

モデル解析を基にした温室効果気体の全球規模循環に関する研究

—2016年度堀内賞受賞記念講演—**

パトラ プラビール*

1. はじめに

このたびは名誉ある堀内賞をいただきまして、推薦委員会ならびに選考委員会の方々に心から感謝致します。また、地球規模の課題である温室効果気体 (Greenhouse gases; GHG) の放出、輸送、化学の理解を深めるために、世界各国の多くの若い優秀な科学者と協力できたことを光栄に思います。日本気象学会から頂いた名誉は、地球環境システムにおける温室効果気体の複雑な循環を解明しようとする私の研究をさらに後押しするものです。

大気微量成分は、気体状と粒子状の両方の形態で、地球の下層大気 (高度約50 km 以下) のエネルギーバランスと化学特性の変動に大きく影響します。20世紀における人口の急速な増加、産業および農業の拡大のために、地球の大気は百年ほどの間に深刻なストレスを受けてきました。この人間活動による温室効果気体の増加が、近年の地球の地上気温上昇を引き起こしたと強く信じられています。

受賞対象となった私の研究は、大気化学輸送モデルや観測データを用いたさまざまなアプローチにより、温室効果気体の放出吸収や濃度分布を推定 (平均状態や経年変動など) することを目的としています。最も研究されている2つの温室効果気体、すなわち二酸化炭素 (CO₂) とメタン (CH₄) の人為的排出がここ数

十年に渡って特に急激に増加していることがわかっています。最近の研究では、近年地球の自然生態系によるCO₂の吸収量が増加していることが分かっているものの、その推定の不確かさも大きいとされています。エルニーニョ南方振動 (ENSO) などの気候の自然変動も、地域的な高温・乾燥などをもたらすことにより、生態系による温室効果気体の吸収と放出量を変化させています。従って、将来の気候変動予測のためにも、現状の人為的排出や陸域生物圏と大気、海洋と大気の温室効果気体の交換量を正確に理解し、温室効果気体の増加にともなうフィードバックも含めた炭素循環を理解することが重要な課題となっています。

本稿では、大気化学輸送モデルを用いて温室効果気体の循環の解明を試みる私たちの研究の概要を紹介します。次節では、温室効果気体の濃度変動や地球規模での吸収放出量の変動などの背景を説明します。第3節では、私たちの研究の主な成果、すなわち地球上の各地域のCO₂およびCH₄の吸収放出量 (フラックス) 分布の推定、フラックス変化に対する自然および人為的要因の解明、インバージョン解析による収支推定に重要な大気輸送モデルの輸送精度の向上への取り組みなどを紹介します。

2. 温室効果気体の循環の背景

自然な状態にある地球の大気は、主に窒素 (N₂; 78.08%)、酸素 (O₂; 20.95%) およびアルゴン (Ar; 0.93%) で満たされていますが、残りの1%に満たない気体が、対流圏および成層圏のエネルギーバランスに重要な役割を果たし、生物種の存在に適した気候を形成しています (Williams 2016)。例えば、大気中に温室効果気体 (主にCO₂) が存在しない場合、地球の表面気温は現在の平均約15°Cではなく、-18°Cまで下がります。農業革命および産業革命以

* Prabir K. PATRA, 海洋研究開発機構地球表層物質循環研究分野/北極環境変動総合研究センター。

E-mail: prabir@jamstec.go.jp

** 本稿は著者による英文原稿を佐伯田鶴氏 (国立環境研究所, 前所属 海洋研究開発機構) が翻訳したものです。

—2017年3月27日受領—

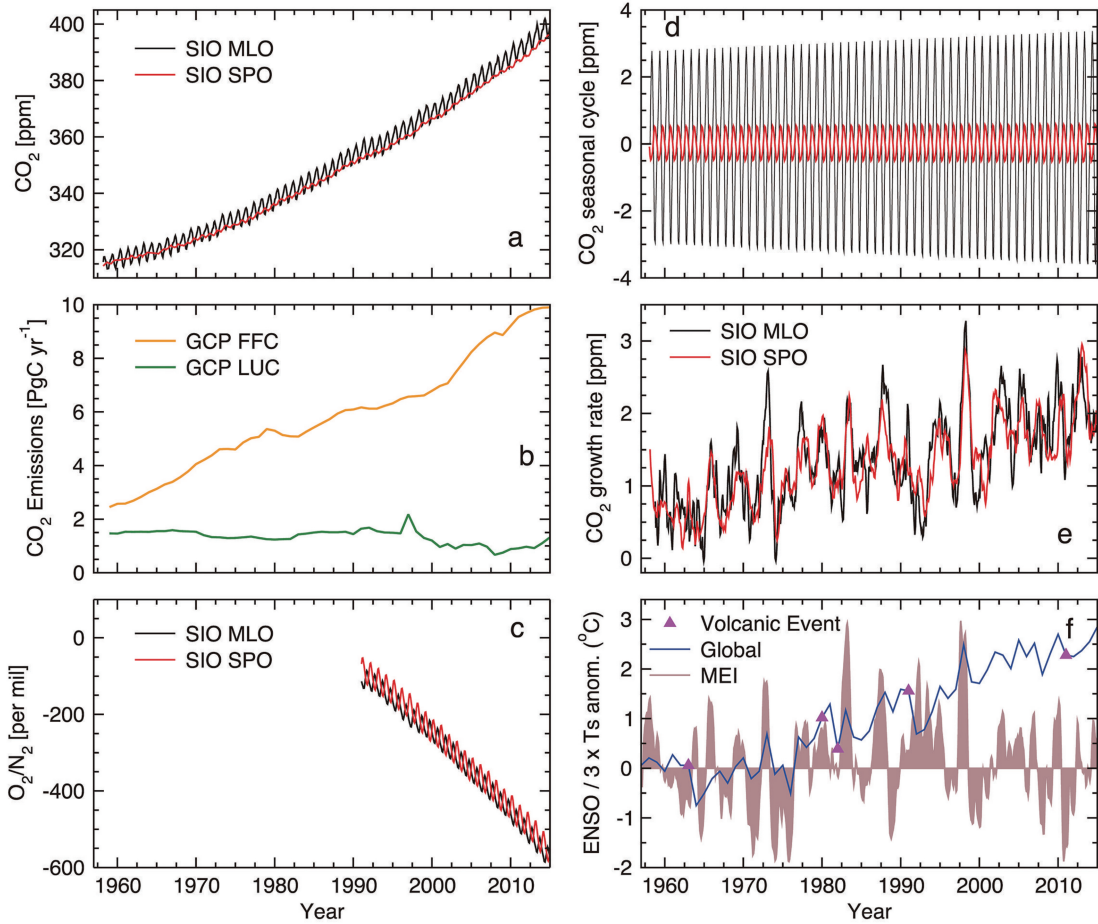
—2017年9月14日受理—

来、地球大気のこの自然なバランスは攪乱され、地上気温は過去にない驚くべき速さで上昇しており、人間文明の持続可能な発展にさまざまな問題を及ぼしていることが懸念されています (IPCC 2013)。大気中 CO_2 の持つ温室効果は、スバンテ・アレニウス (Svante Arrhenius) により、当時の限られたデータを用いた地球の熱収支の計算によって初めて示されました (Arrhenius 1896)。大気中 CO_2 濃度の直接観測は、1955年に米国・スクリップス海洋研究所のチャールズ・キーリング (Charles Keeling) によって初めて行われ (Keeling 1958)、その後直ちに各地の地上固定サイトにおいて系統的な観測が開始されました (Keeling 1960)。これらの系統的な精密観測により、温室効果気体の濃度が全球的に増加していることが明らかとなりました。その後、温室効果気体観測の必要性が広く認知され、この60年間で、 CO_2 観測ネットワークは100以上に拡大し (例えば World Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG; 温室効果ガス世界資料センター) を参照、<http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg>)、近年では衛星リモートセンシングによる観測も可能となり (例えば、2009年打ち上げの宇宙航空研究開発機構 (JAXA)・国立環境研究所・環境省による温室効果ガス観測技術衛星「いぶき」 (Greenhouse gases Observing SATellite; GOSAT; <http://global.jaxa.jp/projects/sat/gosat>)、多くの地域において CO_2 の観測点数が驚異的に増加しました。このような精密な観測や現象理解のための様々な研究の積み重ねにより、地球温暖化問題が人類共通の問題と認識され、それにより、対流圏における温室効果気体濃度の安定化と削減のための気候変動枠組条約 (United Nations Framework Convention on Climate Change; UNFCCC) による努力が1992年以降現在まで行われています。1996年、京都議定書では、発展途上国への猶予期間と共に、先進国 (附属書 I) に厳格な排出削減目標を設定しました。これとは対照的に、最近のパリ協定 (2015年) では、世界の国々はその能力に応じた温室効果気体排出目標を設定し、ただし、全体として、地球の温暖化を 2°C 未満に抑えることを目標としています。このような議定書は、成層圏オゾン層への人工オゾン層破壊物質 (ODS) の影響を低減するためのモントリオール議定書 (1989年) の例があるように、地球環境への人為的擾乱を緩和するのに時として有効です (WMO 2011)。

