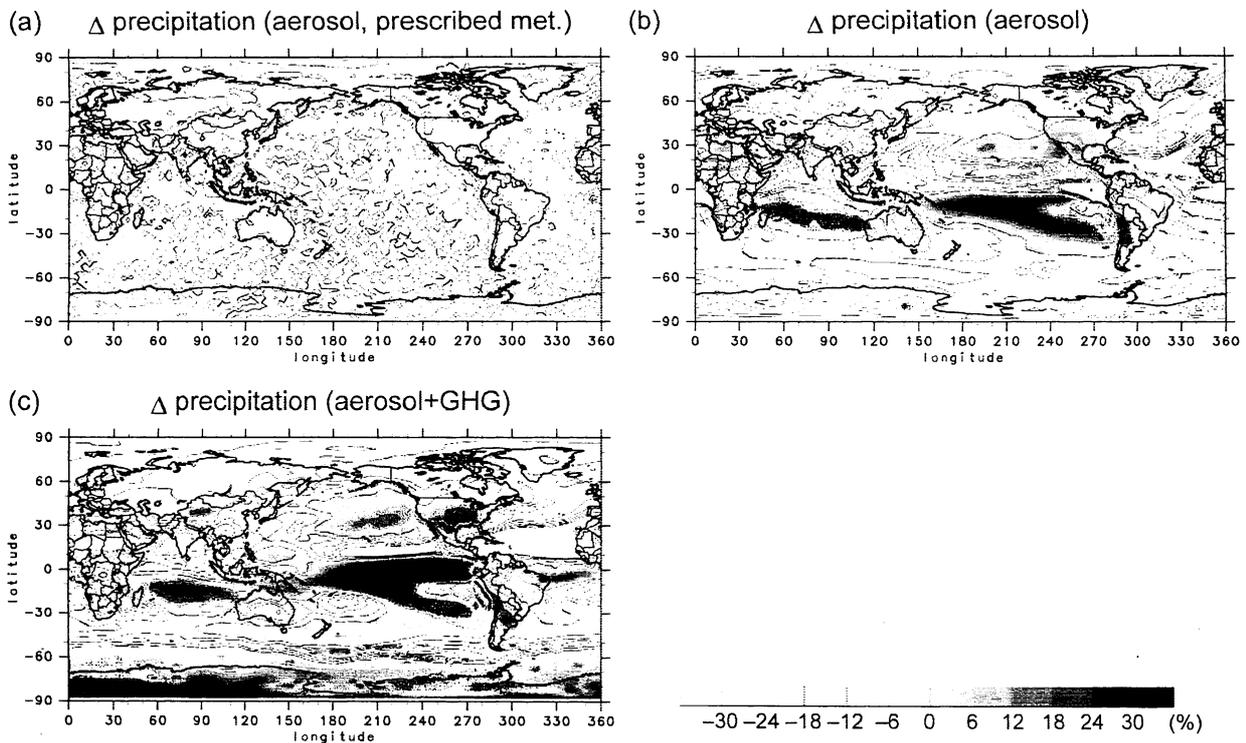


図13：SPRINTARSによる降水量の産業革命以前から現在にかけての変化率。(a) 外部気象データを用いたエアロゾルの効果（実験1fと2fの差）、(b) 海洋混合層モデルを用いたエアロゾルの効果（実験1と2の差）、(c) 海洋混合層モデルを用いたエアロゾルと温室効果気体の効果（実験1と3の差）。

#### (4) 対流圏エアロゾルモデルによる鉱物性ダストの長期変動の解析および大気化学輸送モデルの改良・開発

気象研究所（気象研）では、対流圏エアロゾルや成層圏オゾンなどの時空間分布を評価するための化学輸送数値モデルの開発を進めている（Tanaka et al., 2003; Tanaka and Chiba, 2005; Shibata et al., 2005）。ここでは以下の3つについて得られた結果を示す：(i) 気象研対流圏エアロゾル輸送モデルMASINGARを使って、対流圏エアロゾルのひとつである鉱物性ダストの発生、輸送、沈着

に関する長期間のシミュレーションを行い、放射強制力の評価や、ダスト発生量の長期変動の解析を行った結果；(ii) 粒子形成に最も強く関与しているエアロゾルのひとつである硫酸塩エアロゾルおよびそれを核とした雲粒子の形成、成長に関するビン法モデルの開発；(iii) モデルの鉛直分解能が、オゾン、エアロゾルおよびこれらに関連する物質、ガスの鉛直輸送、特に、対流圏と成層圏の交換過程にどの程度の影響を与えるかについて、いくつかの鉛直分解能のもとでの数値実験を行い、観測で得られるオゾン濃度などとの比較を行って精度検証を試みた結果。

#### ① 鉱物ダスト発生・浮遊量の長期トレンド

気象研のエアロゾル輸送モデルMASINGARを用い、このモデルにより計算された鉱物ダストの発生量および浮遊量から放射強制力を求めるとともに、長期変動の地域的な特性を解析した。

エアロゾルの放射強制力については、種々の要因（発生インベントリの把握不足、対流圏における短い寿命、形状・粒径・屈折率や混合状態の多様性、雲に対する変質作用の理解不足など）により、その推定精度は十分高いとはいえない。さらに、種々のエアロゾルのうち、鉱物ダスト（以下、ダストという）については、視程悪化や健康影響といった影響（日本においては黄砂として影響）の特異性のため、特に東アジア域で注目され、近年の重要な研究テーマとして位置づけられている。

当研究では、全球的なスケールでのダストの長期変動や、気候影響を評価するため、ダスト輸送モデルの長期積分を行った。また、ダストの発生・輸送・沈着といった諸過程をモデルで表現し、さらに、ダストの光学特性を仮定することで、放射強制力を長期にわたって計算した。これにより、放射強制力につき、平均的な状態に加えて、年々の変動、さらに数十年単位でのトレンドを評価することを通じ、気候変化予測の精度向上へ寄与することと、モデルが持つ問題点を明確化し、それを解消することを目的とした。

上記研究目的のため、ERA40 再解析データにデータ同化させた大気場で、1958～2001年における44年積分を実施した。気象研の全球大気エアロゾルモデルMASINGARは、ダストの発生・移流拡散・沈着・放射など各スキームを持ち、10サイズ（半径 0.1-10 $\mu$ mの範囲に対して）のダストの動態を把握できる。解像度は水平T63（1.875°グリッドに相当）、鉛直30層（L30）である。水平風について、GCM中で再解析データ（ERA40）にナッジングしてデータ同化を行うことにより、現実的な再現実験となっている。このモデルには、土地利用の変化や砂漠域の発生消滅などは含まれておらず、モデル計算結果におけるダストの長期変動は、大気場・地表面場の変動に起因するものとして解釈される。

計算期間 44 年平均の年間の全球ダスト発生量は 2350 $\pm$ 200 [Tg]（平均 $\pm$ 標準偏差）、全球浮遊ダスト量は 17.1 $\pm$ 1.6 [Tg] で、年々変動の幅は概ね 10% 弱である。北半球と南半球の比較では、北半球は、発生量で 89%、浮遊量で 87%を占めている。図14は、44年平均のダストの発生強度、ダストの大気カラム量、700 hPaでのダストの水平フラックス（流線）の水平分布図である。主な発生源として、サハラ・中東・ゴビやタクラマカン・オーストラリアなどが挙げられる。浮遊カラム量の分布は図に示すとおり、大きな空間変動を有するが、自由対流圏中層～下層での水平ダストフラックスと対応がよく、全球スケールでのダスト浮遊量及び沈着量分布を水平輸送が大きく支配している。このようなダストの分布に対して求められる大気の光学的厚さ（波長 500 nm）は全球平均で0.030である。

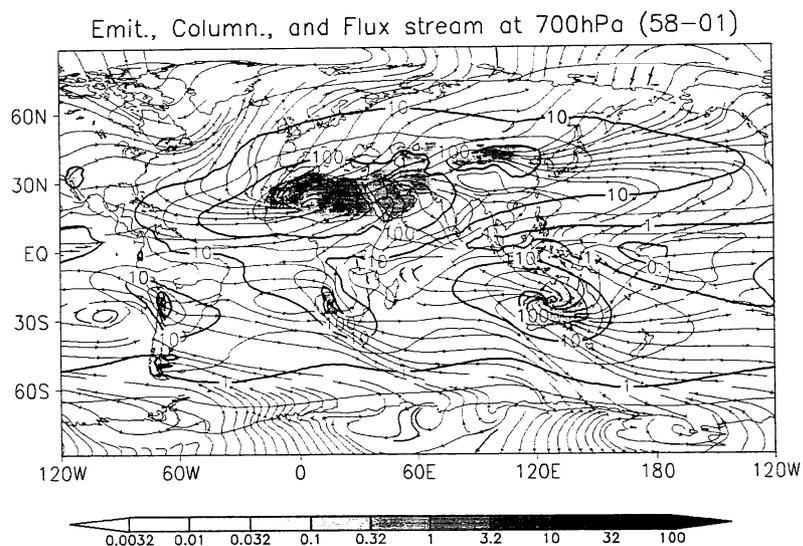


図14：ダストの発生強度（濃淡， $\mu\text{g m}^{-2}\text{ sec}^{-1}$ ）、カラム量（等値線， $\text{mg m}^{-2}$ ）、700 hPa高度における水平輸送フラックス（流線）

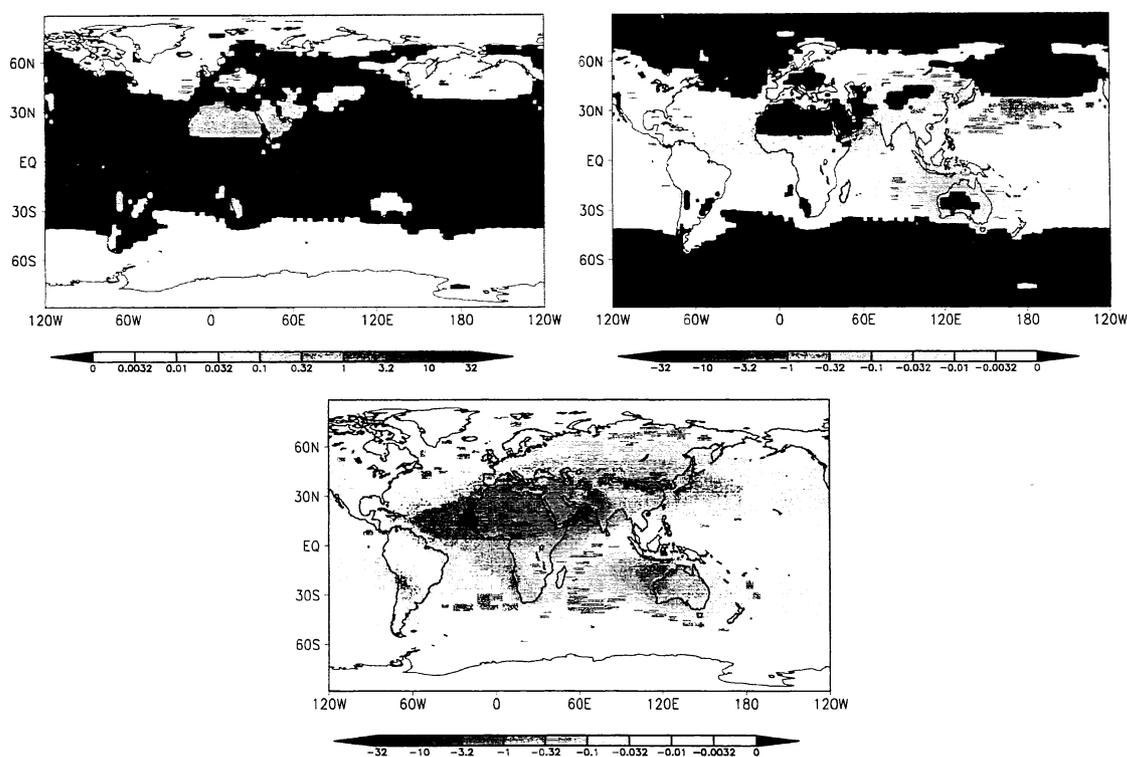


図15：大気上端および地表における平均ダスト放射強制力 ( $\text{Wm}^{-2}$ , 1958-2001)  
 上図：大気上端、正の領域 (左)；負の領域 (右)。下図：地表、負の領域 (正の領域なし)。

図15に44年平均のダストによる放射強制力分布図を示す。ここでは、放射強制力は、ダストがないときと比較した正味の下向きの放射量として定義する。大気上端で求められる放射強制力は、雲がある条件下では全球平均で  $-0.09 \pm 0.02 (\text{W/m}^2)$  となり、ダストは大気-地球系を冷やす。この

値は、雲がない晴天を仮定したときの値、 $-0.33 \text{ W/m}^2$  に比べ1/3-1/4となり、雲は大気上端ではダストが放射過程に及ぼす影響を緩和する方向に働いている。大気下端(地表面)では  $-1.07 \pm 0.11 \text{ (W/m}^2)$  となり、大気中にダストがあることにより、地表面は冷やされる。大気上端と大気下端の放射強制力の違いはそのまま大気を温める(時には冷やす)効果となり、全球平均で  $+0.98 \text{ W/m}^2$  となる。この内訳として短波放射では  $1.36 \text{ W/m}^2$  の加熱、長波放射では  $-0.39 \text{ W/m}^2$  の冷却となっている。

全球発生量の年々変動と全球年平均放射強制力の年々変動との負の相関は高く、大気上端強制力で-0.52、地表強制力で-0.85となった。また、年間浮遊量の年々変動と放射強制力の年々変動との負の相関は、もっと高く、大気上端強制力で-0.66、地表強制力で-0.99であった。

図16右は、月別の全球ダスト発生量が、北半球春季(3-5月)に全年の43%の発生量であり、他の季節(夏季:25%、秋季:13%、冬季:15%)を上回ることを示す。44年間の長期トレンドにおいては、北半球夏季の7・8月に明瞭な減少が見られるほかは、有意な水準に達していない。年間の発生量のトレンド  $-305 \text{ Tg/43yr}$  に対して、北半球夏季の発生量のトレンドは  $-213 \text{ Tg/43yr}$  を占め、北半球夏季が減少トレンドの主因となっている。

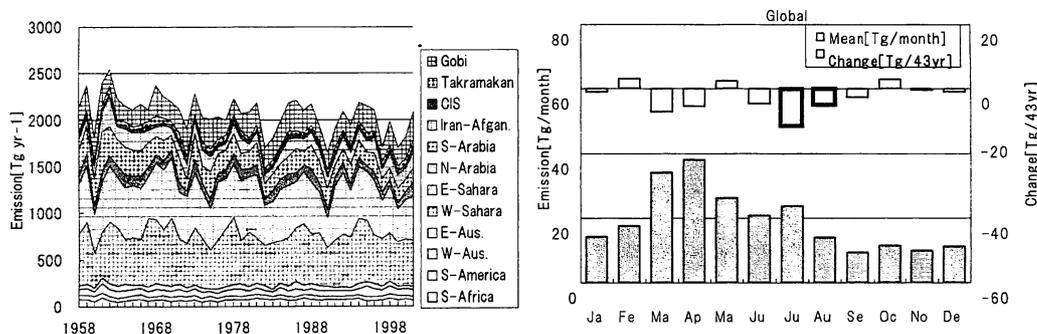


図16：各地域別の年間ダスト発生量の年々変動(左図)、および、月別ダスト発生量と44年間の長期トレンド(右図)。トレンドが有意(t検定で95%有意)な月を太い線で強調した。

このトレンドの主因となる地域を特定するため、図16左で12の領域にわけて年々変化を示す。さらに、表1に、図16左のデータに対し、一次近似をとったときのダストの年間発生強度のトレンドを示した。全球として年間ダスト発生量が減少( $-305 \text{ Tg/43yr}$ )する中、発生量としては全球の10%弱である南アラビア領域( $10\text{-}25^\circ \text{ N}$ ,  $40\text{-}60^\circ \text{ E}$ )による負の寄与( $-154 \text{ Tg/43yr}$ )が半分を占めるほど大きい。このように、南アラビア領域は、全球発生量の半分を占めるサハラより大きなトレンドを有する。

