

別紙4

報告番号

※

第 号

## 主 論 文 の 要 旨

論文題目 Interannual Variability and Long-term Change of Global Ozone Distribution: Roles of Transport and Chemical Processes  
 (全球オゾン分布の年々変動と長期変化：輸送・化学過程の役割)

氏 名 関谷 高志

## 論 文 内 容 の 要 旨

オゾンは、大気環境、気候にとって重要な大気微量成分のひとつであり、その変化は大気中の複雑な輸送、化学過程によって引き起こされている。オゾン変化に対する輸送、化学過程の寄与は、日周変化や季節変化、成層圏の年々変動については、先行研究によって定量的に調査してきた。しかし、対流圏オゾンの年々変動、成層圏・対流圏オゾンの長期変化に対する輸送、化学過程の寄与については、ほとんど調査されてこなかった。そこで本研究では、(1) 1970 年から 2008 年までの気象場変動に伴う全球対流圏オゾンの年々変動、(2) 2000 年代から 2100 年代の全球オゾンの長期変化における、輸送、化学過程の寄与を調べた。

まず、気象場変動に伴う対流圏オゾンの年々変動と、それに対する輸送、化学過程の寄与を調査した。気象場変動として、エルニーニョ南方振動 (El Niño Southern Oscillation; ENSO)、インド洋ダイポール (Indian Ocean Dipole; IOD) 変動、ハドレー循環の年々変動、アジアモンスーン循環の年々変動、北極振動 (Arctic Oscillation; AO) の 5 つに着目した。本研究では、全球化学輸送モデル CHASER による、1970 年から 2008 年までの 39 年間の過去再現シミュレーションを解析した。シミュレーション中の気象場は、NCEP/NCAR 再解析データに緩和 (ナッジング) させることにより、気象場の年々変動を再現した。10 月から 12 月の全球対流圏カラムオゾン (Tropospheric Column Ozone; TCO) 分布に対して経験的直交関数 (EOF) 解析を行った結果、ENSO に伴う変動成分が最も支配的であり、その成分は全分散の 33% に寄与していた。領域スケールでは、他の 4 つの気象場変動も無視できない影響を与えていた。特に、AO に伴う TCO 変動は、北半球高緯度域における 12 月から 2 月の TCO 変動の分散に対して 72% 寄与していた。また、IOD 変動に伴う TCO 変動も、アフリカ・西インド洋域における 10 月から 12 月の TCO 変動に対し 36% 寄与していた。これらの TCO の年々変動は、亜熱帯域、北半球高緯度域では、輸送過程に大きく影響されていた。しかし、熱帯域の東太平洋、西インド洋においては、化学過程も TCO の年々変動に寄与してい

た。化学過程による TCO の変動は、主に気象場変動に伴う気温、水蒸気、雲、雷の変動の複合的な影響によって、引き起こされたと考えられる。

次に、全球オゾンの将来変化について調査する前に、将来予測に用いる化学気候モデルの検証のため、ENSO に伴うオゾン変化、1980 年代から 2000 年代までのオゾン変化の再現性を評価した。全球化学気候モデルは気象場をモデル内で計算するため、モデル内の気象場の変動に伴うオゾンの変動を検証する必要がある。そこで、化学輸送モデルによる解析において、全球 TCO 分布への影響が最大であった ENSO を対象に、化学気候モデルの検証を行った。2004 年から 2009 年までの ENSO に伴う成層圏・対流圏オゾンの変動について、観測データと化学気候モデルによる再現実験を比較した結果、モデルは観測されたオゾン変動を概ね再現していた。さらに、オゾン前駆物質、オゾン破壊物質の排出量の変化に伴う、オゾン分布の変化の再現性を評価した。評価は、排出量の変化が大きい 1980 年代から 2000 年代までのオゾンの変化を対象に行った。その結果、モデルは、衛星観測と同様、総カラムオゾンの減少（全球・年平均値： $-0.47 \pm 0.16\% / 10$  年）を計算した。しかし、モデルの結果は、観測された減少（ $-1.27 \pm 0.60\% / 10$  年）を過小評価していた。

最後に、2000 年代から 2100 年代までの全球オゾンの将来変化と、それに対する輸送、化学過程の影響を調べた。将来の境界条件には、IPCC 第 5 次評価報告書に向けて提供された、中間的なシナリオのひとつ（RCP6）を用いた。モデルによる将来変化予測は、全球成層圏オゾン総量の増加（ $0.24 \pm 0.15\% / 10$  年）、全球対流圏オゾン総量の減少（ $-0.82 \pm 0.50\% / 10$  年）を予測した。成層圏オゾンの変化は、輸送過程（ブリューワードブソン循環の強化）より化学過程に影響されていた。化学過程による成層圏オゾンの変化については、気温の低下、オゾン破壊物質の排出量の減少の複合影響と考えられる。対流圏においても、化学過程が大きく全球対流圏オゾン総量を減少させる（ $-1.07\% / 10$  年）。しかし、輸送過程（成層圏—対流圏間交換の増加と対流圏大気循環の変化）による総量の増加も無視できない（ $0.25\% / 10$  年）。化学過程による対流圏オゾンの変化には、気温の上昇、水蒸気の増加、雲・雷の変化、オゾン前駆物質の排出量の減少が複合的に影響していると考えられる。また、輸送過程による増加については、対流圏起源オゾン、成層圏起源オゾンの両方が寄与していた。これは、対流圏オゾンの将来変化にとっては、成層圏—対流圏間交換の増加だけでなく、対流圏の大気循環の変化も重要であることを示唆している。

以上のように、本研究は数年から百年までの時間スケールのオゾン変化における輸送、化学過程の役割を定量的に調べた。対流圏オゾン分布の年々変動については、全球スケールでは ENSO に伴う変動が支配的であるが、領域スケールでは IOD 変動、AO の影響も無視できなかった。さらに、それらの変動に対しては、熱帯域では輸送・化学過程の両方が寄与していたが、亜熱帯、北半球高緯度域では輸送過程の影響が大きかった。成層圏・対流圏オゾンの将来変化に関しては、化学過程の影響が大きかった。しかし、対流圏オゾンの将来変化に対しては、輸送過程が無視できない影響を与えていた。