このような温室効果気体削減政策を推進する前に、

人為的排出と地球温暖化を関連付けるためのさまざまな観測的証拠が収集されました。第1図 a は、先ほど紹介したチャールズ・キーリングにより開始されたハマイ・マウナロア観測所 (MLO) と南極観測所 (SPO) における CO_2 の観測データで、現在ではもっとも長い大気中 CO_2 濃度の直接観測となっています。 CO_2 濃度は1958年の約315 ppm (parts per million; 百万分率) (Keeling 1960) から2015年の約400 ppm まで増加の一端をたどっています。 CO_2 濃度の増加は、人間活動による CO_2 排出に起因しています。工業活動のための化石燃料消費とセメント生産 (Fossil Fuel and Cement Production; FFC) からの排出 (第1図 b) は、1958年から2015年の間に約5倍に増加していますが、農業および居住目的の土地利用および土地利用変化 (Land Use Change; LUC) からの排出は 1.33 ± 0.27 [PgC yr^{-1}] (PgC yr^{-1} は1年間に炭素量で 10^{15} グラム) 程度でほぼ一定となっています (Boden *et al.* 2016; Le Quééré *et al.* 2016)。化石燃料消費とセメント生産による CO_2 排出は主に人間活動の活発な北半球の陸域で起こり、放出された CO_2 は大気輸送によって、まずハワイの MLO に到達し、その後、物質の南北半球間交換 (inter-hemispheric exchange; IHE) にかかる約1年をかけて南極の SPO に到達します。この排出と輸送過程より、MLO と SPO における年平均 CO_2 濃度の差は、1958年の 0.27 ppm から2015年の 3.5 ppm に継続的に増加しました。さらに、ハーバード大学で開始されたラルフ・キーリング (Ralph Keeling; チャールズ・キーリングの実息です) の観測によって地球大気中の酸素濃度の減少が明らかとなりました (第1図 c; Keeling and Shertz 1992)。化石燃料を燃焼すると大気中の O_2 が消費され、 CO_2 が生成されることから、大気中の二酸化炭素の経年増加における化石燃料消費の役割も実証されました。

大気中 CO_2 の濃度変動は、気象や気候による輸送の変動および地表面フラックスの変動に起因し、明確な日内変動、日変動、季節および経年変動を示します。季節的な CO_2 変動 (第1図 d) は、太陽の放射照度と水の利用可能量を受けて半球内で毎年繰り返されますが、最高最低振幅の増加は北半球のみで観察されています (Keeling 1960; Keeling *et al.* 1996; Graven *et al.* 2013)。 CO_2 の経年変動 (第1図 e) は10年内の気候変動に関連しており、数年周期の ENSO イベントや、突発的な赤道付近での大規模火



第1図 1958年から2015年における大気中CO₂濃度 (a), the Global Carbon Project (GCP) による全球CO₂排出量；化石燃料消費とセメント生産によるもの (FFC) および土地利用変化 (LUC) によるもの (b), 大気中O₂/N₂比 (c), 大気中CO₂の季節変化成分 (d), 年増加率 (e) の時系列. CO₂濃度とO₂/N₂比は、スクリッps海洋研究所 (Scripps Institution of Oceanography ; SIO) が管理するマウナロア観測所 (MLO ; 黒線) と南極観測所 (SPO ; 赤線) における観測値 (データソース : <http://scrippsco2.ucsd.edu> ; <http://scrippsco2.ucsd.edu>). パネル (f) に多変量 ENSO 指数 (MEI (ENSO) ; 茶色の影 ; <https://www.esrl.noaa.gov/psd/enso/mei>), 1951-1980年平均に対する全球地上気温のアノマリ (Global (3×Ts anom.) ; 青線 ; <https://data.giss.nasa.gov/gistemp>), 及び主要な火山噴火のタイミング (Volcanic Event ; 三角形) を示す.

山噴火の影響を受けます (第1図f) (例えば, Bacastow *et al.* 1980 ; Patra *et al.* 2005c). 同様に, 大気中CH₄の変動および増加も広範に研究されており, 複数の機関からのさまざまな観測 (直接大気観測, 氷床コアおよびフィルン内の大気分析) を合わせると, CH₄濃度は1958年の約1.2 ppmから2011年の約1.8 ppmに増加したとされています (Ghosh *et al.* 2015など). これらの観測結果とさまざまな地球システムモデル (Earth system model ; ESM) によるシ

ミュレーション結果は, 近年の地球表面温度の上昇 (第1図f) が人間活動によって引き起こされた可能性が高いことを示唆しています (IPCC 2013). ENSOや火山噴火などの自然現象は, 地上気温に一時的な影響を与えていますが, 近年の気温上昇を説明するものではないことがわかります.

地球大気中のある緯度・経度・高度における温室効果気体の時間発展は微分方程式を解くことで計算されます.

$$dB/dt = S - L - T$$

ここで、 B は対象とする気体の質量、 S は地表での放出・吸収量、 L は大気中での光化学反応による消滅量、 T は風による輸送の効果です。観測される濃度から算定した質量 B と L と T の数値計算から、温室効果気体の放出・吸収 S を算出することができます。CO₂ は、植物の光合成により大気から陸域生態系へ取り込まれ、呼吸や土壌有機物の分解により大気に放出されます。また、大気と海洋の間でも CO₂ の交換が行われます。CH₄ の自然放出源には、湿地、森林火災、野生の反芻動物、白アリ、海洋、湖沼、泥火山、メタンハイドレートなどがあります。CO₂ も CH₄ も様々な人為起源の排出源を持っており、それらを直接測定することはできません。大気観測とモデルを用いたこの計算は地球環境における人間活動の影響を評価する手助けとなります。CO₂ と CH₄ の排出となる主な人間活動には、エネルギー生成のための石炭採掘・消費、道路交通・船舶・航空産業に伴う石油や天然ガス、農業や廃棄物処理、森林や土地管理などがあります。また、CO₂ は対流圏では不活性ですが、CH₄ は水酸基 (OH) ラジカルとの反応により一部が消滅します。

観測される大気 CO₂ 濃度は、大気輸送と地表面フラックスの影響を受けています。この両者の影響を区別するために、大気輸送 (移流, 対流, 乱流拡散), 自然と人為的プロセスによる地表面フラックス, 化学 (光化学による生成と消滅) に依存した大気 CO₂ 濃度などの時空間的発展がモデル化されています (大気化学輸送モデル)。さらに、大気輸送モデルと観測ネットワークサイトでの大気観測データを使用したインバージョン解析 (逆解析, インバースモデル, トップダウン推定などとも呼ばれます) によって数学的に世界の各地域の地表面フラックスを推定することができます。インバージョン解析による「推定フラックスの不確かさ」は、計算に用いる観測サイトが地球上をどれくらい密にかつ均一にカバーしているかに依存し、一方「絶対フラックスに対するバイアス」の決定は、大気輸送モデルの観測値の再現能力によって決定されます。そこで、すべての大気輸送モデルの観測値再現性には問題がある (モデル輸送の誤差はなくならない) との前提で、大気トレーサー輸送モデル相互比較 (TransCom) プロジェクトでは、複数のモデルによるフォワードシミュレーションの結果を使用したインバージョン解析を行い、CO₂ フラックス推定値のバイ

アスを低減させることを試みました (Gurney *et al.* 2002)。また、インバージョン解析やデータ同化を用いた解析に観測値を正確に取り入れるためには、特に人間活動による排出源の大部分が存在する陸域において、モデルの大気輸送の改善が必要であることが感度解析により示されました (Patra *et al.* 2006)。推定フラックスのバイアスの大部分は、大気成分の移流, 対流, 拡散を計算するモデルの力学過程に起因します。これらのプロセスによりモデル内の (1) 南北半球間交換 (inter-hemispheric exchange; IHE), (2) 成層圏-対流圏交換 (stratosphere-troposphere exchange; STE), (3) 鉛直輸送速度などが決定され、モデル内でのトレーサーの濃度分布の再現性に影響を及ぼします。