南アラビア領域のダスト発生量の長期減少傾向に関連して、ダストの浮遊量(カラム量)やダストによる放射強制力のトレンド分布(図17)にも地域的な偏りがある。浮遊量は南アラビアのみならず、アフリカにかけて東西に減少傾向域を形成している。併せてその南では、発生量が増加するソマリア半島域を含む東西にのびる領域で、浮遊量の有意な増加(北の減少域と比較して絶対量は小さい)も見られる。アジア域の浮遊量に注目すると、中国から日本にかけてはやや増加しているものの、トレンドは有意な水準ではなく、絶対量も小さいことがわかった。モデルシミュレーションの結果によれば、南アラビアでの典型的なダスト発生は、サハラやアジアのダス

ト発生と、時期や仕組みが異なる。インドモンスーンが活発な夏季（6-8月）に卓越し（全年発生量の72%を占める）、主にアラビア半島東部に低気圧が位置するときに、発源地域および半島南海上でモンスーンによる南西風の強風イベントが起こる。しかし、モンスーン強度指数としてのWang et al. (2001)の夏季モンスーン指数と南アラビア夏季ダスト発生量の年々相関は明瞭ではない（Jun:-0.11, Jul:0.2, Aug:0.23、図略）ことがわかった。なお、モンスーン指数の長期トレンドも有意ではない。

表1 地域別のダストの年間発生量、各地域の全球に対する割合、発生量の多い3ヶ月、43年間でのトレンド

Area	Location	Emission Contribution [Tg]		Most contributing three months	Change [Tg/43yr]
South Africa	20-35° S, 10-25° E	69	3.0%	Nov, Dec, Jan	(6)
South America	15-30° S, 65-70° W	42	1.8%	Oct, Nov, Dec	-10
West Australia	20-35° S, 130-145° E	66	2.9%	Dec, Jan, Feb	(+3)
East Australia	20-35° N, 130-145° E	49	2.1%	Oct, Nov, Dec	(-9)
West Sahara	15-35° N, 20° W-10° E	604	26.2%	Mar, Apr, May	(-19)
East Sahara	15-35° N, 10-35° E	662	28.6%	Mar, Apr, May	(-71)
North Arabia	25-35° N, 35-50° E	100	4.3%	Mar, Jun, Jul	(-21)
South Arabia	10-25° N, 40-60° E	215	9.3%	Jun, Jul, Aug	-154
Iran-Afghanistan	25-35° N, 50-70° E	137	5.9%	Jun, Jul, Aug	(-31)
CIS	35-45° N, 50-70° E	34	1.5%	Apr, May, Jun	(+6)
Taklimakan	35-45° N, 75-90° E	46	2.0%	Apr, May, Jun	(0)
Gobi	35-50° N, 90-115° E	231	10.0%	Apr, May, Jun	(+1)
Global	90° S-90° N, 0-360° E	2310	100.0%	Mar, Apr, May	-305

南アラビア領域発生量の負のトレンドは、強風日数の負のトレンドに対応している（図示せず）。南アラビアのダスト発生量減少が、特に南東のアラビア海沿岸で顕著であり、そこでは陸上の強風日数減少も顕著である。この領域の地上や大気下層の夏季湿度、及び夏季降水量は長期的に減少傾向であり、この土壌水分量の減少は注目するダスト発生量の長期減少傾向を説明しない。このため、ダスト発生量の長期減少は、風の長期変動に起因する可能性がある。

モンスーンとの関連で、夏季に北上してアラビア半島にかかってくる ITCZ (Intertropical Convergence Zone) との関連を調べる（図示せず）。ITCZの南では、ソマリア半島方面からの南西風が卓越する。発散（負の収束）のトレンドは、ITCZの北側でおおよそ正、南で負となっており、ITCZが長期的に南下していく様子が見られる。これにより、海上の強い南西風が、陸にかかる頻度が長期統計的に低くなった可能性がある。

このモデル実験では、中東の陸上地域よりインド洋のほうが、地上気温の長期上昇トレンドが大きく現れており、インド洋の対流活動活発化に関連して夏季ITCZの位置の変動が最近議論されている (Bader and Latif, 2003) ことから、ITCZの動向をダスト関連の諸物理量の将来予測につなげていく必要がある。

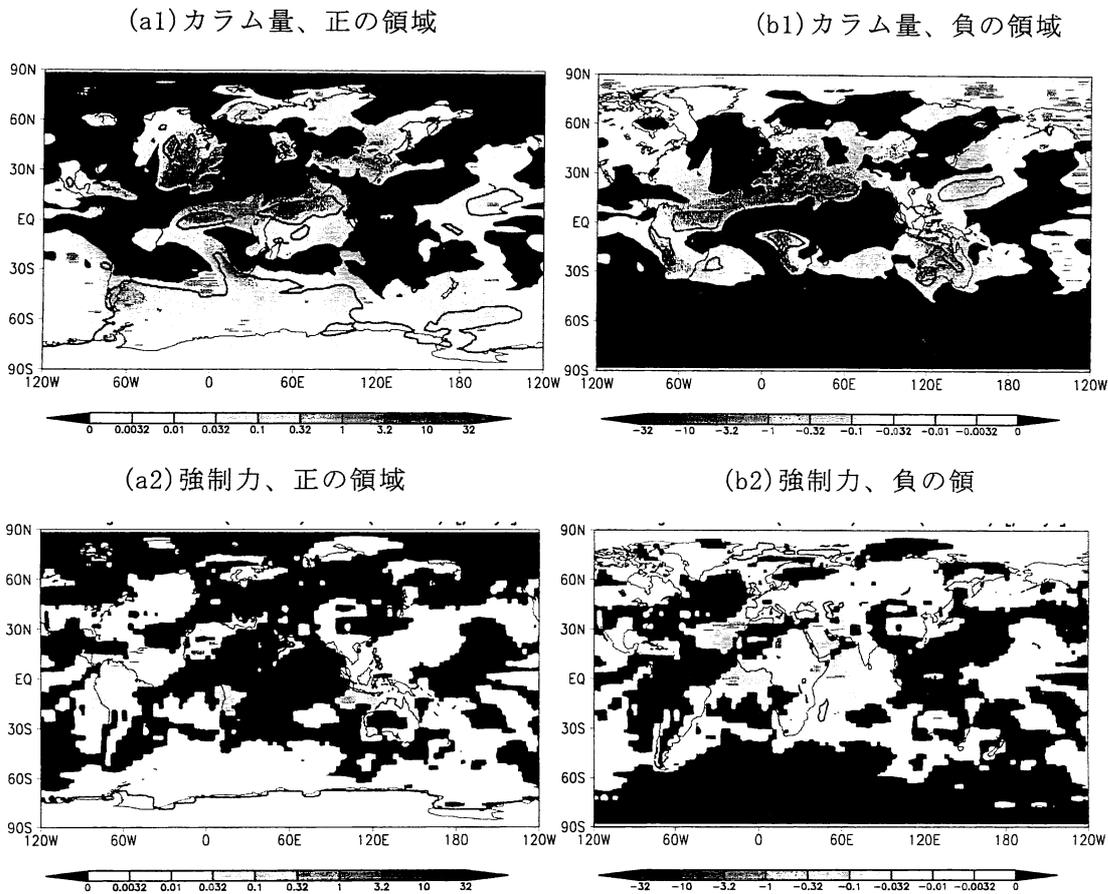


図17：浮遊量のトレンド（カラム量： $\text{mgm}^{-2}/43\text{yr}$ ）と大気上端放射強制力のトレンド（ $\text{Wm}^{-2}/43\text{yr}$ ）  
（トレンドが95%有意な領域を太線で示した）

② ビン法を用いた硫酸塩エアロゾルによる雲形成過程の数値シミュレーション

エアロゾルの間接効果に関連する、硫酸塩エアロゾルが凝結核となって雲生成に対しどのように影響するかという問題は、十分に解明されていない。大循環モデル(GCM)による間接効果のシミュレーションの精度を高めるため、エアロゾルによる雲生成についての精度の高い微物理モデルの開発が求められている。本研究では、ビン法（エアロゾルと雲粒子を多くのサイズビンに区切る手法）を用いて硫酸塩エアロゾルから雲が生成される詳細な微物理モデルを作成し、エアロゾルの変化が雲の粒径分布にどのように作用するかを明らかにすることを目的とする。

本研究によって作成されたモデルは、気相と液相から成る系のボックスモデルである。気相物質は、水蒸気、二酸化硫黄及び硫酸蒸気であり、液相物質は、水と硫酸である。液相物質はエアロゾルと雲粒子を構成する。エアロゾルと雲粒子は、それぞれ半径 $0.001\mu\text{m}$ ～ $100\mu\text{m}$ の大きさの範囲が51のサイズビンに区切られている。ビンを分けるサイズとして、エアロゾルに対しては乾燥半径（水を含まない半径）を用い、雲粒子に対しては水を含んだ半径を用いる。エアロゾルは周囲の水蒸気と瞬間的に平衡するものと仮定する。なお、平衡半径は不揮発性溶質を含む理想溶液の平衡蒸気圧とKelvin効果から求められる。水蒸気が過飽和のときは、臨界半径より大きいエアロゾル粒子は水蒸気と平衡することができない。この状態を雲活性化した状態と定義し、そのサイズビンのエアロゾルは対応する雲粒子のビンへと移行する。活性化直後の雲粒子のサイズは相

対湿度100%に対する平衡半径とする。雲粒子のサイズは、水蒸気の凝結・蒸発によって変化する。凝結速度および蒸発速度は、ブラウン運動による水分子の衝突確率から求められる。

硫酸蒸気は、二酸化硫黄の気相酸化によって生成される。生成された硫酸蒸気は、エアロゾルや雲に凝結する他、硫酸-水系の均質核生成によって新しい硫酸粒子を生成する。凝結速度はHegg et al. (1990)を、粒子生成速度はJaeger-Voirol and Mirabel (1989)の経験式を参考に計算した。凝結の適合係数は0.05とした。新粒子の半径は1 nmとした。通常、雲粒子に含まれる硫酸の濃度は粒子毎に異なるが、ここでは同じピンの雲粒は同じ濃度の硫酸を含むと仮定した。凝集速度は、エアロゾルとエアロゾルの衝突の他、エアロゾルと雲、雲と雲の衝突についても、Fuchs (1964) の理論式を用いて求めた。

計算の流れを以下に示す。メインプログラムから時刻  $t$  における温度 ( $T$ )、気圧 ( $p$ )、相対湿度 ( $RH$ ) を入力する。モデル内部で化学過程、微物理過程の順に計算を実行し、時刻  $t+dt$  におけるエアロゾル、雲その他の化学成分量を求める。結果として得られた水蒸気量の変化をメインプログラムに出力し、そこで水蒸気量の変化に起因する  $T$ ,  $RH$  の変化を計算する。時間ステップ  $dt$  の長さは、水蒸気の凝結・蒸発による雲粒子のサイズ変化に影響する。半径  $0.1 \mu\text{m}$  の雲粒子が2倍の体積に成長する時間は0.001秒のオーダーと見積もられるが、この成長速度はサイズが大きくなるにつれて急激に遅くなり、半径が  $1 \mu\text{m}$  の雲粒子に対しては1秒のオーダーである。数値実験の結果、タイムステップを0.1秒として得られる雲粒の分布は、タイムステップ0.01秒のときとほぼ一致した。硫酸蒸気は凝結と新粒子生成で消費されるが、その配分率は計算順序に依存する可能性がある。実験の結果、時間ステップを10秒程度より短くすれば配分率はほとんど依存しないことがわかった。凝集についても時間ステップ10秒で十分であった。以上の結果、必要十分な時間ステップの長さとして0.1秒が得られた。

作成したモデルを用いて行った雲形成過程のシミュレーションの例を示す。以下のシナリオは、Sehili et al. (2005) を参考に作成した。時刻0 secに高度100 mにあったエアパーセルが、 $30 \text{ cm s}^{-1}$ の一定速度で3000 sec後に高度1000 mまで上昇する(図18)。初期の相対湿度は90%、気温 $10^\circ\text{C}$ 、気圧は1気圧とする。エアロゾルの初期値はAEROSOL1、AEROSOL2の二通り与える。AEROSOL1は、双山型の対数正規分布とする。AEROSOL2は、AEROSOL1を10倍したものである。SO<sub>2</sub>の初期濃度は都市大気の観測値レベルである10 ppbvとした。

図19に過飽和度の時間変化を示す。どちらのケースでも約700 secで過飽和となる。その後の変化はケースによって異なる。AEROSOL1では750 secに0.75%まで上昇した後0.3%まで減少する。これに対してAEROSOL2では、0.2%で一定になる。図20に雲水量の時間変化を示す。約700 secで雲が出来始め、その後ほぼ一定のペースで増加する。二つのケースの間にほとんど差はみられない。図21に雲粒子数濃度の時間変化を示す。どちらのケースでも雲粒子数濃度は、過飽和になった直後に急激に増加するが、その後はほぼ一定である。AEROSOL2のケースでは、AEROSOL1のケースに比べ約2倍の数の雲粒子が出来ている。

図22、図23に各ケースでのエアロゾルと雲粒子の粒径分布を示す。エアロゾルの粒径分布からAEROSOL1では、臨界半径が約 $0.2 \mu\text{m}$ なのに対して、AEROSOL2では約 $0.5 \mu\text{m}$ であることがわかる。生成された雲粒子は、どちらのケースでも時間経過とともに成長している。生成直後(1000 sec)では、モード半径はAEROSOL1の方がむしろ大きい。3000 secでは、モード半径にほとんど差はなくなる。またAEROSOL1の方が大きい雲粒子の数が多。AEROSOL1で、微小なエアロゾルの

数が多いのは新粒子生成が起きたためである。

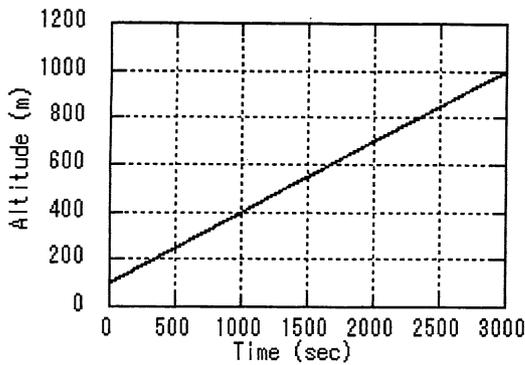


図18：空気塊の高度の時間変化

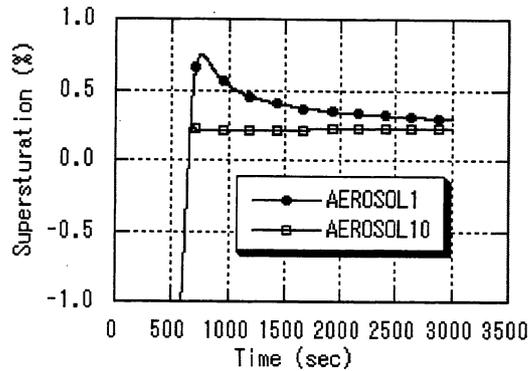


図19：過飽和度の時間変化

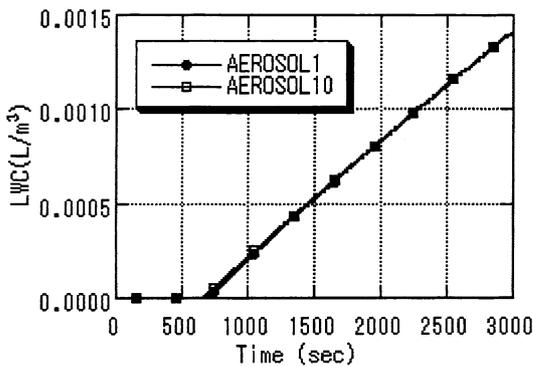


図20：雲水量の時間変化

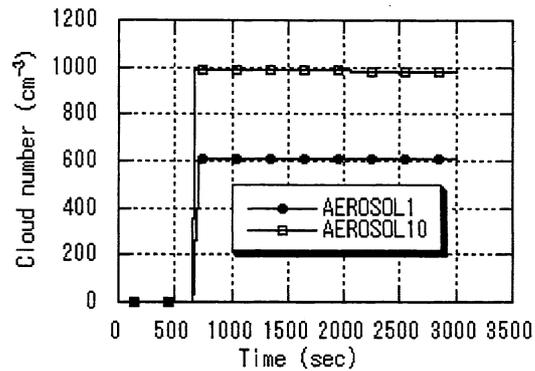


図21：雲粒子数濃度の時間変化

二つのケースで雲粒子の数は約2倍の違いがあった。この違いは雲活性化したエアロゾルの数の違いによるものである。エアロゾルの数濃度はAEROSOL2の方が10倍多く設定したが、過飽和度が低かったため臨界粒径が大きくなり、結果的に雲凝結核として作用したエアロゾルの数はAEROSOL1の約2倍であった。一方、生成された雲水の総量は二つのケースでほとんど同じであった。このことはAEROSOL2では雲粒一個あたりの体積が小さいことを意味する。しかし生成初期のモード半径はAEROSOL1の方が小さかった。これは一見矛盾しているようであるが、AEROSOL1では臨界半径が小さいために、雲生成の初期段階では活性直後の小さい粒子が多く、全体としてモード半径が小さくなっていたと推定される。3000 secでは、モード半径はほぼ同じになり、またモード半径より大きい粒子の比率はAEROSOL1の方が大きくなっている。これは雲粒子の数が少ないので成長が速いためと考えられる。