一般的に大気輸送モデルは大きく 2 つのグループに分類されます。すなわち、(1) 解析または再解析プロダクトの気象場によって駆動される「オフライン」モデルと、(2) 大気大循環モデル (Atmospheric general circulation model; AGCM) そのものでトレーサー輸送を計算する「オンライン」モデルです。オンラインモデルの輸送プロセスが AGCM と同じ積分時間間隔で更新されるため滑らかな時間発展を示すのに対し、オフラインモデルの輸送場の更新は使用する再解析データの時間間隔に依存しており、通常は 6 時間の時間間隔となります。2000 年代初め、私たちは国立環境研究所/地球変動フロンティア研究センター (NIES/FRCGC) のオフライン大気輸送モデル (NIES-TM) と年々変動する気象データを使用して、CO₂ フラックスの推定 (Maksyutov *et al.* 2008; Patra *et al.* 2003) や CH₄ フラックスの推定 (Kim *et al.* 2011) を行いました。その後、大気大循環モデルをベースにした化学輸送モデル (AGCM-based Chemical Transport Model; 以下 JAMSTEC の ACTM) を開発しました。CO₂, CH₄, 一酸化二窒素 (N₂O), メチルクロロホルム (MCF; CH₃CCl₃), 六フッ化硫黄 (SF₆), ²²²ラドン (Rn) および他のハロゲン種などの中~長寿命気体のシミュレーションにおける ACTM のパフォーマンスは、さまざまな観測データと TransCom プロジェクトに参加した当時最先端の大気輸送モデルとの比較を通し、さまざまな側面から検証されました (Law *et al.* 2008; Patra *et al.* 2008, 2009a,b, 2011a, 2014; Ishijima *et al.* 2010; Taguchi *et al.* 2011; Niwa *et al.* 2011; Saito *et al.* 2012; Schuck *et al.* 2012; Belikov *et al.* 2013; Thompson

et al. 2014a,b ; Xiang *et al.* 2014 ; Hossaini *et al.* 2016).

化学輸送モデル ACTM の大気輸送の検証後、私たちは、全球を64地域に分けて、それぞれの地域における月毎のCO₂フラックスを推定する時間依存インバージョンシステムを開発し (Patra *et al.* 2005a,b), その後、84の地域に拡張しました。このインバージョンの解法は、Rayner *et al.* (1999) に基づいています。その結果は、様々な地球規模の炭素循環の理解に用いられてきました (Peylin *et al.* 2013 ; Patra *et al.* 2013 ; IPCC 2013 ; Thompson *et al.* 2016)。その後、メチルクロロホルム (CH₃CCl₃) を用いたヒドロキシル (OH ; 水酸基) ラジカルの濃度変動および南北半球間勾配の検証に続いて (Patra *et al.* 2014), 私たちは地球の53地域についてCH₄放出を推定するインバージョン計算を行いました (Patra *et al.* 2016)。これら研究結果の詳細については3章で紹介します。

近年、温室効果気体の地球表層でのフラックス (放出と吸収)、すなわち陸域または海域と大気間の炭素交換量の推定は、科学界のみならず政策立案の場においても大きな関心を引いています。温室効果気体のアカウンティング (GHG accounting) は、パリ協定 (2015年) を批准し、各国が自主的に決定する貢献 (Intended nationally determined contributions ; INDC) を約束する国家としての監視、報告及び検証 (Monitoring, reporting and verification ; MRV) システムにとって重要となっています。アカウンティングには、参加国が提供する温室効果気体排出量に関する経済やエネルギーなどの統計や経験的広域化 (ボトムアップ推定とも呼ばれる) が主として用いられますが、これとは別の独立した手法がアカウンティングの検証に必要とされます。それゆえ、インバージョン解析によるトップダウン推定などによる独立した炭素収支の推定は、科学的な観点とともに社会的にも重要と研究課題となっています。

3. JAMSTEC における温室効果気体の研究

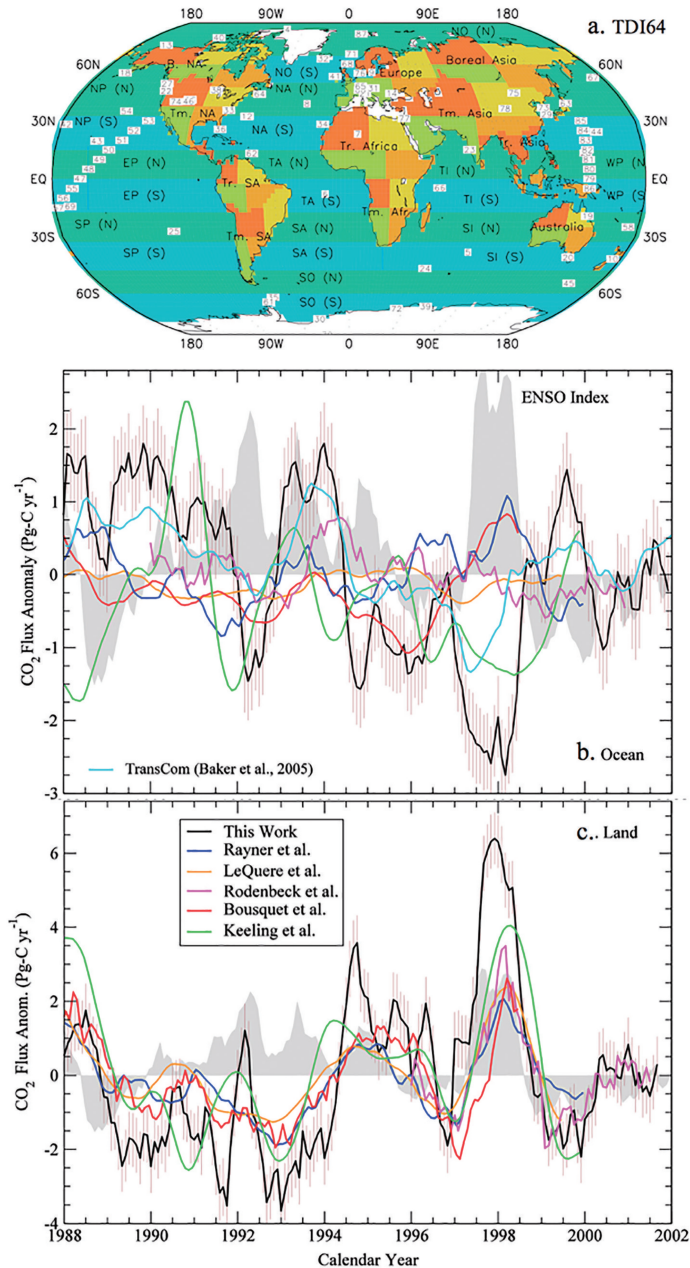
この節では、CO₂やCH₄の循環の解明に向けた我々の研究成果の一部を紹介します。

3.1 陸域および海域のCO₂放出吸収

2001年にJAMSTECに着任した後、私はオフライン大気輸送モデルを用いてCO₂収支の推定に取り組みました。CO₂フラックスの時系列変動を推定するために、時間依存インバージョン (Time Dependent

Inversion ; TDI) システムを開発し、1994年から2001年の大気観測値を用いて地球上の64地域のCO₂フラックスを推定しました (Patra *et al.* 2005a,b)。これは、2.5×2.5度のモデル分解能 (当時としては高分解能でした) によるNIES/FRCGC輸送モデルのフォワードシミュレーションにおいて、年々変動する気象場が用いられた最初のケースでした (当時世界最速のJAMSTECのスーパーコンピュータ「地球シミュレータ」のおかげです)。また、日豪間の日本航空便を利用した気象研究所のCO₂観測値 (現在のComprehensive Observation Network for TRace gases by AirLiner (CONTRAIL) プロジェクト (航空機による大気観測プロジェクト) ; Matsueda *et al.* 2002 ; Machida *et al.* 2008) を用いることにより、それまでに報告されているインバージョン解析の結果と比較し、陸域と海域の両方でCO₂フラックスの年々変動が大きくなる結果が得られました。感度解析では、インバージョンの初期条件の選択による推定フラックスの変動の違いは、観測ネットワークの選択によるものに比較して小さいことが示されました (第2図)。このインバージョンシステムは、最小の投資でフラックス推定の不確かさを最大限低減するために、地上、航空機、衛星による観測ネットワークの戦略的設計にも利用されました (Patra *et al.* 2003)。

また、インバージョン解析により推定されたフラックスを解析した結果、陸域フラックスの変動は主として干ばつと森林火災に起因することがわかりました。推定されたCO₂フラックスを生物地球化学モデルによるシミュレーションの結果と比較すると、陸域一大気炭素フラックスアノマリの大部分がバイオマス燃焼 (自然および人為起源) により説明できることがわかりました。また、相関解析および主成分分析では、ENSOに関連する気象 (すなわち降水および気温) の変化が、熱帯地域におけるCO₂フラックスアノマリの最も支配的な制御因子であり、インド洋ダイポール (IOD) 振動がそれに続くことが明らかとなりました (Patra *et al.* 2005b ; Naqvi *et al.* 2010)。さらに、温帯北アメリカおよび西ヨーロッパ地域のCO₂フラックス変動は、北極および北大西洋振動 (AO およびNAO) と相関が良いことがわかりました。大気-海洋のCO₂フラックスの相関解析から、熱帯海洋のCO₂フラックスはENSOサイクルによって強い影響を受けること、亜極域では、冬季の次表層水 (sub-surface water) の上昇と春季のプランクトンの大増



第2図 陸域42領域および海洋22領域からなる64地域時間依存インバージョンシステムの地域分割マップ (a), 1988年から2001年における推定CO₂フラックスの海洋全域のアノマリ (b) および陸域全域のアノマリ (c) (データソース: Patra *et al.* 2005a,b). 毎月のアノマリを計算するために, 月平均CO₂フラックスから長期平均した季節変動を差し引いている. 灰色のシェードは多変量ENSO指数 (MEI) の変動を示す.

殖に影響を受けることがわかりました.

さらに, 垂海洋スケールでの炭素循環に関わるプロセスを研究するために, 海洋生態系モデルBEC (Biogeochemical Elemental Cycling) を用いて, 64領域の時間依存インバージョンによる大気-海洋CO₂フラックスのさらなる解析を行いました. 私たちは過去10年間の大気-海洋CO₂フラックスの経年変動は, 高硝酸塩かつ低クロロフィルの海域で鉄の制限を緩和または増加させるダストの変動によって説明可能であることを指摘しました. 海洋炭素循環の経年変動に対するミネラルダストの沈着の役割は, 表層水のクロロフィル a, 吸収エアロゾル指数, 海上風, 海面温度などの観測, モデル計算によるダストの沈着, そして, アラビア海における物理化学的特性および生物地球化学的パラメータの現場観測を用いて確認されました (例えば Patra *et al.* 2007).

続いてインバージョン解析による推定フラックスを用いてCO₂濃度変動の長期間の解析も行いました.

まず, マウナロアで観測されている大気CO₂濃度を解析し, 増加率の変動要因を考察しました (Patra *et al.* 2005c). 第1図eで見たように, 観測されているCO₂濃度の増加率は, 1959年の観測開始以降しばらく

は年率 1 ppm であり、その後、年変動を伴いながら増加し、2000年ごろまでは 1.5 ppm 前後で推移していました。それが、2002年と2003年には 2年続けて年率 2 ppm の増加を記録し、これが、人間活動が自然環境に大きく影響した結果であり、温暖化への壊滅的な加速の予兆だと一部で解釈され、2004年には CNN や Reuters などのメディアで取り上げられました。しかし私たちの解析の結果では、大気中の CO₂ の増加率が、化石燃料消費とセメント生産による CO₂ 総排出量によるものと同等かそれ以上となったのは、解析期間の 1959-2004年のうち、1965/66年、1972/73年、1987/88年、および 1997/98年のわずかな年のみでした。私たちは、2004年のメディアニュースとは対照的に、CO₂ 増加率の大きな経年変動は気候の自然変動によって主に説明できることを示したのです。一方、比較的長期の、すなわち 10年平均の増加率は、1981年から 2000年にかけて過去最高水準の年率 1.5 ppm 前後で変動しており、主に人間活動に起因していることがわかりました。さらに CO₂ 季節変動の長期間の解析も行いました。1950年代後半から、大気中の CO₂ の季節変動の振幅（山から谷の幅）は増加していることが知られていますが（第 1 図 d）（Keeling *et al.* 1996）、私たちは、これを航空機による CO₂ 観測や北半球のより多くの地表サイトでの観測値を用いてさらに詳しく解析し、この振幅の増加が確からしいことを再確認しました（Graven *et al.* 2013）。北方温帯陸上生態系による CO₂ の季節的交換における 30~60% の増加は、現在の陸域生態系モデルによって推定されたものよりもかなり大きいことがわかりました。

3.2 新しい化学輸送モデルの開発

2006年頃より、私たちは、対流圏と成層圏において気候学的に重要な化学種の時空間的發展をシミュレートするために、東京大学気候システム研究センター（CCSR）/NIES/FRCGC で共同開発した大気大循環モデル（Numaguti *et al.* 1997）をベースにした化学輸送モデル（ACTM）を開発しました。当時、長寿命気体の現実的なシミュレーションのためには、大気化学輸送モデルで、対流圏の輸送を正確に再現し、成層圏と中間圏を含めることが課題となっていました。そこで、私たちは、はじめに、ACTM によるシミュレーション結果が観測される SF₆ と CH₄ の変動を観測精度内で再現すること、また、総観的、季節的および経年的変動の顕著な特徴を捉えていることを検証しました（Patra *et al.* 2009a,b）。SF₆ は変圧器や開閉

装置などの電気機器で絶縁ガスとして使用されており、機器の破損などにより大気中へ放出されます。大気中での寿命が長く、地球からの外向き赤外放射を吸収するため、100年間の地球温暖化係数が CO₂ に対して 23500（IPCC 2013）となる強力な温室効果気体です。主として北半球から放出され大気中で化学的に不活性のため、SF₆ は半球間交換時間の指標となるトレーサーとして用いられ、モデルの輸送場の検証にも使われます（例えば Patra *et al.* 2011a）。

次に、対流圏内の輸送の時間スケールを理解するために、理想化されたトレーサーを用いたシミュレーションを実施し、対流圏空気の「年齢」（成層圏空気の年齢の類似）を導入しました。また、SF₆ 混合比の時間変動を移流、対流、および鉛直拡散成分に分解することによって、シミュレートされた SF₆ の変動をさらに解析しました。また、CH₄ のシミュレーションのために、OH ラジカル、励起酸素（O（1D））および塩素（Cl）との化学反応を ACTM に実装しました。ACTM は、その後、主な温室効果気体とオゾン層破壊物質（ODS）をシミュレートするために拡張されました（Thompson *et al.* 2014 a, b；Xiang *et al.* 2014；Hossaini *et al.* 2016）（本稿では詳細を省きます）。

アメリカによる航空機を用いた HIPPO（Hiaper Pole-to-Pole Observation）キャンペーンでは、2009~2011年の間に北米および北極圏から南極圏まで太平洋を縦断する 5 回の観測が行われ、さまざまな化学種が同時に観測されたことから、この観測データとモデル計算値の比較は、寿命の異なる複数の化学種に関するモデル内の輸送、放出および化学反応を検証する良い機会となりました（Wofsy *et al.* 2011）。比較解析の際には、観測点に比べてモデルの解像度が粗いこと（例えば ACTM の対流圏は水平解像度 1.1×1.1 度、鉛直解像度約 500 m）に起因するサイト表現誤差を回避するため、中部太平洋のデータのみを使用しました。第 3 図 a-c では、中部太平洋域の飛行ルートのうち、HIPPO III（北半球春、適度に強い熱帯収束帯（Intertropical Convergence Zone；ITCZ））、HIPPO V（北半球夏、最も弱い ITCZ）、および HIPPO II（最も強い ITCZ と非常に発達した南太平洋収束帯（SPCZ））のルートを降水量とともに示しています。観測された SF₆ の緯度勾配は ACTM によって良く再現されており、大部分は観測とモデルの差が 0.1 ppt（parts per trillion；一兆分率）以内であり（第 3 図 d-f）、季節的および大規模な空間スケール

ルで大規模な輸送過程が ACTM 内でうまく表現されていることが確認できました。以前は、このような検証は、わずかな地上サイトで得られた限られたデータセットに基づいて為されていました (Patra *et al.* 2009a, 2011a)。SF₆の急激な減少が観測された位置 (第3図 d-f) を観測された降水量に対比させると、ITCZ および SPCZ (第3図 a-c) の位置と良く一致し、ここで、2つの半球間の空気交換が抑制されていることがわかります。北半球の中高緯度では、高度6 km での SF₆濃度も地表面での値から0.1 ppt 以内でした (図示せず)。より深い対流活動およびより高い熱帯対流圏により、地表面と同等な値が最大高度12 km まで見られました。南半球の低緯度から中緯度にかけては逆転した鉛直勾配が観測されました。つまり、上空の SF₆濃度は地表面での濃度を上回っていました。この逆転した鉛直勾配は、半球間輸送の大半が中上部対流圏で行われるというプロセスにより解釈できます (Nakazawa *et al.* 1991; Miyazaki *et al.* 2008)。