生成される雲の粒径が雲凝結核の数に依存することはこれまでも良く知られていたが、ビン法による数値実験によってより詳細に雲粒子の粒径分布まで見積もることが可能になった。これによって GCM による間接効果の見積もりにおいて、より精度の高いパラメタリゼーションを行うことが可能になると考えられる。本研究においては、エアロゾルの化学成分として硫酸のみを考

えたが、今後、硫酸アンモニウムや硝酸などを取り入れ、より実用性の高いモデルとしてゆく計画である。

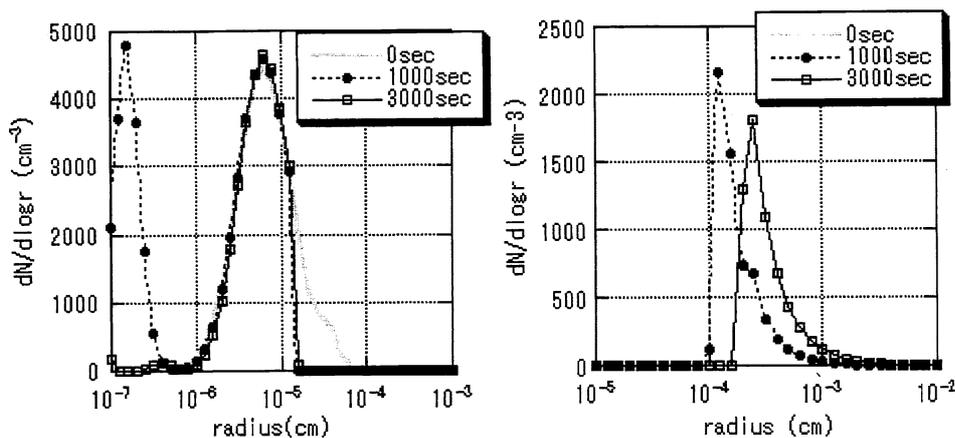


図22：AEROSOL1に対するエアロゾル（左）と雲粒子（右）の粒径分布

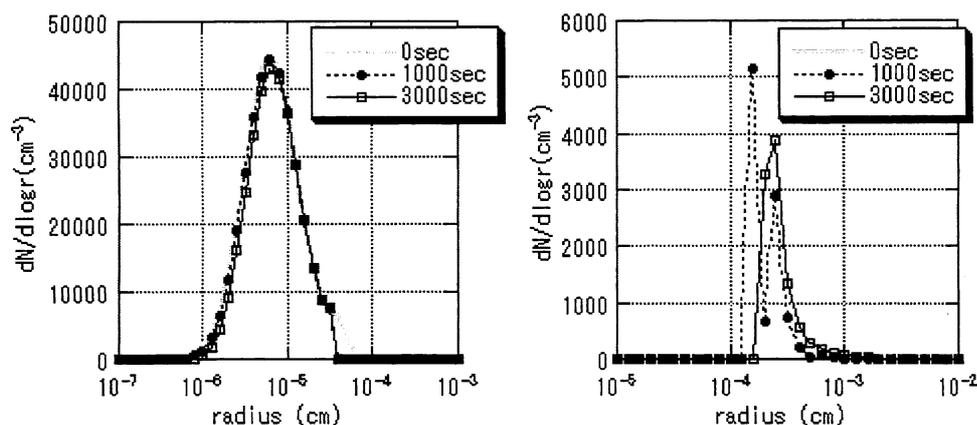


図23：AEROSOL2に対するエアロゾル（左）と雲粒子（右）の粒径分布

### ③ 成層圏-対流圏交換過程に及ぼすモデル鉛直分解能の影響評価

硫酸塩エアロゾルの評価を行う場合、その生成消滅の化学反応における気相反応は重要であるが、気相の二酸化硫黄の濃度に大きな影響を与える溶液反応も同程度に重要である。その溶液反応をモデルで解く際には、硫黄イオンを4価から6価に酸化する物質としての過酸化水素やオゾンの濃度が必要であるが、現在はこれらの酸化物質を予報変数として扱っておらず、他のモデルで得られた気候値を使っている。将来的には、過酸化水素やオゾンの濃度など、モデルに必要な化学物質は全て予報変数とすべきであるが、その際には、過酸化水素やオゾンの成層圏-対流圏交換（STE: Stratosphere-Troposphere Exchange）による輸送をモデルがうまく表現できているかどうか問題となる。理想的には、中緯度対流圏界面におけるSTE過程をモデルできちんと再現するためには、傾圧性擾乱やさらに小さいスケールであるフィラメント状の微細な構造を表現できる空間解像度が必要となる。しかし計算機資源の制約上、現在の標準的な全球オゾン化学輸送モデルは、このような小スケールの構造を直接表現するに十分な解像度をもつことはできない。

そのため「限られた計算機資源のなかで、水平・鉛直の解像度や内挿の計算法を向上することにより、精度の改善はどの程度見込めるのか？」という問題は、長期間のシミュレーションを行う前に検証しておく必要がある。そこで気象研化学輸送モデルを用いて、モデルが再現するSTE過程の検証を行った。用いた気象研化学輸送モデル MJ98-CTM (Shibata et al., 2005) は、大気大循環モデルMJ98 GCMを母体とした、全球三次元の化学輸送モデル(CTM: Chemistry Transport Model)である。

まず、このMJ98-CTMの標準的な空間解像度である空間分解が約300 kmで鉛直分解能が約2 kmのT42L45を用いて数値実験を行った。分解能の影響を調べるために、成層圏の分解能を細かくした鉛直分解能が約500 mのT42L68と、さらに、対流圏も同様に約500 mのT42L85の2つを使った実験を行った。後者のT42L85は、計算時間の節約のため、大気大循環モデル(GCM)の鉛直分解能 (L68) と化学輸送モジュールの鉛直分解能 (L85) とが異なる、いわゆる疎結合をさせた。数値実験は、まず、45層 (L45) と68層 (L68) でage of airがどう異なるか調べた。その際、現実的な大気場でのage of airをシミュレートするため、ヨーロッパ中期予報センター (ECMWF) の再解析データ (ERA40) を用いてGCM ナッジング (nudging) の方法でデータ同化を行うという束縛条件を課した。次に、化学輸送モジュールの鉛直解像度のみ85層 (L85) に増やした場合の数値実験を行った。化学輸送モジュールの鉛直解像度を増やした場合については、GCMによる大気場の鉛直内挿が必要となるが、線形に内挿した場合と保存性を満たす内挿をした場合の2通りについて、それぞれ感度実験を行った。

図24は鉛直分解能を示し、45層では100 hPaより高い高度で約2 km、68層では100～10 hPaで約500 m、85層では850～10 hPaで約500 mである。もともと、68層は赤道成層圏の準2年振動 (QBO: Quasi-Biennial Oscillation) の再現を目的として設定されたものである(Shibata and Deushi, 2005)が、その後、成層圏用の化学-気候モデル (CCM: Chemistry Climate Model) の標準版として使われ、次期のオゾンアセスメント用の国際モデル比較においても使われている。

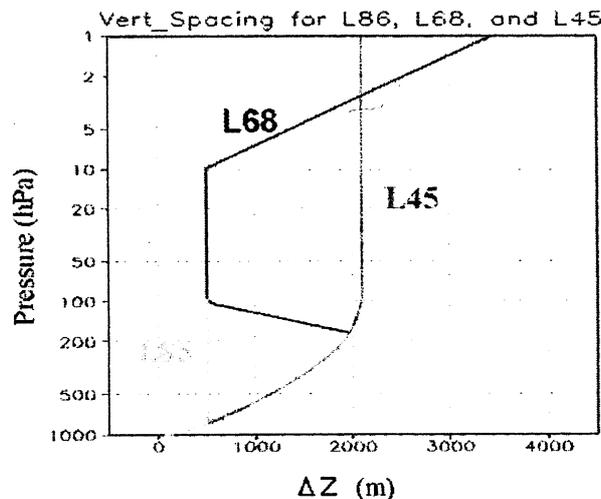


図24: MJ98-CTM の鉛直解像度  $\Delta Z$ (m) の高度分布。45層 (L45), 68層 (L68), 85層 (L85) の3つのモデルの層数について示す。

ERA40の1981-2000年の20年の気象データをデータ同化に用いて、熱帯の地表で経度的には一様、10S-10Nの間で一定のパッシブ・トレーサ濃度を、初期のヶ月間（1981年1月）だけ維持し、他の期間はゼロに保つ、いわゆるデルタ関数に対するグリーン関数を求める方法でage of air の計算を行い、参考のためデータ同化無しモデル(T42L45\_free)も積分を行った。海面水温の境界条件は毎年同じ値の気候値、温室効果気体濃度は固定した。図25に積分開始300日目の熱帯における3つのモデルのパッシブ・トレーサ濃度を示す。図から明らかなように、L45では濃度分布は非常に拡散的(diffusive)であり過ぎるのに対して、L68では非拡散的(non-diffusive)で集団としてまとまっており、優れた輸送特性を示している。図26に示すage spectrumでは、L68は鋭いピークを有している（この特徴はmean age では判らない）。

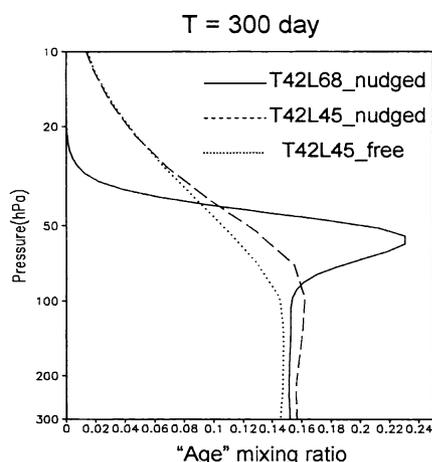


図25：3つのモデルのパッシブトレーサーの高度分布。赤道域（5S-5N）平均。300日目。

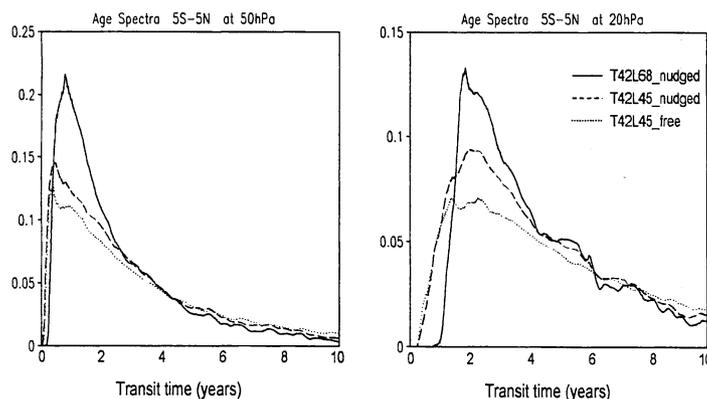


図26：熱帯(5S-5N)で平均した3つのモデルのageスペクトラム。(左)50 hPa高度、(右)20 hPa高度

Age spectrumの一次のモーメントで計算されるmean ageの緯度高度断面をみると（図27）、L68が最小のageを示し、観測値に近い値である。L45\_freeが最大のageを示して、観測から見積もられた値よりかなり大きい。

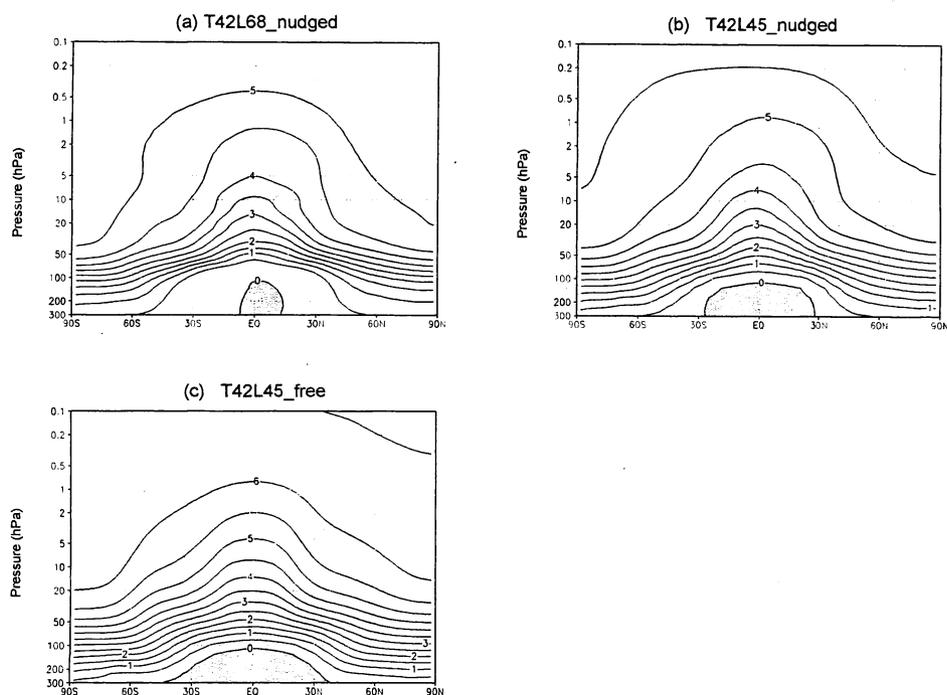


図27：3つのモデルのmean ageの緯度高度分布

Age of airで示されたように、L68はL45より現実的な輸送特性を示している。これは化学種にも反映されているはずなので、age of airを調べる際と同じ条件で積分したそれぞれのモデルのオゾン場を調べた。赤道域と中緯度の2つの地点でのオゾンゾンデ観測の気候値とモデルのオゾン気候値の比較から、L68はL45に比べて、オゾンの誤差が上部対流圏から下部成層圏で軽減される（図示せず）。帯状平均オゾン全量の季節変化で見ると（図示せず）、L68は熱帯では依然として系統誤差はあるものの、北半球の中高緯度ではかなり現実に近い振る舞いをしている。これに反して、データ同化を行わないL45\_freeは、熱帯では9月に最大、1月頃に最小となり、中高緯度は秋に最小、春に最大となっているという意味で、季節変化を定性的に再現しているが、しかし、正の系統誤差がかなり大きく、オゾン全量を過大評価している。データ同化を行った同じ鉛直分解能のL45\_nudgedはL45\_freeに比べて幾分か系統誤差が小さくなっていて、モデルの風のバイアスがオゾンの輸送特性に大きな影響を与えていることを示している。