輸送モデル ACTM の大規模輸送場の検証に続いて、ACTM を用いたインバージョン解析を行いました。まず、1年間全球を64地域に分けたインバージョン解析により、ある1年間の CO₂フラックスを計算し (Patra *et al.* 2011b)、次にこれを発展させ、経年変動する気象場および数種類の化石燃料消費による CO₂排出量を用いて、84地域のインバージョン解析により1990-2011年の CO₂フラックス推定を実施しました (Saeki and Patra 2017; Thompson *et al.* 2016)。このインバージョンにより得られた CO₂フラックスを用いたフォワードシミュレーションの計算結果を第3図 g-i に示します。フラックスの先験情報 (a priori) のみ用いた ACTM_priori ケース (フラックスとして、排出インベントリ、陸域生物化学モデル、および経験的広域化による海洋フラックスを使用) は、一般に北半球の春季の子午面の CO₂濃度勾配をよく再現しますが (第3図 g)、北半球夏季の中高緯度では観測される CO₂濃度よりも高く (第3図 h)、南半球春季における南半球中緯度の CO₂濃度観測値よりも低くなっています (第3図 i)。一方、84地域の時間依存インバージョンで得られたフラックスを加味したシミュレーション (ACTM_TDI84) の場合、観測値とモデル計算値の大きな相違は解消され、南半球春季のモデルシミュレーションでは30°S 付近での CO₂濃度のピークなどの特徴が再現されます (第3図 i)。この ACTM 計算と HIPPO 観測の CO₂の比較結果は、

CO₂シミュレーションに及ぼすフラックスと輸送の影響を示すものであり、大気輸送モデルを CO₂フラックス等のインバージョン計算に使用する前に、モデルの大規模輸送場の特性評価を行うべきことを示唆しています。

3.3 TransCom-CH₄ 実験

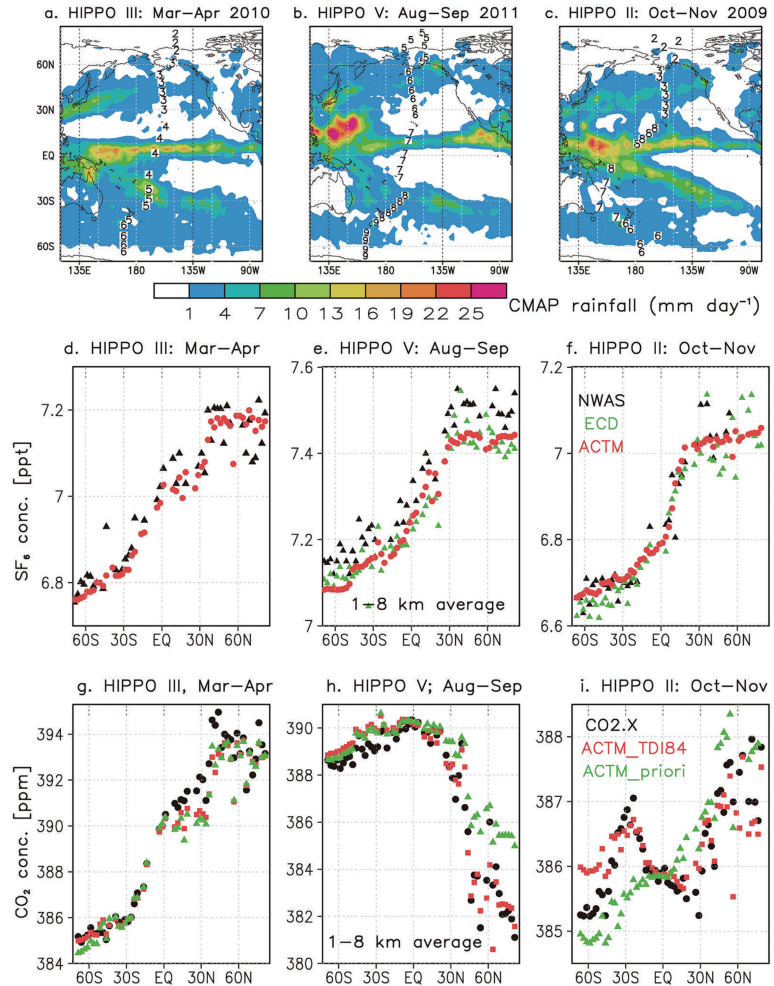
地球規模のメタン分布をシミュレートする際の地表放出、輸送および化学的消滅の役割を調べるために、私たちは CH₄の大気化学輸送モデル相互比較実験 (TransCom-CH₄) を実施しました (Patra *et al.* 2011a)。これは、一連の TransCom プロジェクトの中で、モデルに光化学反応を組み込んだ初めての実験です。CH₄の消滅源として重要な OH ラジカルとの反応は、反応定数と月平均の OH 濃度場を用意し、各モデルで共通に用いました。私たちは、16の化学輸送モデルによってシミュレートされた CH₄、CH₃CCl₃、SF₆および²²²Rn の濃度の時系列を解析しました。SF₆の時系列から1.39±0.18年の平均半球間 (IH) 交換時間が導き出されました。6セットの放出シナリオを用いた計算を解析した結果、1990年代後半以降の人為的排出量の増加が横ばいになったことにより、2000年代初頭に10年平均の CH₄増加率が平衡状態に達した可能性があることを示しました。観測された CH₄濃度の経年変動の最大60%は、バイオマス燃焼と湿地による CH₄放出の年々変動とフォワードモデルに用いる気象場の年々変動で説明することができました。複数モデルから得られた CH₄の大気寿命および放出量の中央値は、それぞれ9.99±0.08年および514±14 TgCH₄/年であると推定されました。

TransCom-CH₄の結果により、3つの長寿命気体の南北勾配が共通の関係にあることがわかりました。すなわち、SF₆についてより大きい (より小さな) 南北勾配を生成するモデルは、観察値と比較して、一般に CH₃CCl₃および CH₄についてより大きな (より小さな) 南北勾配を生成しました。この結果は、モデルの南北輸送が長寿命気体の子午面濃度勾配の再現において重要な役割を果たすことを示唆しています。また、モデルで用いる OH ラジカル濃度場の影響を見るために、2種類の対流圏 OH ラジカル濃度場を用いた実験を行いました。OH ラジカルの大気中濃度の南北半球における比率に着目し、1つは Sudo *et al.* (2002) に基づいた年平均半球平均 OH の南北半球比 (北半球/南半球比) が1.26のもの (以下、ACTM_1.26バージョン)、もう1つは Spivakovski *et al.*

(2000) に基づく OH 南北半球比が0.99のもの(以下, ACTM_0.99バージョン)です. その結果, ACTM_0.99バージョンと比較して, ACTM_1.26バージョンではCH₄およびCH₃CCl₃の南北勾配が過小評価されることがわかり, OHに関する化学反応の重要性が明らかになりました. これは, OHの南北比も, 対流圏の化学反応種をシミュレートするために重要な役割を果たすことを示しています. この結果は, 次に論じるように, OHの南北半球比をより正確に推定するための試みにつながりました.

3.4 全球平均 OH ラジカル濃度および南北半球比の定量化

OH ラジカルは, その非常に短い大気寿命(約1秒)のため, 高い時空間変動を示します. さらに, OH ラジカル濃度は通常は非常に低い(約10⁶分子cm⁻³)ため, 広範囲の直接観測は困難です. また, 観測によっても値が大きく異なり, モデルでシミュレートされたOHラジカル分布の直接検証や, 異なる環境条件下でのOHラジカルの再生に関連する化学的メカニズムを解明する妨げとなっています. そのため, 全球規模のOHラジカル濃度の推定は, CH₃CCl₃を用いて間接的になされてきました. つまり, CH₃CCl₃は人為起源の化



第3図 3つのHIPPOキャンペーンでの中部太平洋域における航空機のフライトトラック(a-c). 降水パターン(The Climate Prediction Center Merged Analysis of Precipitation; CMAP)も併せて示す. d-fおよびg-iは, それぞれHIPPO SF₆観測値およびHIPPO CO₂観測値とACTMシミュレーションとの比較(HIPPO III, V, IIについて, 高度1-8 kmの平均値). d-fのSF₆観測値はNOAA/Halocarbons and other Atmospheric Trace Species Group (HATS)のNOAA Whole Air Sampler (NWAS; 黒)とElectron Capture Detectors (ECD; 緑)による観測, 赤丸はACTMシミュレーション. g-iのCO₂観測値はNCARのBritton B. Stephensによるスーパーセットデータ処理(CO₂.X; 黒)によるもの. g-iのACTMシミュレーションは, 先験フラックスを用いた計算(ACTM_priori; 緑)とインバージョンにより得られたフラックスを用いた計算(ACTM_TDI84; 赤)の結果. CO₂濃度の南北勾配を比較するため, ACTM CO₂シミュレーションの結果は赤道でのHIPPO CO₂観測値(Wofsy *et al.* 2012)に合わせてある.

学種で、排出は工業起源のみ、消滅はOHラジカルとの反応のみのため、 CH_3CCl_3 観測値および化学輸送モデルによるシミュレーションを用いて、地球全体のOHラジカルの総量および経年変動の間接的推定が可能となります(例えばMontzka *et al.* 2011; Patra *et al.* 2014)。第4図a, bは、ACTM_0.99とACTM_1.26の2つのケース(それぞれOHラジカル濃度の南北半球比が0.99と1.26の分布を用いたシミュレーション;前節参照)における地表付近のOH濃度の年平均分布を示しています。両者の季節変動(図示せず)および空間勾配については全体的に一致していますが、ACTM_0.99で使用されたOH分布(1に近い南北比)と比較して、ACTM_1.26では年平均OHの南北比が約26%高くなっています。ACTM_1.26での北半球のより高いOH濃度は、主に、工業化地域であるアジア、ヨーロッパ、北米など、大気汚染環境下での化学反応が活発な領域に起因します。ACTM_1.26とACTM_0.99におけるOHの南北比の差は、対流圏中層以上で減少します。夏半球の低緯度における対流圏下層の CH_3CCl_3 寿命は2年以下になることもあり、それがACTMでの半球間交換時間1.2年と同じオーダーであることに注意してください。したがって、対流圏の化学と輸送の両方が CH_3CCl_3 の子午面分布に影響を及ぼすといえます。

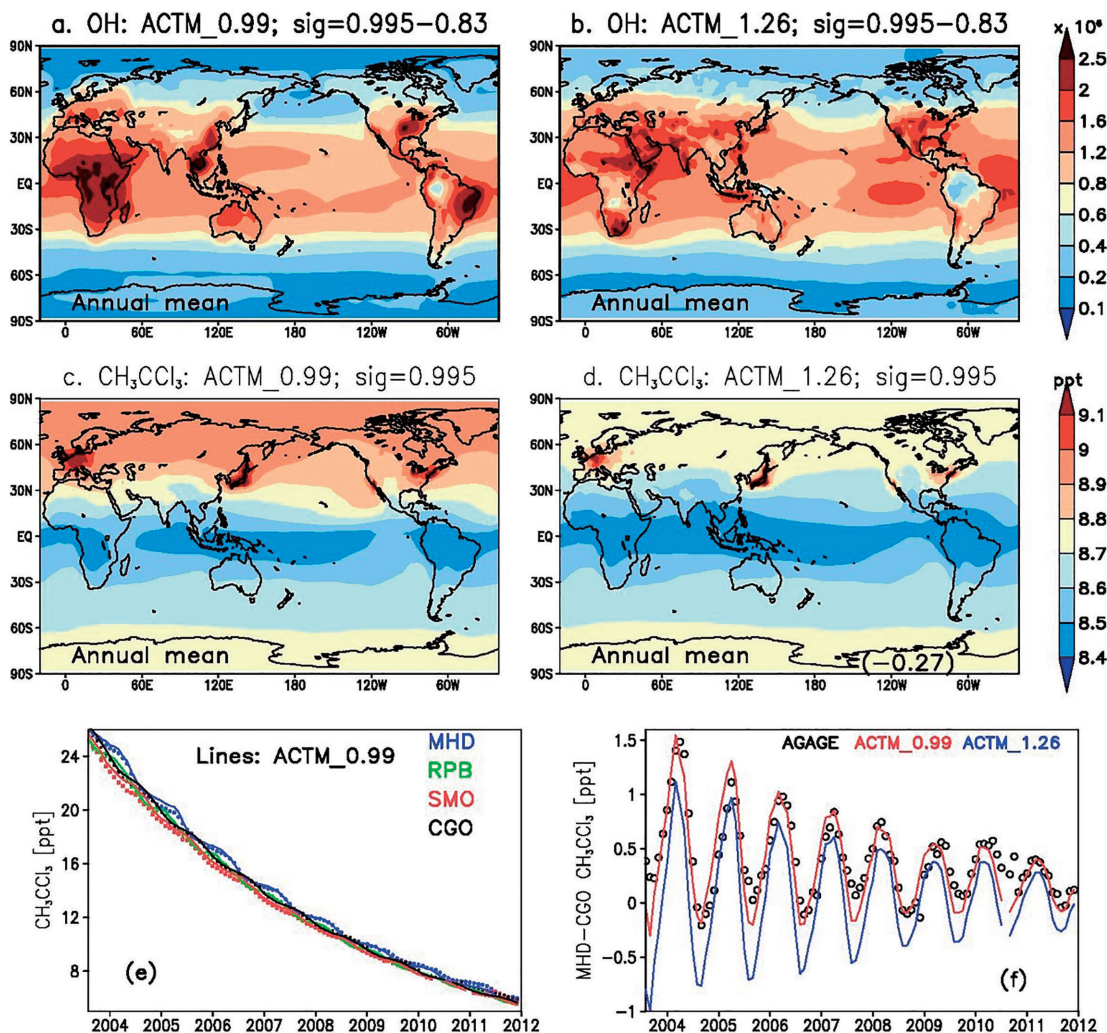
第4図c, dは、シミュレートされた地表における CH_3CCl_3 の緯度-経度分布を示します。ACTM_0.99の北半球におけるより高い CH_3CCl_3 濃度は、南半球と北半球での同量のOHラジカルによる消滅に加えて、北半球で絶え間なく続く放出によって引き起こされます。対照的に、ACTM_1.26においては、北半球でのより高い放出は、北半球でのより高いOH消滅によって相殺されます。ACTM_0.99とACTM_1.26の両方のシミュレーションでは、2004年から2011年までの CH_3CCl_3 の観測濃度の時間発展をうまく再現することができ(第4図e)、シミュレーションで使用された地表排出量と、地球規模の年間平均OH濃度がうまく平衡することが確認できました。 CH_3CCl_3 濃度は、モントリオール議定書の厳格な実施と成層圏オゾン層破壊を緩和するための改正の結果、1990年代後半から指数関数的に減少し、これが2000年代まで続きました。ACTM_0.99およびACTM_1.26でシミュレートされた CH_3CCl_3 濃度の年間平均減衰率は、それぞれ約18.28%/年および17.27%/年でした。これは、5つのAdvanced Global Atmospheric Gases

Experiment (AGAGE)のサイトおよび9つのNational Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA)のサイトで、2002年から2011年の間に観測された17.85%/年と比較して、大きく異なるものではありません(Prinn *et al.* 2000; Montzka *et al.* 2011)。 CH_3CCl_3 濃度の平均寿命は、ACTM_0.99およびACTM_1.26でそれぞれ 4.91 ± 0.03 年および 5.19 ± 0.03 年と計算されました。

第4図fに、アイルランドのメイス・ヘッド(MHD)とオーストラリアのケープ・グリム(CGO)の CH_3CCl_3 濃度の差について、AGAGEによる観測結果と2つのシミュレーション結果を示します。ACTM_0.99のシミュレーションは、ACTM_1.26よりも、観測されたMHD-CGOの差をよりよく再現しています。ACTM_1.26とACTM_0.99との差は、年間排出量が大気中 CH_3CCl_3 総量の約20%と大きかった1990年代初頭(図示せず)よりも、 CH_3CCl_3 の年間排出量が大気中 CH_3CCl_3 総量の3%より低かった2000年代について、より明確になっています。OHラジカル濃度の南北比の年平均値の適正範囲を推定するために、この2つのOH分布を合成して9つの仮想的なOH分布を作成し、この仮想OH分布を用いて2001~2011年について9回の感度実験を行いました。計算結果と観測値を併せた解析の結果、2004年から2011年の期間で、OHの南北比(北半球/南半球比)の年平均値(及び標準偏差)は 0.97 ± 0.12 と推定されました(Patra *et al.* 2014)。つまり、南半球濃度は北半球よりも約3%多いだけであり、その差はほとんどないことが明らかとなりました。現状ではほぼすべての化学輸送モデルで北半球のOHラジカル濃度が南半球よりも高くなっているため、これらのモデルは北半球のOH濃度を過大評価している可能性が高く、このようなモデルを用いたOHラジカルと反応する物質の排出量推定にも影響を及ぼすことを意味しています。