MJ98-CTMでシミュレートしたL85版（保存性を満たす内挿法を使用）とL68版の結果を用いて、北半球冬季の320 K等温位面における日平均オゾン濃度差（L85版O3 - L68版O3）を見ると（図示せず）、高渦位の内部で、L85版オゾン濃度がL68版よりも常に低く再現されており、とくに傾圧性の擾乱が発達している領域で、この濃度差が大きくなっている。

図28に、L85版とL68版のオゾン数密度比(L85/L68)の緯度高度断面を北半球冬（上図）と北半球夏（下図）について示す。両季節ともL85版のほうがL68に比べて、下部成層圏ではオゾン濃度が低く、中・高緯度下部対流圏と低緯度対流圏ではオゾン濃度が高く計算されている。これらの結果が示すように、鉛直解像度を上げると、成層圏から対流圏へ輸送されるオゾン量は正味増加し、オゾン濃度が下部成層圏で減少、対流圏で増加という結果を引き起こしているように見える。なお、MJ98-CTMの標準解像度（L68）では下部成層圏でオゾン濃度の過大バイアスを持っている

が、鉛直解像度をL85にあげることでこのバイアスは減少した。

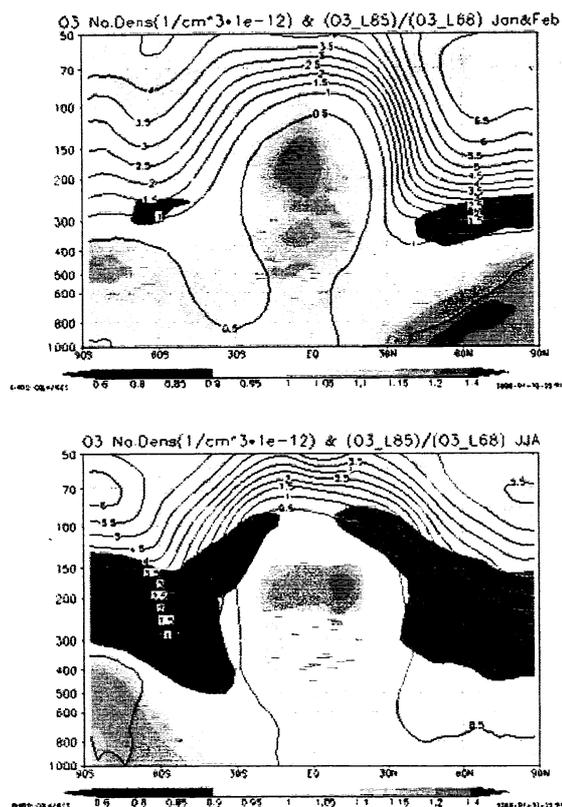


図28：MJ98-CTMで再現されたL85版とL68版のオゾン数密度の比 (L85版)/(L68版)の緯度—高度断面図。上図：1、2月平均値。下図：6、7、8月平均値。

鉛直分解能の影響を南北の中緯度（50度）でのオゾンの季節変化で見たのが、図29である。南半球の変化は単純で、L85はL68に比べて、季節を通して成層圏でオゾンは減少、対流圏では増加している。しかし、北半球はそう単純ではなく、冬に成層圏オゾンの減少、対流圏オゾンのわずかな増加が見られるが、夏には対流圏オゾンの増加が著しく、成層圏オゾンの減少は小さい。これは対流圏界面の季節変化に関係していると思われるが、さらに詳しい解析が必要である。オゾンは化学的に活発なので、パッシブ・トレーサとは必ずしも見なされないので、パッシブ・トレーサとしてよく用いられているN2OとHFで調べた（図示せず）。N2Oは対流圏起源なので上空ほど濃度が低く、一方、HFは成層圏起源なので下層ほど濃度が低い。つまり、両者は逆の高度分布をする。このことから、HFはオゾンで見られたのとほぼ同様の季節変化を示し、N2OはHFと逆の季節変化を示す。いずれも、鉛直分解能を高くしたことによって、成層圏—対流圏交換が増えたことを示しているが、夏と冬の非対称の振る舞いが何に起因しているかを探究することは今後の課題である。

以上、全球オゾン化学輸送モデルにおけるSTE過程再現の検証を行った。特に、STE過程のモデル鉛直分解能依存性について感度実験を行った。実験の結果により、CTMにインプットされる大気場は同じでも、CTMの鉛直解像度を上げるとその輸送精度が改善され、下部成層圏でのオゾン

濃度の過大バイアスは軽減することが示された。これは、対流圏への折れ込みなど傾圧性の擾乱における輸送特性が、L85版CTMとL68版CTMとで異なることが原因であると推測され、対流圏下層へ深く流入する輸送過程がL68版CTMでは十分に表現されていないためと考えられる。

今回の検証により、限られた計算機資源の中でSTE過程をより現実的に再現するには、GCM-CTM間の結合方法を空間的に疎におこなうことによって、CTMに必要な空間解像度を選択することが有効であることが示された。

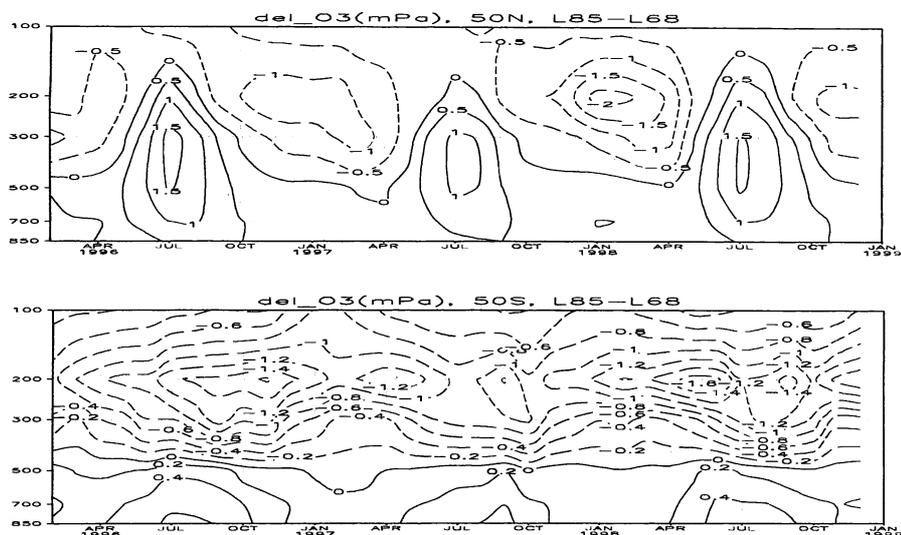


図29：中緯度（50度）における鉛直分解能増加が与えるオゾンの季節変化の差。単位はmPa。  
 (上)北半球、(下)南半球。

#### (5) 全球エアロゾル長期変動の衛星観測データ解析

衛星データの長期解析において最も難しい点は、センサーの劣化を厳密に校正することである。特に、エアロゾル解析に用いる可視及び近赤外チャンネルは衛星上での on-board 校正ができないために深刻である。NOAA 衛星シリーズに搭載の改良型高分解能放射計 (AVHRR: Advanced Very High Resolution Radiometer) のデータを利用して全球エアロゾルの長期解析を行うにあたり不可欠となる校正係数を、より正確に決定する方法を考案し、その結果得られた衛星解析値を地上観測値と比較して検証を行い、さらに、その校正係数を採用して、全球エアロゾルの、1981年から1999年までの約20年間にわたる長期解析を行った。なお、ここで全球とは、全球の海上の意味である（陸上では地表面アルベドの非一様性が強く、解析精度の維持が難しいことから、AVHRR 解析対象は、海上のエアロゾルに限る）。

##### ① NOAA センサー校正係数の決定

可視チャンネル  $i$  で受信されたカウント値  $C_i$  は、以下のようにみかけの反射率  $R_i$  に変換される。

$$R_i = S_i(C_i - C_{i,0})$$

$C_{i,0}$ は宇宙空間のカウント値、 $S_i$ は輝度値を求める傾きである。 $C_{i,0}$ についてはほぼ一定で、宇宙空間でのデータに基づき、NOAAより発表されている。問題となるのは $S_i$ で、NOAAの発表値 (Rao and Chen, 1995; 1999) には問題があることが、Mishchenko et al. (2002) により報告されている。オングストローム指数の推定は、2つの可視チャンネル ( $i = 1, 2$ ) の相対関係の影響を受けやすいので、校正係数  $S_i$  を絶対的に精度良く求めることに加え、校正係数  $S_1, S_2$  の相対比も精度良く求める必要がある。そこで、個々のチャンネルで校正係数を絶対検定するのではなく、2つのチャンネルの校正係数比  $S_2/S_1$  を決定した上で絶対値を決定する、という2つのステップにより校正係数の決定を行った。

相対校正については、熱帯域の積乱雲の反射率が一定であることを利用する方法が有効である。エル・チチョン火山およびピナツボ火山の火山噴火の影響を受ける期間 (1982年4月から1984年1月までと1991年7月から1993年4月まで) を除く期間を対象として、NOAA-7/AVHRR (1981年7月から1984年10月)、NOAA-9/AVHRR (1985年1月から1988年10月)、NOAA-11/AVHRR (1989年1月から1994年10月)、NOAA-14/AVHRR (1995年1月から1999年10月) の1,4,7,10月について、Vermote and Kaufman (1995) に従い、雲ピクセルの選定を行い (緯度: 北緯15度~南緯15度、経度: 東経100度~東経230度、太陽天頂角: 60度未満、衛星天頂角: 10度未満、相対方位角: 130度~180度、輝度温度 (チャンネル4): 220 K~225 K)、各ピクセルの条件 (位置関係) による理論計算値とカウント値から校正係数比を決定した (図30)。

校正係数の絶対値の決定には地上観測データが不可欠である。近年ではセンサー校正に適したサンフォトメーターの地上観測網が急速に発展し、全球規模で観測が行われるようになってきているが、1980年まで遡ったデータの入手は困難である。そのため本研究ではデータ蓄積がある直達日射観測データの活用を新しく考えた。

気象庁では15官署 (札幌、根室、秋田、宮古、輪島、松本、館野、米子、潮岬、福岡、鹿児島、足摺岬、石垣島、那覇、父島) にて直達日射観測を行っている。ここではまず全15官署のうち海岸沿いで水蒸気の影響の比較的少ない根室の地点データを用いることとし、次の手順で係数決定を試みた。1) 観測地点の衛星データを抽出する。2) 解析に必要な補助データ (海上風速、水蒸気量、オゾン量) をNCEP、TOMS及びTOVSデータより内挿し求める。3) 衛星のカウント値を雲の反射率で求められた係数比と仮定された  $S_1$  の値により、輝度値に変換する。4) 得られた輝度値から、通常の2チャンネル法の解析を行い、光学的厚さとオングストローム指数の推定を行う。5) 推定された光学的厚さとオングストローム指数、補助データを用いて、直達日射計算を行う。6) 直達日射の計算値と観測値の比較を行い、 $S_1$  の決定を行う。しかしながら、得られた結果は非常にばらつきが大きく、必要な精度にはほど遠いものであった (図31)。

図31のこの大きなばらつきの原因としては、観測値に含まれる雲の影響が大きいと考えられる。校正係数  $S_i$  を厳密に決定するためには、データを厳選し、雲の影響を排除する必要がある。そこで、衛星のピクセル内に含まれる雲の影響を最小限にするために、カウント値が低いピクセルを選択すること、そして更に  $S_1$  を変化させて衛星から求めた直達日射量と地上観測値の比較を行い、最もばらつきが小さい  $S_1$  を4月7月、10月1月の二つの月毎に決定することとした。このよう

にして、相対校正と同期間の1, 4, 7, 10月の校正係数  $S_1$ ,  $S_2$  を決定した (図 32)。図 32 によると NOAA-11/AVHRR までは、本研究の検定値を NOAA 推奨値と比較すると、大きさは異なるものの共に増加傾向にある。もっとも大きな相違がみられるのは、NOAA-14/AVHRR の観測期間で、本研究の検定値は 1997 年までは増加傾向にあるが、その年を境に減少傾向にある。NOAA 推奨値は 1998 年までは増加傾向にあるが、1999 年からはいったん検定値を下げそれからまた増加している。これは NOAA 推奨値が過大評価であったため、修正を施したからであると思われる。