3.5 CH_4 放出量のインバージョン解析

対流圏 CH_4 の約90%は、OHラジカルとの酸化反応で消滅します。そのため、 CH_4 の正確なシミュレーションのためは、モデル内の輸送とともに、OHラジカル濃度の正確さが重要となります。前節で述べたようにOHの全球平均および南北比の評価が終了したため、続いて私たちは陸域53地域の CH_4 放出量を推定するために、 CH_4 のインバージョンシステムを開発しました(Patra *et al.* 2016)。この新しいアプロー



第4図 2種類のOHラジカル濃度場を用いたシミュレーションACTM_0.99(OHの北半球/南半球比が0.99)およびACTM_1.26(同1.26)の地表付近(1.5km以下)の年平均OHラジカル濃度分布(a, b)(単位:百万モル cm^{-3}),それぞれのシミュレーションで計算された地表(モデル最下層)の CH_3CCl_3 濃度分布(c, d)(単位:ppt,一兆分率),4つのAGAGEサイト(Prinn *et al.* 2000)における月平均濃度の時系列(e),観測値および2つのACTMモデルシミュレーションから得られたメイス・ヘッド(MHD)とケープ・グリム(CG)の濃度差の時系列(f).

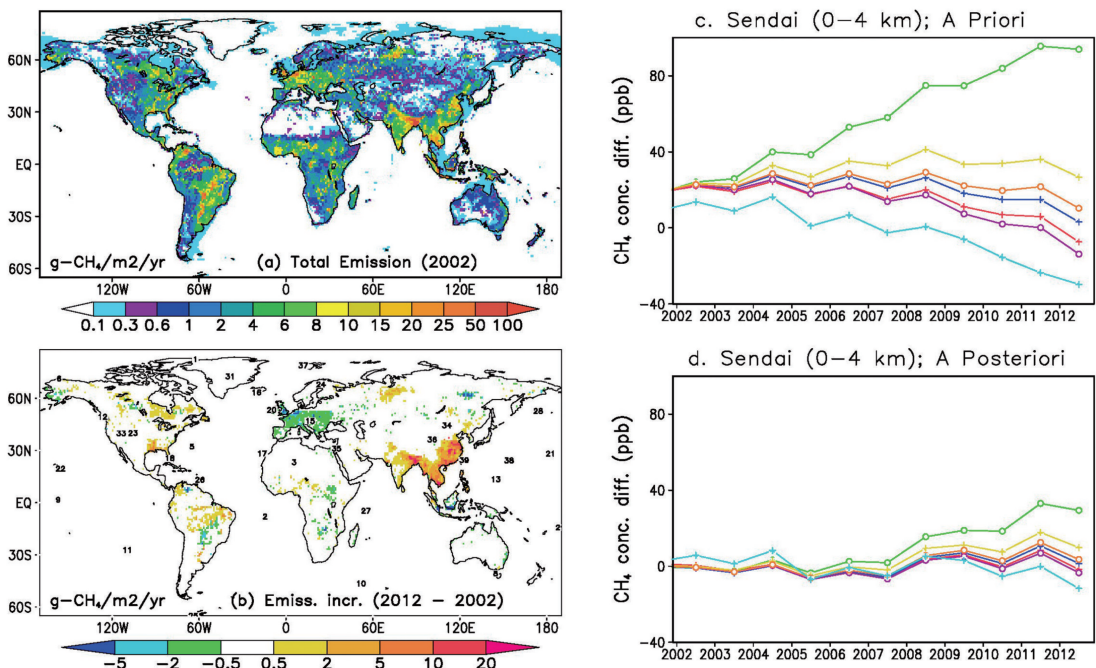
チでは, 7セットの先験放出量シナリオを準備し(第5図a), 2002年から2012年間の39のリモートサイトでの観測値を用いて(第5図b), 7セットのインバージョンを実施し, 結果をモデルアンサンブルとして解析します. その結果, 全球正味の CH_4 放出量は, 2002-2006年の平均で年間505-509 Tg- CH_4 (CH_4 量で 10^{12}g), 2008-2012年で年524-545 Tg- CH_4 と推定されました(数値の範囲は1つを除いた6つのインバー

ジョン計算結果のばらつき). 私たちの結果は, 最近更新された放出インベントリ the Emission Database for Global Atmospheric Research version 4.2FT(EDGAR42FT 2013)が, 2010年の全球放出量を少なくとも年間25 Tg 過大評価していることを示唆しています. 2002年から2012年までの CH_4 放出量の増加率は, 東アジア, 熱帯および南半球の陸域でほぼ同等と見積もられました(第5図b). 観測される大気メタ

ン濃度は、1990年代までは純増していたものの、2000年代に入ると増加がほぼ停止し、2007年頃から再び上昇しています。この2007年以降の大気中の CH_4 濃度の新たな増加の原因は諸説ありますが、本研究からは、東アジアおよび熱帯地域からの放出増加に起因していることがわかりました。この原因については、国際連合食糧農業機関の統計 (Statistics Division of Food and Agriculture Organization of the United Nations (FAOSTAT) 2015) と東北大学による大気中 CH_4 の安定炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}_4$) の初期分析結果を用いて、2007年以降の濃度再増加は、熱帯地域の反芻動物の腸内発酵 (enteric fermentation) からの CH_4 放出量増加に起因していると推定されました。

東アジアでの CH_4 放出量の増加を検証するために、東北大学による仙台上空での CH_4 鉛直プロファイル観測 (Umezawa *et al.* 2014) とモデル計算値の比較を行いました (第5図c, d)。7つのインバージョンで得られた放出量を用いて CH_4 濃度のフォワード計算を行った結果、放出量が最も多い先験 (a priori)

情報を用いた計算 (黄緑色線) を除いて、残り6つのモデル計算値は、各年の観測値と0.3% (5 ppb) 以内の差で一致しました (第5図c)。鉛直勾配も2002年から2012年にかけて良好にシミュレートされており (図示せず)、モデルと観測の差は20 ppb 以下となりました。さらに興味深いことに、シミュレートされた CH_4 の季節変動の振幅 (山から谷) は、2002~2003年の約40 ppb から、2011~2012年には約60 ppb に増加していました。季節変動の振幅は、先験放出量を用いたACTMシミュレーションでは全体的に観測値よりも大きくなっており、中でも放出量が最も大きい先験放出量を用いた場合 (黄緑色線) に振幅が最も大きく、 CH_4 濃度の季節性に及ぼす中国の放出増加の影響が日本上空で観測可能であることが分かります。インバージョンによって得られた事後 (a posteriori) 放出量を使用したACTMシミュレーションは、観測された季節変動をよりよく再現し、7つのケースは互いに区別できません (第5図d)。インバージョンの結果から、2002~2006年から2008~2012年の放出量の増



第5図 インバージョン解析で得られた2002年の推定 CH_4 放出量分布 (a)、および2012年と2002年の放出量の差 (b)。観測ネットワーク ((b) の数字) は、NOAAおよびJMAサイトから選択した (Dlugokencky *et al.* 2003; Wada *et al.* 2011)。 (c) と (d) は、東北大学による仙台上空の航空機観測によって得られた CH_4 濃度と、先験および推定放出量を用いてシミュレートされた7つの計算結果との差 (モデル-観測)。

加は $7-8 \text{ Tg yr}^{-1}$ であり、これは一番大きい先験放出量 (約 16 Tg yr^{-1}) の約半分であることがわかりました。インバージョンによるトップダウン推定は、 CH_4 エミッションインベントリの独立した検証手法になり得ると言えます。