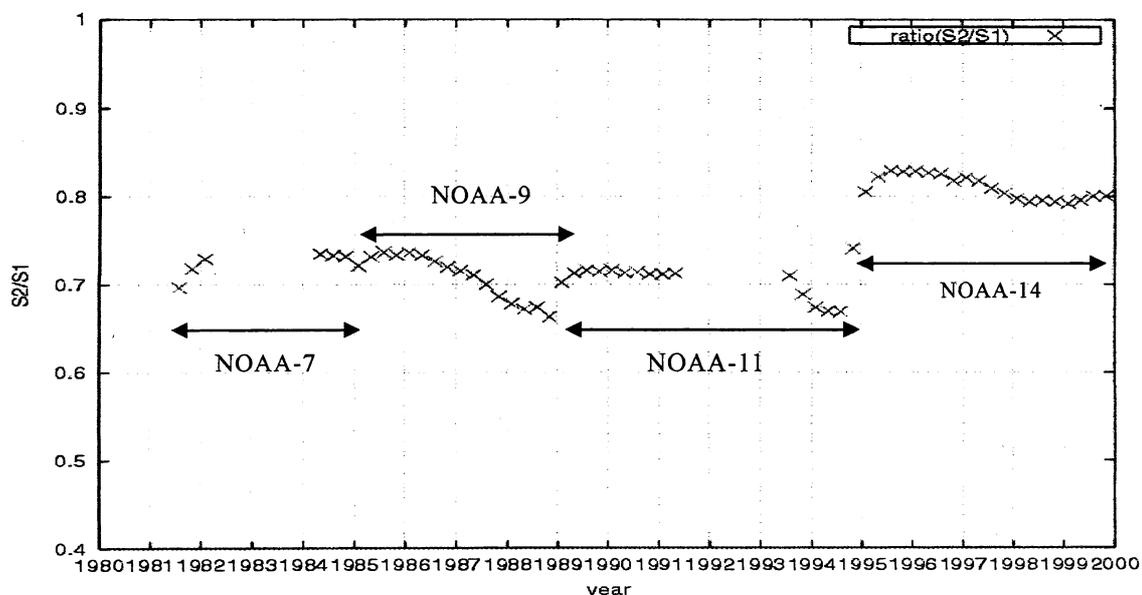


図 30 : 雲の反射率を用いた校正係数比の時系列

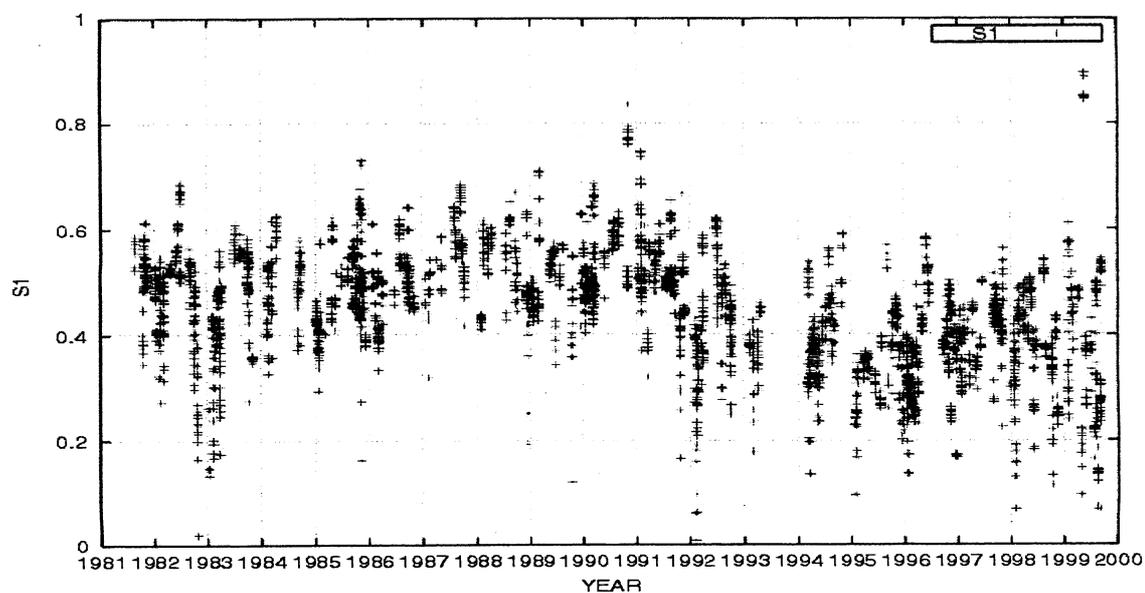


図 31 : 直達日射データを用いて得られた校正係数  $S_1$  の時系列。

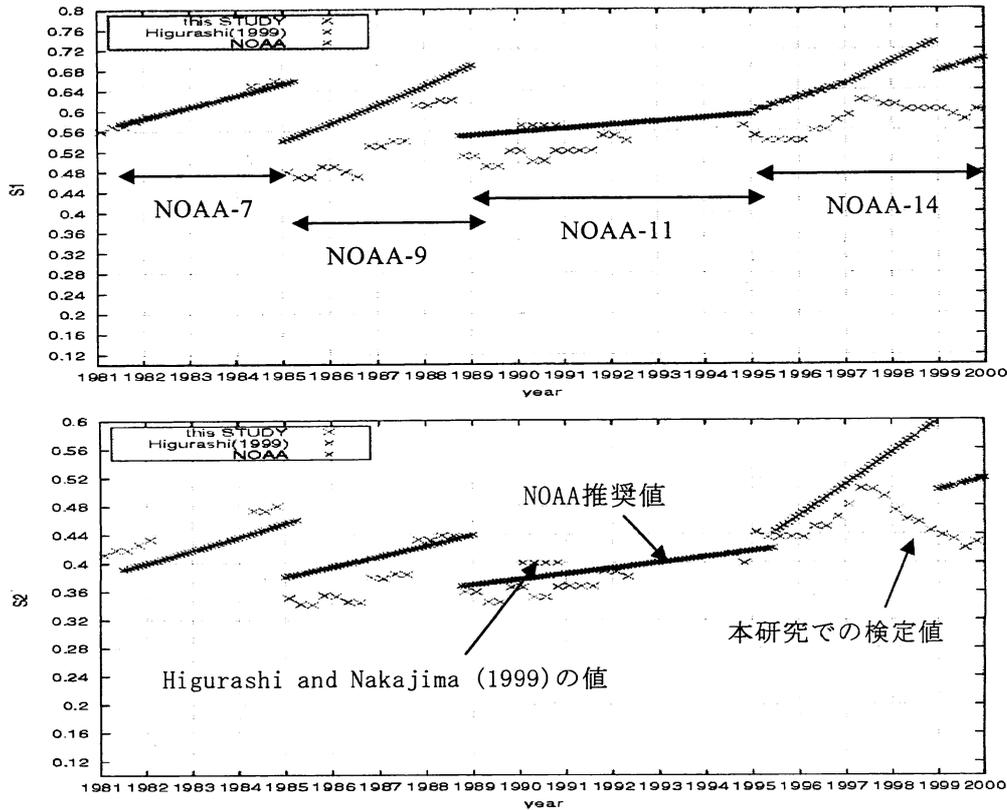


図 32 : 校正係数  $S_1$  (上図) ,  $S_2$  (下図) の時系列。

② 衛星解析と地上観測との比較

表 2 衛星解析値の検証に用いた AERONET データの観測サイト

AERONET site	Lat, Lon	Location	期間	備考
Cape Verde	16N, 22W	北アフリカ	1996-1999	土壌性エアロゾル
Bermuda	32N, 64W	アメリカ東海	1996-1999	工業地域・汚染粒子
Wallops	37N, 75W	アメリカ東海	1996, 1999	工業地域・汚染粒子
Andros_Island	24N, 77W	中央アメリカ	1998	バイオマス燃焼
Dry_Tortugas	24N, 82W	中央アメリカ	1996, 1998-1999	バイオマス燃焼
San_Nicolas	33N, 119W	アメリカ西海	1997-1999	工業地域・汚染粒子
Lanai	20N, 156W	北太平洋	1996-1998	外洋・海塩粒子
Ascension Island	7S, 14W	南大西洋	1996, 1999	外洋・海塩粒子
Male	4N, 73E	インド洋	1996, 1997	外洋・海塩粒子

本研究の校正係数により衛星から求められたエアロゾル光学的特性の妥当性を検証するために、AERONET による地上観測データとの比較を行った。AERONET は NASA によって整備された地上観測網で、太陽を自動追尾し、波長別太陽直達光と天空光輝度分布の観測を行うサン・スカイフォトメーターを世界各地に設置し(Holben et al., 1998)、測定された直達日射量より、波長  $\lambda = (0.340), (0.380), 0.440, (0.500), 0.670, 0.870, 1.020 \mu\text{m}$  の光学的厚さとサイズ分布をインバージョン

法 (Nakajima et al., 1996; Dubovik and King, 2000) により導出している。このような地上観測データは、衛星によるエアロゾル特性の推定とは独立に求められるので、衛星解析値の検証に有効である。AERONET には現在 100 以上の観測点があるが、ここでは沿岸および海上の島に位置し、エアロゾル輸送の相違がみられる 9 つの観測サイトを選択し (表 2)、衛星解析結果との比較を行った。

図 33 にエアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数についての衛星解析値と地上観測値との相関を示す。両パラメータとも、ある程度ばらつくものの、よい相関が得られた。ばらつきの原因としては、様々な原因が考えられる。沿岸では、外洋に比べ波が大きく荒れるので、反射光が強い可能性がある。また、沿岸付近での高濃度の海洋懸濁物質や河川からの土砂による海洋からの湧き出し光の影響も考えられる。これらの場合、全球一様に仮定されたエアロゾルの光学モデルを使ったアルゴリズムでは、光学的厚さを過大評価する。また、サンプリングの方法の問題も考えられる。衛星解析値は  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$  の範囲内での平均であり、AERONET は 1 点での観測である。大気エアロゾル輸送の空間変動が重要であるならば、衛星の推定法によるような大きなスケールでの光学的厚さと 1 点での観測の光学的厚さとの比較は妥当ではないかもしれない。また、特にオングストローム指数の推定は、さらに精度の高い放射輝度の再現が要求されるので、さまざまな誤差によりばらつきが大きくなることが知られている。図 33 には比較のため、衛星解析値として本研究の校正係数を用いた結果と合わせて NOAA 推奨値による結果も記した。図から明らかなように、本研究で決定された校正係数により、NOAA 推奨値によるエアロゾル光学的厚さおよびオングストローム指数にみられる著しい過大評価は、大幅に改善された。

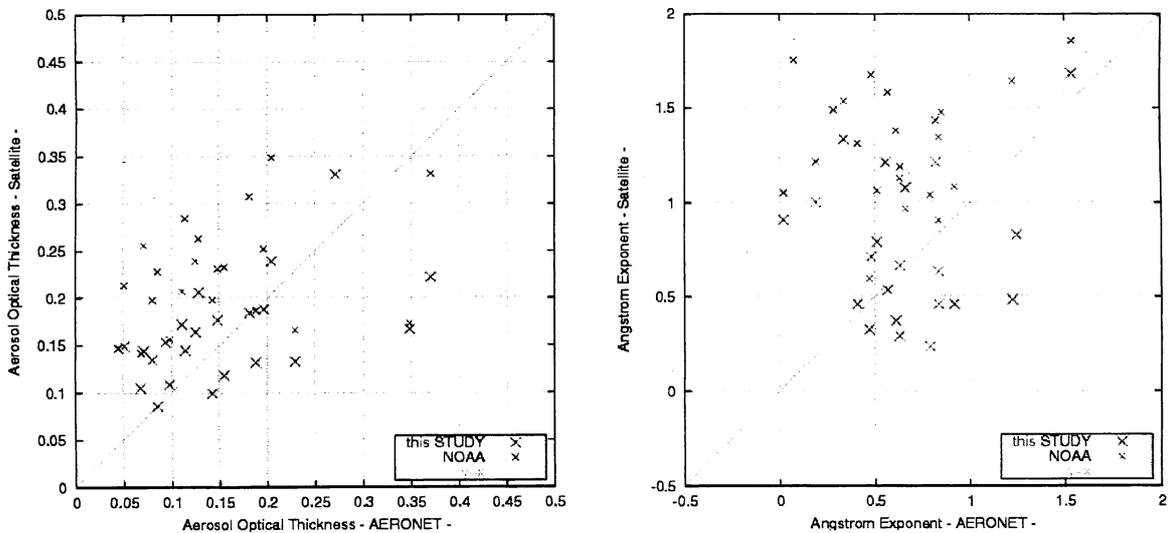


図 33 : 衛星と AERONET から得られた光学的厚さ(左)およびオングストローム指数(右)の比較。横軸 : AERONET、縦軸 : 衛星観測値。衛星観測値は、本研究の校正係数による結果 (大きな×) と、NOAA 推奨値を用いた結果 (小さな×) を示す。

### ③ 全球エアロゾル長期変動の衛星観測データ解析の結果

これまでに開発・改良を行ってきた 2 チャンネルアルゴリズム (Higurashi and Nakajima, 1999;

Higurashi et al., 2000) により、NOAA/AVHRR の 1981年から1999年までの約20年分の全球データ解析を行った。解析に用いた衛星データは、空間分解能およそ 5 kmの GAC (Global Area Coverage) データから作成されたセグメントデータで、緯度経度 $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$  の各セグメントに、中心位置から  $10 \times 10$  のピクセル情報が格納されている。それらに対し、雲スクリーニング等を施し、エアロゾル解析に最適なピクセルの選択を行った (Higurashi et al., 2000)。また、観測輝度値は、上記で決定したセンサーの校正係数を用いて、校正した。

1981年7月から 1999年までの1, 4, 7, 10月 (4ヶ月/年) について daily解析を行い、エアロゾルの光学的厚さ (Optical Thickness) とオングストローム指数 (Angstrom Index) の全球分布を得た。

図34 にその解析結果の一部を示す。この解析期間中、エアロゾル場に最も大きな影響を与えたのは、1982年4月のエル・チチョン火山噴火と1991年7月のピナツボ火山噴火の2つの大規模火山噴火であった。噴火起源の高濃度のエアロゾルが、噴火後数週間で赤道付近を1周し、その後徐々に高緯度側へ拡散していく様子が捉えられた。これによりエアロゾルの光学的厚さの全球的な著しい増加とオングストローム指数の増加が引き起こされ、その影響は数年という長期間に渡っていたことが示された。

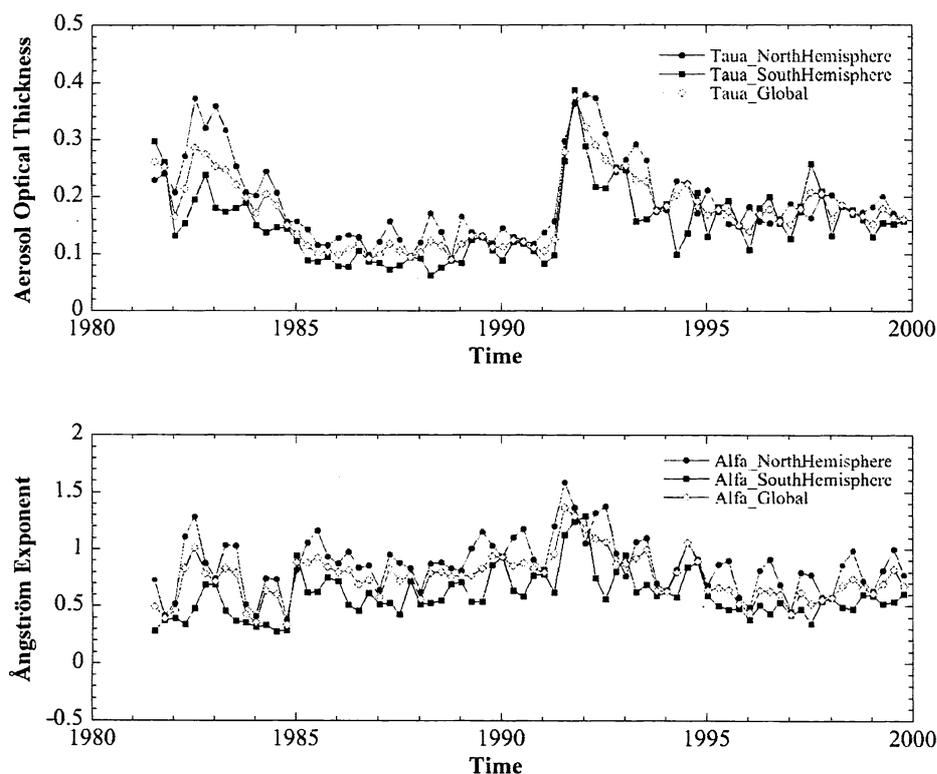


図34 : NOAA/AVHRR から得られたエアロゾルの光学的厚さ<sup>\*1</sup>(上)とオングストローム指数(下)の全球(◇)および半球(北半球: ●, 南半球: ■)平均の経年変化<sup>\*2</sup>。

\*1 波長 500 nm における光学的厚さ

\*2 1981年7月から 1999年までの 1, 4, 7, 10月

1994年と1997-98年のエルニーニョ年にインドネシア域で大規模な森林火災が発生したが、こう

した大規模森林火災の影響は、火山噴火ほど全球・長期的ではないものの、サハラダストの影響を遙かに凌ぐ強さを持ち、エアロゾル特性の長期変動にも単発的に大きなインパクトをもたらしていることが示された。

より長期的な変動としては、エアロゾルの光学的厚さが、ピナツボ火山噴火以降(その影響がほぼ無くなった 1995年以降も)、噴火以前のレベルに戻らず、全球的に 0.04 程高くなっている点が挙げられる。これがセンサー校正の影響によるものか、実際のシグナルなのかについては、もう少し検討が必要であるが、南半球平均ではこの変化がピナツボ火山噴火前後で連続的に起こっているようにも見え、センサー劣化だけでは説明できない。

#### (6) 対流圏エアロゾルモデルおよび衛星観測から導かれたエアロゾル光学特性の相互比較

本サブテーマ課題では、衛星から得られた情報 (NOAA/AAVHRR、MODIS) を元に大気中に含まれるエアロゾルの光学特性やエアロゾル成分を抽出する研究と、2つの全球エアロゾルモデル (SPRINTARS、MASINGAR) を用いた各種エアロゾルとエアロゾルの光学特性の分布、変動を評価する試みが行われている。ここでは、2002年を対象とし、エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数の2つの光学特性に関して、2002年の一年を通して衛星観測MODISから抽出された値と2002年の気象場を用いて全球大気エアロゾルモデルSPRINTARS と MASINGARをドライブして得られた各種エアロゾルを元に導出された2つの値、計3つの値を相互に比較検証した結果について報告する。さらに、全球エアロゾルモデルでは各種のエアロゾル (硫酸エアロゾル、土壌性エアロゾル、煤、有機炭素、海塩) が得られるので、それらについての2つのモデル結果の比較も行ったが、ここでは述べない。

##### ① 比較方法

全球エアロゾルモデルについては、emissionデータなどの計算にかかわる諸条件の統一は、モデルの構成上困難か、あるいは、非常に手間がかかるため、実施しなかった。モデルに条件として与えるエアロゾルおよびエアロゾル源ガスのemissionデータを統一するのが理想ではある。しかし、emissionデータの入力方法がモデルによって技術的に異なるので、emissionデータを統一するためには、入力方法も揃えなければならない。また、それぞれのモデルが標準的に用いているemissionデータに対してモデルをチューニングしてあり、emissionデータを統一するためには、もう一度チューニングし直す必要がある。このようなことから、SPRINTARSも16のモデルのひとつとして参加している全球エアロゾルモデル・衛星観測・地上観測の相互比較プロジェクトAEROCOM (Aerosol Model Intercomparison Project) でも、emissionデータの統一は未だ十分ではない。SPRINTARSは、人為起源エアロゾルemissionデータについては、大気海洋大循環結合気候モデルCCSR/NIES/FRCGC (MIROC) による20世紀再現実験に使用したのと同じデータを使用し、その他は適切なものを使用。MASINGARは、適切な各種データベースなどを使用。

ナッジング (nudging) データ同化に使用する気象場の客観解析データは、NCEP/NCAR再解析データを両方のモデルで使用した：SPRINTARSは、水平風速、気温、比湿をナッジング；MASINGARは、水平風速のみをナッジング。モデル解像度は、SPRINTARSは、T106L20、MASINGAR は、T63L30。その他のモデルの詳細は、SPRINTARSはTakemura et al. (2000; 2002)、MASINGARは Tanaka et al. (2003)、Tanaka and Chiba (2005)を参照。エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数は、モ

デルで得られた各種のエアロゾルの粒径、およびエアロゾルの鉛直分布から導出。計算結果の出力は一日一回である。

衛星観測データは、MOD02SSH (Terra/MODIS 4 km 解像度) から作成した 0.25度x0.25度のセグメント化データである。エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数を導出する解析アルゴリズムは4-channel 法 (Higurashi and Nakajima, 2002)を使用し、期間は2002年 1月1日～ 12月31日までとした。衛星からの導出は、陸上では地表面アルベドの非一様性が強く、解析精度の維持が難しいことから、海上に限る。なお、衛星観測によるエアロゾルの光学的厚さは、特にエアロゾルの少ない領域、すなわち、光学的に薄い領域で過大になるとされており (Kaufman et al., 2005)、比較の際、注意が必要である。

地球をいくつかの地域に分割し、それぞれの地域での領域平均について一年間の時系列の変動を見ることとした。さらに全球、北半球、南半球の時系列変動も比較した。

## ② エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数の比較結果

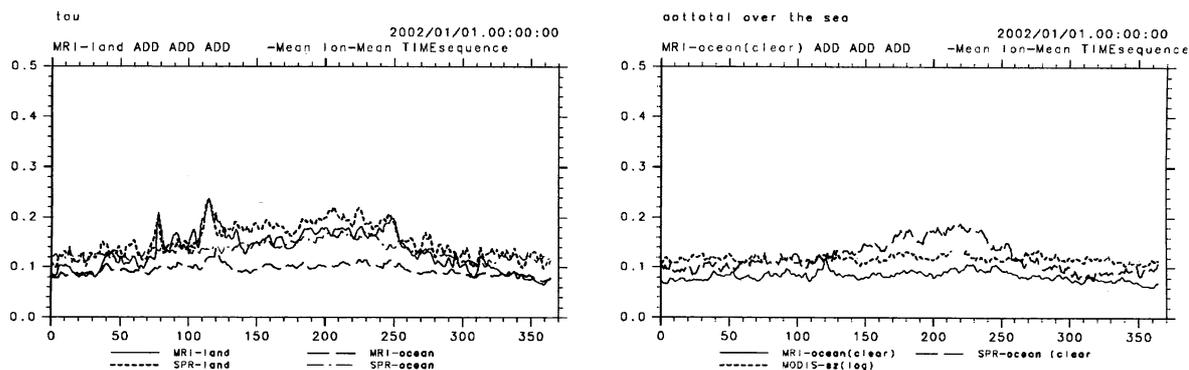
図35に光学的厚さの比較結果を示す。左列は、全天大気での海陸別の2つのモデルの比較、右列は、晴天大気のみ、海上のみでの2つのモデルと衛星の比較である。全天大気の全球では、陸上でSPRINTARSとMASINGARは極めてよい一致を示している。しかしながら、海上ではMASINGARは一年を通じてSPRINTARSより小さい。晴天大気の海上では、北半球夏の期間を除いて、SPRINTARSモデルはMODIS観測とよく一致している。MASINGARはやはり小さい。北半球は南半球よりも光学的厚さが大きいという特徴は3つすべてに現われているが、これは、大気中のエアロゾル量の南北半球の違いを反映している (図示せず)。東アジアでは、全天大気の特に陸上で、モデル間の違いが著しく、全体にMASINGARが小さい。SPRINTARSは、陸上と海上との差異が著しく大きいのに対し、MASINGARはほとんどない。モデル間の光学的厚さの違いは、陸上でのエアロゾル分布に大きな差異があることを反映している。晴天大気の海上では、両モデルの違いは小さくなる。MODIS観測は両モデルの中間的な値を示している。東南アジアでは、東アジアとは逆に、全天大気の陸上で、MASINGARは大きい。晴天大気の海上では、MODIS観測とMASINGARの対応がよくなっているのに対して、SPRINTARSは全体に高い値を示し、時間変動度も大きい。このように、地域によってモデルが示す特徴が異なっている原因の究明は、これからの課題である。

図36にオングストローム指数の全球の比較結果を示す。左は、全天大気での海陸別の2つのモデルの比較、右は、晴天大気のみ、海上のみでの2つのモデルと衛星の比較である。オングストローム指数は、エアロゾルの大きさを示すパラメータと考えられ、この指数の値が小さいほど粒子は大きい。全天大気では、陸上でも海上でも、MASINGARがSPRINTARSの2倍程度の指数値を持つ。海上の方が陸上に比べてオングストローム指数が小さい、すなわち、粒径が大きい。この理由としては、硫酸エアロゾルの場合には、海上のほうが水蒸気付着が多くなって肥大すること、海塩性エアロゾルは比較的大きいことなどが考えられる。晴天大気海上では、MASINGARの指数が大きめである。

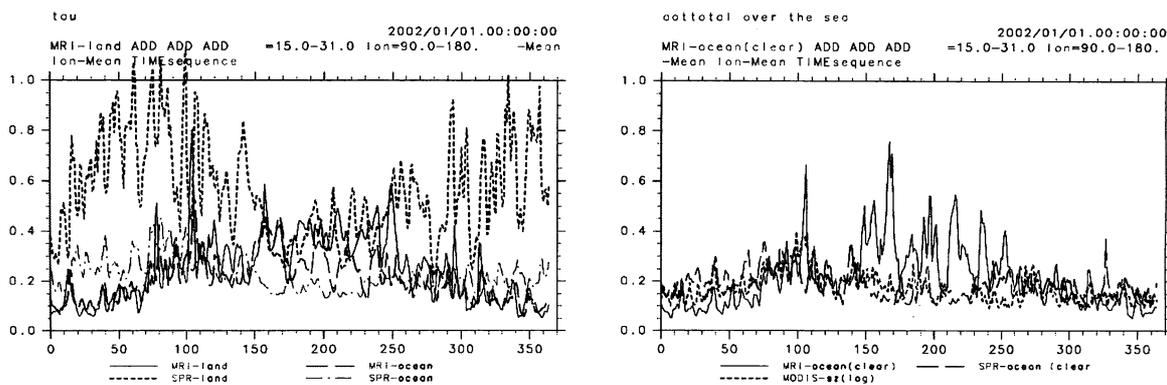
より意味のある比較をするためには、比較する光学特性の導出方法のそれぞれでの見直しなど、もう少し比較条件を統一する必要がある。このような比較研究は、今回報告する初期的解析結果をみると、衛星観測によるエアロゾルの推定方法、および、モデルによるエアロゾル表現の質を

検証し、向上させるのに有用だと思われる。

全球



30N-60N, 90E-180E (東アジア)



0N-30N, 90E-180E (東南アジア)

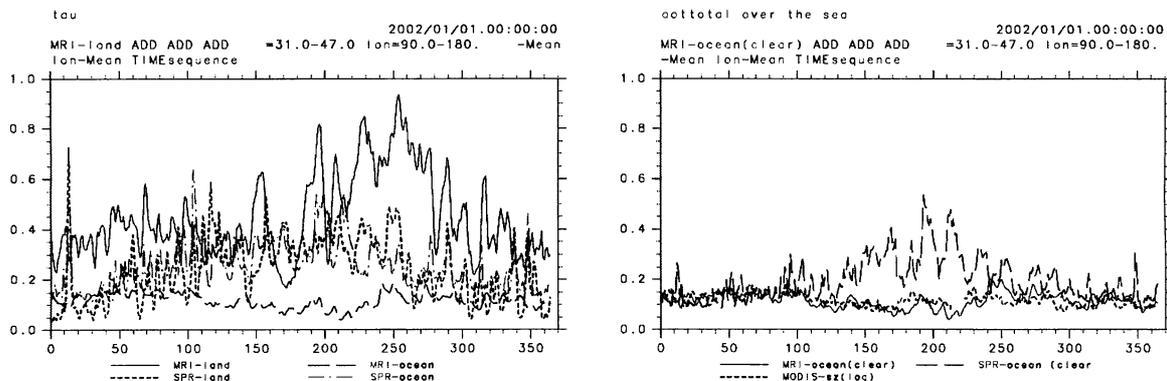


図35 : エアロゾルの光学的厚さ (波長550 nm) の領域平均時系列 (2002年)。

SPR: SPRINTARS、MRI: MASINGAR

(左列) 全天大気の高陸別モデル間比較図。実線: MRI (陸上), 破線: MRI (海上), 点線: SPR (陸上), 一点鎖線: SPR (海上)

(右列) 晴天大気の高モデル・衛星間比較図。実線: MRI (海上), 破線: SPR (海上), 点線: MODIS (海上)

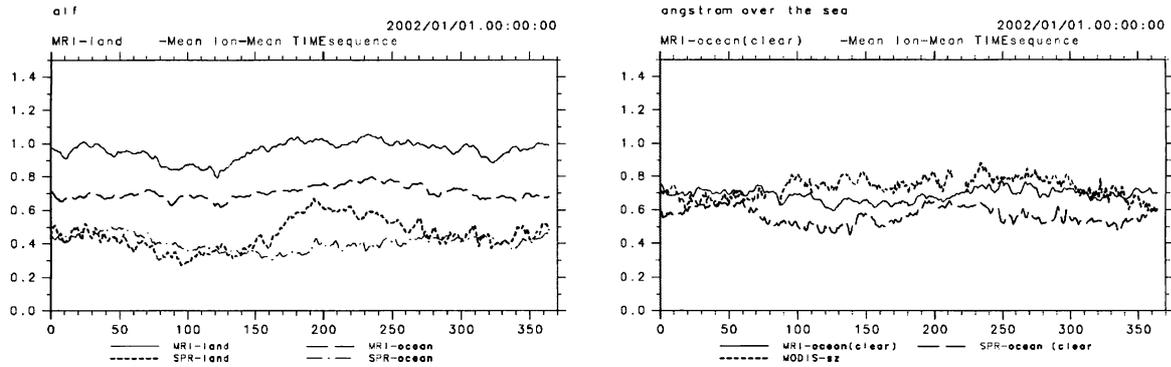


図36：オングストローム指数の全球平均時系列（2002年）。

SPR: SPRINTARS、MRI: MASINGAR

(左) 全天大気の海陸別モデル間比較図。実線: MRI (陸上), 破線: MRI (海上), 点線: SPR (陸上), 一点鎖線: SPR (海上)

(右) 晴天大気のモデル・衛星間比較図。実線: MRI (海上), 破線: SPR (海上), 点線: MODIS (海上)

## 5. 本研究により得られた成果

- ・ 全球化学-気候モデルCHASERとエアロゾル気候モデルSPRINTARSの結合を行い、気候モデル中での対流圏化学と各種エアロゾル（硫酸塩、無機・有機炭素、土壌粒子、海塩粒子）の同時シミュレーションを可能にし、モデル計算の評価を行った。この化学・エアロゾル結合気候モデルにより将来の気候変動予測精度の向上が期待できる。

- ・ CHASERモデルを用いて、IPCC SRES排出シナリオのうち、A2（高emission増加）、A1B（中程度emission増加）、B1（低emission増加）の3つのシナリオについて、2100年までの将来予測実験を行い、emission 変化と気候変化・変動とがオゾン・メタンに関する対流圏化学過程および硫酸塩エアロゾル分布の時間発展に対する影響について各シナリオごとに評価を行った。これにより、エアロゾルを含む対流圏化学変動と気候変動との関連性についての総合的な知見が得られた。

- ・ 過去の対流圏オゾン変動の再現実験を行い、放射強制力の見積もりを行った。産業革命以前から現在までの対流圏オゾン変動による放射強制力は $0.47 \text{ Wm}^{-2}$ （長波 $0.41$ 、短波 $0.06 \text{ Wm}^{-2}$ ）とメタンと同等の値が見積もられた。同時に、過去の対流圏オゾン量には、前駆気体のemission、気候、成層圏オゾン量の変動がそれぞれ大きく影響することを明らかにした。

- ・ 衛星観測データに見られる熱帯域の対流圏オゾンの季節内振動に着目し、化学-気候モデルで再現実験を実行し、観測との比較を行いモデル再現性の評価を行った。モデルは気象場変動のオゾン分布への影響を定性的には良く再現しているが、積雲対流による鉛直輸送を過小評価している可能性が示唆された。

- ・ 全球エアロゾルモデルSPRINTARSを簡略化したことにより、大気海洋大循環結合気候モデルにSPRINTARSを結合したモデルを数十年～数百年の長期にわたって時間積分することが、現在使用可能なスーパーコンピュータで可能となった。

- ・ 雲微物理過程に基づいたパラメタリゼーションをSPRINTARSに導入したことにより、現実的なエアロゾル間接効果のシミュレーションが可能となった。その結果、エアロゾルの気候に対する

影響を考慮した気候変化・変動シミュレーションがなされており、精度の高い温暖化評価等が実施されている。

- ・SPRINTARSを用いて人為起源エアロゾルによる気候影響を具体的に評価した。定性的な第2種エアロゾル間接効果だけでは雲・降水の実際の長期変化は説明できず、フィードバックメカニズムを考慮しなければならないことが示された。一方、人為起源エアロゾルが非常に多い東アジア域だけは、エアロゾル増加による雲水量増加・降水量減少という第2種エアロゾル間接効果が具現化する傾向を示した。

- ・対流圏エアロゾル輸送モデルMASINGARを使って、対流圏エアロゾルのひとつである鉍物性ダストの発生、輸送、沈着に関する長期間、44年間（1958-2001年）、のシミュレーションを行い、放射強制力の評価や、ダスト発生量の長期変動の解析を行った結果、以下のことがわかった。年間ダスト発生量の44年平均は、全球で2310 Tg であり、そのうち、サハラは1266 Tg で約半分を占め、南アラビアは215 Tg で1割以下である。ダスト発生量に関するこの44年間のトレンドとして、全球では、年間発生量のトレンド (-305 Tg/43yr) に対し、北半球夏季の発生量のトレンド (-213 Tg/43yr) が大部分を占める；年間発生量の全球トレンド (-305 Tg/43yr) のうち、南アラビア領域のトレンド (-154 Tg/43yr) が約半分を占め、全球ダスト年間発生量そのものの半分を占めるサハラのトレンド(-90 Tg/43yr)より大きい。この南アラビア領域の年間ダスト発生量の減少トレンドは、地上風の強風日数の減少トレンドに関係あることが示唆された。

- ・粒子形成に最も強く関与しているエアロゾルのひとつである硫酸塩エアロゾルおよびそれを核とした雲粒子の形成、成長に関するビン法モデルの開発を行い、エアロゾルから生ずる雲粒子の粒系分布を求める手法を提示した。

- ・モデルの鉛直分解能が、オゾン、エアロゾルおよびこれらに関連する物質、ガスの鉛直輸送、特に、対流圏と成層圏の交換過程にどの程度の影響を与えるかについて、いくつかの鉛直分解能のもとでの数値実験を行い、観測で得られるオゾン濃度などとの比較を行って精度検証を試み、計算機資源の制約がある状況において、数値モデルにおいて気象データ部分の鉛直分解能よりも大気微量成分部分の鉛直分解能を高くするという方法が有効であることを示した。

- ・衛星データによるエアロゾル光学特性の長期間にわたる変動の解析を行うため、1981年以來のデータの蓄積があるNOAA衛星シリーズ搭載のAVHRRデータのうち2つの可視チャンネルの校正係数を、地上観測値や各種データを駆使して決定した。その結果、エアロゾルの光学的厚さ (Optical Thickness) およびオングストローム指数 (Angstrom Index) にみられていたこれまでの著しい過大評価は、大幅に改善された。この校正係数を採用し、エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数の約20年分の全球分布を推定し、エアロゾル特性の時空間変動に関し、より広域で長期に渡る知見が得られた。この成果は、エアロゾル輸送モデルの改良、エアロゾルの気候影響評価の精度向上、気候変化・変動予測の研究を進める上で、貴重なデータとなるものと期待される。

- ・エアロゾルの光学的厚さとオングストローム指数の2つの光学特性に関して、2002年の一年を通して衛星観測MODISから抽出された値と2002年の気象場を用いて全球大気エアロゾルモデルSPRINTARS と MASINGARをドライブして得られた各種エアロゾルを元に導出された2つの値、計3つの値の時空間分布を相互に比較検証する試みを行った。光学的厚さについては、全体的には、3者よい一致を得たといえるが、東アジアと東南アジアとで2つのモデルの値の大小関係が逆になるなど、検討すべき課題が残された。オングストローム指数に関しては、初期段階の試み

であり、3者の違いが大きい。

## 6. 引用文献

- Bader, J. and M. Latif (2003): The impact of decadal-scale Indian Ocean sea surface temperature anomalies on Sahelian rainfall and the North Atlantic Oscillation. *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2169-2172.
- Dubovik O. and M.D. King (2000): A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, 105, 20673-20696.
- Fuchs, N.A. (1964): *The Mechanics of Aerosols*. Revised and Enlarged Edition, translated from the Russian by R.E. Daisley and M. Fuchs, Pergamon Press, Oxford, pp.181-249.
- Hegg D.A., Radke L. F. and Hobbs P.V. (1990): Particle production associated with marine clouds. *J. Geophys. Res.*, 95, D9, 13917-13926.
- Higurashi, A., and T. Nakajima (1999): Development of a two channel aerosol retrieval algorithm on global scale using NOAA / AVHRR. *J. Atmos. Sci.*, 56, 924-941.
- Higurashi, A., and T. Nakajima (2002): Detection of aerosol types over the East China Sea near Japan from four-channel satellite data. *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1836-1839.
- Higurashi, A., T. Nakajima, B. N. Holben, A. Smirnov, R. Frouin, and B. Chatenet (2000): A study of global aerosol optical climatology with two-channel AVHRR remote sensing. *J. Climate*, 13, 2011-2027.
- Holben B. N., and Coauthors (1998): AERONET – A federated instrument network and data archive for aerosol characterization. *Remote Sens. Environ.*, 66, 1-16.
- IPCC (2001): *Climate Change 2001: The Scientific Basis*. J. T. Houghton, Y. Ding, D. J. Griggs, M. Noguer, P. J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell, and C. A. Johnson, Eds., Cambridge University Press, 881pp.
- Jaeger-Voirol, A. and Mirabel, P. (1989) Heteromolecular nucleation in the sulfuric acid-water system, *Atmos. Environ.*, 23, 2053-2057.
- Kaufman, Y. J., O. Boucher, D. Tanre, M. Chin, L. A. Remer, and T. Takemura (2005): Aerosol anthropogenic component estimated from satellite data. *GRL*, 32, L17804, doi: 10.1029/2005GL023125.
- Lamarque, J.-F., P. Hess, L. Emmons, L. Buja, W. Washington, and C. Granier (2005): Tropospheric ozone evolution between 1890 and 1990, *J. Geophys. Res.*, 110, D08304, doi:10.1029/2004JD005537.
- Mishchenko, M. I., J. E. Penner, D. Anderson (2002): Global aerosol climatology project. *J. Atmos. Sci.*, 59, 249-249.
- Nakajima, T., G. Tonna, R. Rao, Y. Kaufman, and B. Holben (1996): Use of sky brightness measurements from ground for remote sensing of particulate polydispersions. *Appl. Opt.*, 35, 2672-2686.
- Nozawa, T., S. Emori, A. Numaguti, Y. Tsushima, T. Takemura, T. Nakajima, A. Abe-Ouchi and M. Kimoto (2001): Projections of future climate change in the 21st century simulated by the CCSR/NIES CGCM under the IPCC SRES scenarios. In "Present and Future of Modeling Global Environmental Change: Toward Integrated Modeling Matsuno, T. and H. Kida eds., Terra Scientific Publishing

- Company, Tokyo, pp. 15-28.
- Rao C. R. N., and J. Chen (1995): Inter-satellite calibration linkages for the visible and near-infrared channels of the Advanced Very High Resolution Radiometer on the NOAA-7, -9, and -11 spacecraft. *Int. J. Remote. Sens.*, 16, 1931-1942.
- Rao C. R. N. and J. Chen (1999): Revised post-launch calibration of the visible and near-infrared channels of the Advanced Very High Resolution Radiometer (AVHRR) on the NOAA-14 spacecraft. *Int. J. Remote. Sens.*, 20, 3485-3491.
- Sehili, A. M., Wolke, R., Knoth, O., Simmel, M., Tilgner, A. and Herrmann H. (2005): Comparison of different model approaches for the simulation of multiphase processes, *Atmos. Environ.*, 39, 4403-4417.
- Shibata, K. and M. Deushi (2005): Effect of the vertical resolution in the upper troposphere and lower stratosphere on ozone abundance across the tropopause. 3rd International Symposium on Air Quality Management at Urban, Regional and Global Scales, Istanbul, Turkey, 26-30 September 2005.
- Shibata, K., M. Deushi, T. Sekiyama, and H. Yoshimura (2005): Development of an MRI chemical transport model for the study of stratospheric chemistry. *Papers in Geophys. Meteorol.*, 55, 75-118.
- Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa, and H. Akimoto, CHASER (2002a): A global chemical model of the troposphere 1. Model description. *J. Geophys. Res.*, 107, 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, 10.1029/2001/JD001114.
- Sudo, K., M. Takahashi, and H. Akimoto (2003): Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations. *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2256  
10.1029/2003GL018526.
- 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.
- Tanaka, T.Y. and M. Chiba (2005): Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR. *J. Meteorol. Soc. Japan*, 83A, 255-278
- Tanaka, T.Y., K. Orito, T. Sekiyama, K. Shibata, M. Chiba, and H. Tanaka (2003): MASINGAR, a global tropospheric aerosol chemical transport model coupled with MRI/JMA 98 GCM: Model Description. *Pap. Meteorol. Geophys.*, 53, 109-138.
- Vermote, E., and Y. J. Kaufman (1995): Absolute calibration of AVHRR visible and near-infrared channels using ocean and cloud views. *Int. J. Remote Sensing*, 16, 2317-2340.
- Wang, B., R. Wu and K. M. Lau (2001): Interannual variability of Asian summer monsoon: Contrasts

between the Indian and the Western North Pacific East Asian monsoons. *J. Climate*, 14, 4073-4090.  
Ziemke, J.R. and S. Chandra (2003): A Madden-Julian Oscillation in tropospheric ozone, *Geophys. Res. Lett.*, 30(23), 2182, doi:10.1029/2003GL018523.

## 7. 国際共同研究等の状況

### ・大気化学に関連するモデル間相互比較プロジェクト

気候変動に関する政府間パネル (IPCC) 第4次報告書 (AR4) の大気化学に関連するモデル間相互比較プロジェクト (リーダー: Michael Gauss, Frank Dentener) に全球化学-気候モデル CHASER が参加し、化学-気候モデルによる実験・解析で貢献を行った (Stevenson et al., 2005; Dentener et al., 2005; Gauss et al., 2005; van Noije et al., 2005)。

### ・AEROCOM (Aerosol Model Intercomparison Project)

カウンターパート: Michael Schulz (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, France), Stefan Kinne (Max-Planck-Institut für Meteorologie, Germany)

参加・連携状況: 当研究課題により開発・改良を進めている全球エアロゾル輸送・放射モデル SPRINTARS のシミュレーション結果の提供及び相互比較への貢献。主に、当研究課題メンバーの竹村俊彦 (九州大学) が対応している。

国際的な位置づけ: 全球エアロゾルモデル・衛星観測・地上観測の相互比較プロジェクトであり、16のモデルが参加している。欧米以外からはSPRINTARSが唯一参加している。IPCC AR4 のエアロゾル関連部分では、AEROCOMの成果が中心的な役割を果たす予定である。

ホームページ: <http://nansen.ipsl.jussieu.fr/AEROCOM/>

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文 (査読あり)>

#### ① 江守正多・高橋潔・野沢徹・神沢博: 天気, 50, No.5, 379-384 (2003)

「地球温暖化の影響対策研究から見た気候モデル研究. 専門分科会「気象学における地球環境問題」の報告 4」

#### ② Sudo, K., M. Takahashi, and H. Akimoto: *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2256, 10.1029/2003GL018526 (2003)

“Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations”

#### ③ 竹村俊彦: 天気, 50, 425-435 (2003)

「全球3次元エアロゾル輸送・放射モデルを用いたエアロゾルの分布及び放射強制に関する研究」(2002年度日本気象学会山本・正野論文賞受賞記念講演)

#### ④ Takemura, T., T. Nakajima, A. Higurashi, S. Ohta, and N. Sugimoto: *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8659, doi:10.1029/2002JD003210 (2003)

“Aerosol distributions and radiative forcing over the Asian-Pacific region simulated by Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS)”

- ⑤ Zhu, B., H. Akimoto, Z. Wang, K. Sudo, J. Tang, and I. Uno: *Geophys Res. Lett.*, 31, L17104  
10.1029/2004GL020609 (2004)  
“Why does surface ozone peak in summertime at Waliguan?”
- ⑥ Zaizen Y., K. Okada, M. Ikegami, Y. Sawa and Y. Makino: *J. Meteorol. Soc. Japan*, vol. 82, No.4,  
pp.1147-1160 (2004)  
“Numerical-size distribution of Aerosol particles in the free troposphere over the northwestern Pacific  
Ocean-Influence of Asian outflow and tropical air transport”
- ⑦ Irie, H., K. Sudo, H. Akimoto, A. Richter, J.P. Burrows, T. Wagner, M. Wenig, S. Beirle, Y. Kondo,  
V.P. Sinyakov, and F. Goutail: *Geophys. Res. Lett.*, 32, L11810 doi:10.1029/2005GL022770 (2005)  
“Evaluation of long-term tropospheric NO<sub>2</sub> data obtained by GOME over East Asia in 1996-2002”
- ⑧ Shibata, K., M. Deushi, T. Sekiyama, and H. Yoshimura: *Papers in Geophys. Meteorol.*, 55, 75-118  
(2005)  
“Development of an MRI chemical transport model for the study of stratospheric chemistry”
- ⑨ Tanaka, T.Y. and M. Chiba: *J. Meteorol. Soc. Japan*, vol. 83A, 255-278 (2005)  
“Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR
- ⑩ Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima, and T. Nakajima : *J. Geophys. Res.*, 110,  
D02202, doi:10.1029/2004JD005029 (2005)  
“Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation  
model”
- ⑪ Takigawa, M., K. Sudo, H. Akimoto, K. Kita, N. Takegawa, Y. Kondo, and M. Takahashi: *J. Geophys.  
Res.*, 110, D21313, doi:10.1029/2005JD006226 (2005)  
”Estimation of the contribution of intercontinental transport during the PEACE campaign by using a  
global model”
- ⑫ Stevenson, D.S., F.J. Dentener, M.G. Schultz, K. Ellingsen, T.P.C. van Noije, O. Wild, G. Zeng, M.  
Amann, C.S. Atherton, N. Bell, D.J. Bergmann, I. Bey, T. Butler, J. Cofala, W.J. Collins, R.G.  
Derwent, R.M. Doherty, J. Drevet, H.J. Eskes, A.M. Fiore, M. Gauss, D.A. Hauglustaine, L.W.  
Horowitz, I.S.A. Isaksen, M.C. Krol, J.-F. Lamarque, M.G. Lawrence, V. Montanaro, J.-F. Muller, G.  
Pitari, M.J. Prather, J.A. Pyle, S. Rast, J.M. Rodriguez, M.G. Sanderson, N.H. Savage, D.T. Shindell,  
S.E. Strahan, K. Sudo, and S. Szopa: *J. Geophys. Res.*, 111, D08301, doi:10.1029/2005JD006338  
(2006)  
"Multi-model ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone"
- ⑬ Gauss, M., Myhre, G., Isaksen, I. S. A., Grewe, V., Pitari, G., Wild, O., Collins, W. J., Dentener, F. J.,  
Ellingsen, K., Gohar, L. K., Hauglustaine, D. A., Iachetti, D., Lamarque, J. -F., Mancini, E., Mickley,  
L. J., Prather, M. J., Pyle, J. A., Sanderson, M. G., Shine, K. P., Stevenson, D. S., Sudo, K., Szopa, S.  
and Zeng, G: *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 6, pp 575-599, 24-2 (2006)  
”Radiative forcing since preindustrial times due to ozone change in the troposphere and the lower  
stratosphere”
- ⑭ van Noije, T. P. C., Eskes, H. J., Dentener, F. J., Stevenson, D. S., Ellingsen, K., Schultz, M. G., Wild,  
O., Amann, M., Atherton, C. S., Bergmann, D. J., Bey, I., Boersma, K. F., Butler, T., Cofala, J.,

Drevet, J., Fiore, A. M., Gauss, M., Hauglustaine, D. A., Horowitz, L. W., Isaksen, I. S. A., Krol, M. C., Lamarque, J. -F., Lawrence, M. G., Martin, R. V., Montanaro, V., Müller, J. -F., Pitari, G., Prather, M. J., Pyle, J. A., Richter, A., Rodriguez, J. M., Savage, N. H., Strahan, S. E., Sudo, K., Szopa, S. and van Roozendaal, M: Atmos. Chem. Phys. Discuss., Vol. 6, pp 2965-3047, 12-4 (2006)

"Multi-model ensemble simulations of tropospheric NO<sub>2</sub> compared with GOME retrievals for the year 2000"

- ⑮ Dentener, F., D. Stevenson, K. Ellingsen, T. van Noije, M. Schultz, M. Amann, C. Atherton, N. Bell, D. Bergmann, I. Bey, L. Bouwman, T. Butler, J. Cofala, B. Collins, J. Drevet, R. Doherty, B. Eickhout, H. Eskes, A. Fiore, M. Gauss, D. Hauglustaine, L. Horowitz, I. Isaksen, B. Josse, M. Lawrence, M. Krol, J.F. Lamarque, V. Montanaro, J.F. Muller, V.H. Peuch, G. Pitari, J. Pyle, S. Rast, J. Rodriguez, M. Sanderson, N.H. Savage, D. Shindell, S. Strahan, S. Szopa, K. Sudo, R. Van Dingenen, O. Wild, G. Zeng: Environ. Sci. Technol., 40, 3586-3594, 10.1021/es0523845 S0013-936X(05)02384-9 (2006)

"The global atmospheric environment for the next generation"

<その他誌上発表（査読なし）>

- ① 住明正監修：「考えよう地球環境」全7巻シリーズの第2巻，ポプラ社，48（2004）  
「大気の本（執筆担当：神沢博）」
- ② 土木学会環境工学委員会環境工学に関わる出版準備小委員会編：「環境工学公式・モデル・数値集」第3編「地球環境への影響 1. 地球温暖化」の1 . 1 節，社団法人土木学会発行，丸善発売，525-531（2004）  
「地球の気候システム（執筆担当：神沢博）」
- ③ クラブ東海，第434号（2004年2月26日），クラブ東海事務局，名古屋，1-3（2004）  
「温室効果ガスの増加は明白：地球温暖化の科学的現状(神沢博)」
- ④ 名古屋大学環境学研究科編：「環境学研究ソースブック—伊勢湾流域圏の視点 から」2.1節，藤原書店，54-57（2005）  
「地球温暖化（執筆担当：神沢博）」

(2) 口頭発表（学会）

- ① 須藤健悟，秋元肇，高橋正明，野沢徹，神沢博：第9回 大気化学討論会，2003年5月28-30日  
「全球化学気候モデルCHASERを用いた対流圏光化学場の将来予測シミュレーション」
- ② Takemura, T. : 1st AEROCOM Workshop, Paris, France, 2-3 June 2003  
"Overview of SPRINTARS"
- ③ Takemura, T. : 6th APEX International Workshop, Awajishima, Japan, 25-27 June.2003  
"Analysis of aerosol-climate interaction in East Asia by SPRINTARS"
- ④ Emori, S., T. Nishimura, T. Suzuki, S. Matsumura, F. Saito, T. Inoue, T. Ogura, A. Abe-Ouchi, M. Kimoto, H. Kanzawa, and A. Sumi: IUGG2003 (XXIII General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics), Sapporo, Japan, 30 June - 11 July 2003.  
"Atmospheric component of the CCSR/NIES/FRSGC model for future climate change projection on

- the Earth Simulator”
- ⑤ Kimoto, M., S. Emori, H. Hasumi, T. Suzuki, T. Nishimura, T. Inoue, F. Saito, T. Ogura, A. Abe-Ouchi, H. Kanzawa, and A. Sumi: IUGG2003 (XXIII General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics), Sapporo, Japan, 30 June - 11 July 2003  
“High-resolution coupled ocean-atmosphere general circulation modeling on the Earth Simulator”
  - ⑥ Ogura, T., M. Kimoto, H. Hasumi, R. Ohgaito, T. Segawa, A. Abe-Ouchi, S. Emori, T. Nishimura, M. Watanabe, F. Saito, H. Kanzawa, and A. Sumi: IUGG2003 (XXIII General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics), Sapporo, Japan, 30 June - 11 July 2003  
“A coupled ocean-atmosphere general circulation model for long-term integrations on the Earth Simulator”
  - ⑦ Sudo, K., M. Takahashi, T. Nozawa, H. Kanzawa, and H. Akimoto: IUGG2003 (XXIII General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics), Sapporo, Japan, 30 June - 11 July 2003  
“Simulation of future distributions of tropospheric ozone and sulfate aerosol: Impacts of emission change and climate change”
  - ⑧ Takemura, T. : IUGG2003 (XXIII General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics), Sapporo, Japan, 30 June - 11 July 2003  
“Analysis of aerosol-climate interaction by on-line aerosol transport-radiation model”
  - ⑨ Kimoto, M., S. Emori, T. Suzuki, T. Nishimura, T. Inoue, F. Saito, T. Ogura, A. Abe-Ouchi, H. Kanzawa, A. Sumi: International Conference on Earth System Modelling, Hamburg, 15-19 September 2003  
“High-resolution Coupled Ocean-Atmosphere General Circulation Modelling on the Earth Simulator”
  - ⑩ Sudo, K., M. Takahashi, T. Nozawa, H. Kanzawa, H. Akimoto: International Conference on Earth System Modelling, Hamburg, 15-19 September 2003  
“Simulation of future distributions of tropospheric ozone and sulfate aerosol: impacts of emission change and climate change”
  - ⑪ Ogura, T., M. Kimoto, H. Hasumi, R. Ohgaito, T. Segawa, A. Abe-Ouchi, S. Emori, T. Nishimura, M. Watanabe, F. Saito, H. Kanzawa, A. Sumi: International Conference on Earth System Modelling, Hamburg, 15-19 September 2003  
“A Coupled Ocean-Atmosphere General Circulation Model for long-term integrations on the Earth Simulator”
  - ⑫ Takemura, T. and T. Nakajima: Workshop on Global Aerosol Measurements for Climate Studies - Present and Future, Paris, France, 15-18 September 2003  
“Aerosol radiation-transport model on Earth Simulator”
  - ⑬ 竹村俊彦, 野沢徹, 久芳奈遠美: 日本気象学会2003年秋季大会, 宮城県民会館, 2003年10月15-17日  
「全球3次元エアロゾル輸送・放射モデルを用いた雲・エアロゾル相互作用のパラメタリゼーション」
  - ⑭ 竹村俊彦, 野沢徹, 江守正多: 日本気象学会2003年秋季大会, 宮城県民会館, 2003年10月15-17

日

「全球3次元エアロゾル輸送・放射モデルを用いたエアロゾル直接・間接効果による気候変動の解析」

- ⑮ 須藤健悟, 秋元肇, 野沢徹, 神沢博, 高橋正明: 日本気象学会2003年秋季大会, 宮城県民会館, 2003年10月15-17日  
「対流圏オゾン・硫酸エアロゾル全球分布の将来予測実験」
- ⑯ 出牛真, 柴田清孝: 日本気象学会2003年秋季大会, 宮城県民会館, 2003年10月15-17日  
「気象研究所化学輸送モデルの改良及び感度実験 (第2報)」
- ⑰ Kagawa, M. and H. Kanzawa: AGU 2003 Fall Meeting, San Francisco, USA, 8-12 December 2003  
“Oxidation state of selenium for inferring sources of sulfate in the atmospheric aerosols”
- ⑱ Takemura, T.: AGU 2003 Fall Meeting, San Francisco, USA, 8-12 December 2003  
“Analysis of climate response to aerosol direct and indirect effects by aerosol transport radiation model “
- ⑲ Sudo, K., Takahashi, M., and Akimoto, H. : AGU 2003 Fall Meeting, San Francisco, USA, 8-12 December 2003  
“Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone”
- ⑳ Zaizen, Y., K. Okada, Y. Sawa, M. Ikegami, Y. Makino, H. Takahashi, T. Tanaka and K. Shiabata : AGU 2003 Fall Meeting, San Francisco, USA, 8-12 December 2003  
“Aerosol size distributions observed around the tropopause over the northwestern Pacific Ocean”
- ㉑ 須藤健悟、高橋正明、秋元肇：第14回大気化学シンポジウム、豊川市民プラザ、2004年1月  
「対流圏オゾン化学における成層圏オゾンの役割とその変動過程」
- ㉒ 高橋 宙, 五十嵐康人, 土器屋由紀子, 渡辺幸一, 田中泰宙：第14回大気化学シンポジウム、豊川市民プラザ、2004年1月  
「富士山頂におけるLPC観測とモデルによる再現～その1 2003年春季黄砂～」
- ㉓ 高橋 宙, 五十嵐康人, 土器屋由紀子, 田中泰宙：第14回大気化学シンポジウム、豊川市民プラザ、2004年1月  
「富士山頂におけるLPC観測とモデルによる再現～その2 2003年春季ロシア森林火災～」
- ㉔ Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, and T. Nakajima: 2nd AEROCOM Workshop, Ispra, Italy, 10-12 March 2004  
“Climate response to aerosol direct and indirect effects with global aerosol radiation-transport model”
- ㉕ Shibata, K, M. Deushi, and T. Sekiyama: 9th GRIPS Workshop, Bologna, Italy, March 2004.  
“Loose coupling between GCM and CTM”
- ㉖ Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, and T. Nakajima: AERONET Workshop, Huelva, Spain, 10-13 May 2004  
“Analysis of climate change by aerosol direct and indirect effects with aerosol transport radiation model”
- ㉗ 須藤健悟・高橋正明・秋元肇: 日本気象学会 2004 年春季大会, 東京, 2004 年 5 月  
「植物／人為起源メタノールの対流圏オゾン・OHラジカル濃度場への影響」
- ㉘ Sudo, K., Takahashi, M., and Akimoto, H.: Quadrennial Ozone Symposium QOS 2004, Kos, Greece,

1-9 June 2004

“The roles of stratospheric ozone in past and future tropospheric ozone budgets and trends”

- ⑳ 須藤健悟, 秋元肇, 高橋正明: 第10回 大気化学討論会, 東大・先端研, 東京, 2004年6月23-25日

「植物／人為起源メタノールの対流圏オゾン・OHラジカル濃度場への影響」

- ㉑ Takemura, T., and T. Nozawa: 14th International Conference on Clouds and Precipitation, Bologna, Italy, 18-23 July 2004

“Analysis of climate change by aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”

- ㉒ Takemura, T., T. Nakajima, and T. Nozawa: International Radiation Symposium (IRS2004), Busan, Korea, 23-28 August 2004

“Simulation of climate change by aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”

- ㉓ Higurashi, A., T. Saeki, and T. Nakajima: International Radiation Symposium (IRS2004), Busan, Korea, 23-28 August 2004

“Long-term analysis of the aerosol optical properties on global scale from NOAA/AVHRR”

- ㉔ Sudo, K., Takahashi, M., Nozawa, T., Kurokawa, J., and Akimoto, H.: 8<sup>th</sup> International Global Atmospheric Chemistry Conference, Christchurch, New Zealand, 4-9 September 2004

“Tropospheric ozone trends and budgets during 1850-2000 simulated in a chemistry coupled climate model”

- ㉕ Takahashi H, Y. Igarashi, T. Tanaka, K. Yoshioka, N. Kaneyasu, K. Watanabe, Y. Dokiya: 8<sup>th</sup> International Global Atmospheric Chemistry Conference, Christchurch, New Zealand, 4-9 September, 2004

“Mineral dust and black carbon at the summit of Mt. Fuji”

- ㉖ 竹村俊彦: 日本気象学会2004年度秋季大会, アクロス福岡, 福岡, 2004年10月6-8日

「全球エアロゾルモデルによる第2種間接効果の解析」

- ㉗ 須藤健悟, 秋元肇, 高橋正明: 日本気象学会 2004 年秋季大会, アクロス福岡, 2004 年 10 月 6-8 日

「対流圏O<sub>3</sub>・CO全球分布の各ソース域による分離: 汚染物質はどこから、どれくらい流れてくるか?」

- ㉘ 須藤健悟: 日本気象学会2004年度秋季大会, アクロス福岡, 福岡, 2004年10月6-8日

「化学・気候結合モデルの開発とその応用: 対流圏オゾン化学の変動過程と化学・気候相互作用」

- ㉙ 高橋 宙、田中泰宙、今井宏治、千葉長、柴田清孝: 日本気象学会2004年度秋季大会, アクロス福岡, 福岡, 2004年10月6-8日

「気象研エアロゾルモデルMASINGARによる鉱物ダストの放射強制力」

- ㉚ 財前祐二、田中泰宙、岡田菊夫、柴田清孝: 日本気象学会2004年度秋季大会, アクロス福岡, 福岡, 2004年10月6-8日

「エアロゾル化学輸送モデルを用いたPACE-7観測結果の再現」

- ④⑩ Sudo, K., Takigawa, M., Takahashi, M. : Workshop on Climate Change Research, Yokohama Japan, 28-29 October 2004  
 “Chemistry and aerosol modeling in the Kyousei-2: toward understanding chemistry/climate interaction”
- ④⑪ Takemura, T.: 3rd AEROCOM Workshop, New York, USA, 1-3 December 2004  
 “Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model”
- ④⑫ Takemura, T., Y. J. Kaufman, A. Higurashi, and T. Y. Nakajima: AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 13-17 December 2004  
 “Modeling study of aerosol effects on climate system under comparisons with satellite retrievals”
- ④⑬ 須藤健悟, 高橋正明, 秋元肇 : 第 15 回大気化学シンポジウム, 豊川市民プラザ, 豊川, 2005 年 1 月 5-7 日  
 「対流圏オゾン化学・エアロゾル・気候の過去／現在／将来 : IPCC第4次報告書に向けた化学・気候結合シミュレーション」
- ④⑭ 須藤健悟, 秋元肇, 高橋正明 : 第 15 回大気化学シンポジウム, 豊川市民プラザ, 豊川, 2005 年 1 月 5-7 日  
 「対流圏O<sub>3</sub>・CO全球分布の各ソース域による分離 : 汚染物質はどこから、どれくらい流れてくるか？」
- ④⑮ Sudo, K.: Third Japan-EU Workshop on Climate Change Research, Yokohama Japan, 20-21 January 2005  
 “Atmospheric chemistry-climate interaction”
- ④⑯ Sudo, K., Akimoto H., and Takahashi M.: International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences, Beijing, China, 1-11 August, 2005  
 “Source attribution of global tropospheric O<sub>3</sub> and CO: where do they come from?”
- ④⑰ Sudo, K., Akimoto H., and Takahashi M.: 1st ACCENT Symposium, Urbino, Italy, 12-16 September, 2005  
 “Past/Future Climate change impacts on atmospheric chemistry in a chemistry coupled climate model”
- ④⑱ Sudo, K.: 1st German-Japan Workshop on Numerical Climate Modeling, Kashiwa, Chiba, Japan, 31 Oct – 1 Nov, 2005  
 “Atmospheric chemistry and aerosols modeling in the FRCGC Earth System model”
- ④⑲ 竹村俊彦, 中島映至, Y. J. Kaufman, and L. A. Remer: 日本気象学会2005年度秋季大会, 神戸大学, 2005年11月20-22日  
 「フィードバックを含めたエアロゾルの効果による雲・降水変化の考察」
- ④⑳ 出牛真, 柴田清孝 : 日本気象学会2005年度秋季大会, 神戸大学, 2005年11月20-22日  
 「全球化学輸送モデルにおける中緯度成層圏—対流圏物質交換の再現精度の検証」
- ⑤① Sudo, K., Takigawa M., Nagashima T., and Takahashi M.: 1st UJCC International Workshop on Current Problems in Earth System Modeling, Yokohama, Japan, 24-25 Nov., 2005  
 “Chemistry-Aerosol modeling in the FRCGC Earth System Model”
- ⑤② Shibata, K. and M. Deushi : the 3rd International Symposium on Air Quality Management at Urban,

Regional and Global Scales, Istanbul, Turkey, 26-30 September 2005

“Effect of the vertical resolution in the upper troposphere and lower stratosphere on ozone abundance across the tropopause”

- ㊸ 須藤健悟, 秋元肇、高橋正明：第16回大気化学シンポジウム, 豊川市民プラザ, 豊川, 2006年1月11-13日  
「オゾン・COの全球分布・収支の起源と全球規模長距離輸送」
- ㊹ 出牛真, 柴田清孝：第16回大気化学シンポジウム研究集会, 2006年1月11-13日  
「モデルで再現される成層圏-対流圏物質交換の鉛直解像度依存性」
- ㊺ 財前祐二、千葉長：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  
「ビン法による硫酸エアロゾル粒子を凝結核とした雲生成シミュレーション」

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

- ①クラブ東海「午餐会」（2004年1月22日、地球温暖化の科学的理解の現状、於名古屋）神沢博
- ②あいち生協新年会（2004年1月24日、南極大気と地球環境、於名古屋）神沢博
- ③日刊工業新聞(2004年3月17日、温暖化による対流圏への成層圏オゾン流入量増加について)  
須藤健悟

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

以下のように、IPCC活動へ参加することや、IPCC関連会議への発表等を通じ、IPCCへの貢献に務めるとともに、さらに、成果の広報・普及に努めた。

・「7. 国際共同研究等の状況」で記載した、IPCC AR4 (IPCC 第4次報告書；2007年に完成予定)の大気化学関連のプロジェクトに日本モデルとして参加を行った。このプロジェクトに関しては全球化学-気候モデル CHASERを用いた各種シナリオ実験の結果を提出し、将来・現在・過去のオゾン分布および放射強制についてのモデル間相互比較に貢献している (IPCC AR4の第2章、7章などに貢献予定)。

・「7. 国際共同研究等の状況」で記載したAEROCOMに、全球エアロゾル輸送・放射モデル SPRINTARS が参加することを通して、IPCC AR4へ貢献している (IPCC AR4の第2章、7章、8章、10章などに貢献予定)。AEROCOMには世界中の主要な全球エアロゾルモデルが参加しており、詳細な相互比較が行われ、エアロゾルの気候影響を定量的に検証している。