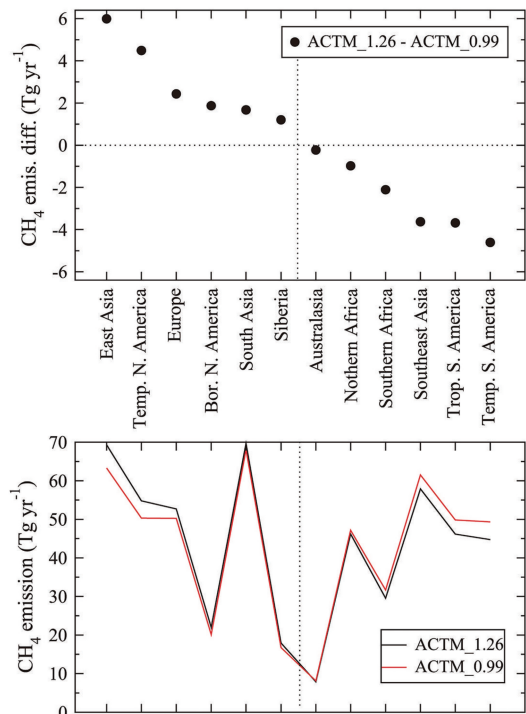
4. 将来の温室効果気体のモデリングの課題

以上、概要を述べてきました通り、炭素循環の研究では、大気輸送、化学的消滅、地表での吸収放出量の正確な理解が必要です。私たちは、オフラインの大気輸送モデルで CO_2 収支を計算することから始めて、より詳細な大気輸送を扱うことのできる大気大循環モデルをベースとしたオンラインモデル (ACTM) へと歩みを進め、様々なトレーサーを使用したフォワードシミュレーションを行い、ACTM の輸送場を検証してきました。次に、 CH_4 収支や大気化学に影響の大きい OH ラジカル濃度場の検証を行いました。そして、現在は、検証された ACTM 輸送場と OH ラジカル濃度場を用いてインバージョン解析による CO_2 や CH_4 の収支推定を進めています。

一方、OH ラジカル濃度の南北比の正確な推定は、地球の放射収支と大気汚染化学に影響を与える多くの重要な短寿命化学種の収支の正確な推定にもつながります。新たに開発された CH_4 のインバージョンシステム (Patra *et al.* 2016) と 2 つの OH 濃度場 (ACTM_0.99 および ACTM_1.26) を使用して、OH 濃度場の違いが CH_4 フラックス推定に与える影響評価を行ったところ、ACTM_0.99 と比較して、ACTM_1.26 を用いたインバージョンによる CH_4 フラックスは北半球中高緯度では高く、熱帯および南半球の陸域で全体的に低くなることわかりました (全球収支を補うため) (第 6 図)。2 つのインバージョンで推定された CH_4 放出量の差は、東アジア、北米、東南アジア、南米などの主要な CH_4 放出地域で約 10% であることがわかります。インバージョンを用いた放出量推定における OH の南北比のスケーリングは、一酸化炭素 (CO)、窒素酸化物 (NO_x) または硫黄酸化物 (SO_x) などのより寿命の短い化学種に対してはより強く影響を与えると予想されます。つまり、この OH ラジカルの全球平均濃度および南北比の正確な推定とともに、 CO_2 、 CH_4 、 CO および他の非 CH_4 炭化水素を単一のモデリングフレームワークに含めることが、今後の炭素循環研究では重要になると考えています。

謝 辞

インド・Ahmedabad の物理研究所、New Delhi の IBM India Research Laboratory、そして JAMSTEC における私の研究キャリアを通して、大気科学、数値モデリング、データ解析のさまざまな側面を学ぶことを助けていただき、心からご支援頂いたすべての協力者と共著者に深く感謝申し上げます。FRSGC/JAMSTEC における温室効果気体の研究の初期段階においては、中澤高清先生、Shamil Maksyutov さん、石澤みささんによる重要な指導を受けることができました。JAMSTEC の化学輸送モデル ACTM は次の皆様の指導・協力のもとで開発されました：滝川雅之さん、中澤高清先生、石島健太郎さん、宮崎和幸さん、佐伯田鶴さん、齊藤 龍さん、Arindam Ghosh さん。また、次の観測グループから多大な恩恵を受けました：東北大学 (中澤高清先生、青木周司先生、森本真司さん、そしてこの研究室の修



第 6 図 2 つの異なる OH ラジカル濃度場 (ACTM_0.99 および ACTM_1.26) を用いたインバージョン解析により推定された各領域での CH_4 放出量 (下) と両者の差 (上) (横軸は領域名で、差の大きさに基づいた順序となっている)。

了生で今でも研究協力の続く皆さん：石島健太郎さん、石戸谷重之さん、梅澤 拓さん、後藤大輔さん）、NIES（町田敏暢さん、遠嶋康徳さん）、気象研究所（松枝秀和さん、澤 庸介さん）、SIO/UCSD（Dr. Ralph Keeling, Dr. Steve Piper, Dr. Heather Graven, Dr. Lisa Welp）、Harvard University（Dr. Steve Wofsy, Dr. Eric Kort, Dr. Bin Xiang）、AGAGE（Dr. Ronald Prinn, Dr. Eri Saikawa, Dr. Paul Fraser, Dr. Paul Krummel, Dr. Derek Cunnold, Dr. Simon O'Doherty）、NCAR（Dr. Britton Stephens）、NOAA（Dr. Edward Dlugokencky, Dr. Steven Montzka, Dr. James Elkins, Dr. Xiaozhen Xiong）、MPIC（Dr. Carl Brenninkmeijer, Dr. Tanja Schuck）、PRL（Dr. Shyam Lal, Dr. Naveen Chandra, Dr. Sourin Bhattacharya）、NIO（Dr. Wajih Naqvi, Dr. MD Kumar, Dr. VVSS Sarma）。さらに、さまざまな TransCom プロジェクト（CO₂ インバージョンレベル 2, CO₂ 連続観測比較, メタン, 一酸化二窒素, 極短寿命物質-VLSL, 空気年齢）および私の研究アイデアを形作るモデリングに関わった方々に感謝しています。特に、Dr. Peter Rayner, Dr. Rachel Law, Dr. Kevin Gurney, 丹羽洋介さん, 田口彰一さん, 眞木貴史さん, Dr. Maarten Krol, Dr. Sander Houweling, Dr. Rona Thompson, Dr. Ryan Hossaini, Dr. Srabanti Ballav, Dr. Utpal De. 次の皆さんと一緒に実施した IPCC/RECCAP/APN に関連したプロジェクトは非常に楽しいものでした：Dr. Pep Canadell, Dr. Philippe Ciais, Dr. Rona Thompson, Dr. Frederic Chevallier, 三枝信子さん, 市井和仁さん, 近藤雅征さん, Mr. Leonardo Calle, Dr. Benjamin Poulter, Dr. Atul Jain, 林田佐智子先生。私の JAMSTEC での研究を支援してくださった歴代の JAMSTEC 部門長の皆様（秋元肇先生, 才野敏郎先生, 故鈴木力英さん）に感謝いたします。研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金（JP22241008）、文部科学省 GRENE 北極気候変動研究事業（ID5）、環境省環境研究総合推進費（#2-1401, #2-1502）、アジア太平洋ネットワーク（APN；#ARCP2013-01CMY-Patra/Canadell）からの外部助成金によって実施されました。最後に、この最初の解説文の翻訳を手伝ってくださった佐伯田鶴さんに感謝致します。

参考文献

- Arrhenius, S., 1896 : On the influence of carbonic acid in the air upon the temperature of the ground. *Philos. Mag.*, **41**, 237-276.
- Bacastow, R.B., J.A. Adams, C.D. Keeling, D.J. Moss, T. P. Whorf and C.S. Wong, 1980 : Atmospheric carbon dioxide, the southern oscillation, and the weak 1975 El Nino. *Science*, **210**, 66-68.
- Belikov, D. A. S. *et al.*, 2013 : Off-line algorithm for calculation of vertical tracer transport in the troposphere due to deep convection. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 1093-1114.
- Boden, T. A., G. Marland and R.J. Andres, 2016 : Global, Regional, and National Fossil-Fuel CO₂ Emissions. Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., U.S.A., doi : 10.3334/CDIAC/00001_V2016.
- Dlugokencky, E. J., S. Houweling, L. Bruhwiler, K. A. Masarie, P. M. Lang, J. B. Miller and P. P. Tans, 2003 : Atmospheric methane levels off : Temporary pause or a new steady-state? *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1992, doi : 10.1029/2003GL018126.
- EDGAR42FT, 2013 : Global Emissions EDGAR v4.2 FT2010, <http://edgar.jrc.ec.europa.eu/overview.php?v=42FT2010> (2017.5 閲覧).
- FAOSTAT, 2015 : Food and Agriculture Data. <http://www.fao.org/faostat/en/> (2017.5 閲覧).
- Ghosh, A. *et al.*, 2015 : Variations in global methane sources and sinks during 1910-2010. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 2595-2612.
- Graven, H. D. *et al.*, 2013 : Enhanced seasonal exchange of CO₂ by northern ecosystems since 1960. *Science*, **341**, 1085-1089.
- Gurney, K. *et al.*, 2002 : Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models. *Nature*, **415**, 626-630.
- Hossaini, R. *et al.*, 2016 : A multi-model intercomparison of halogenated very short-lived substances (TransCom-VLSL) : linking oceanic emissions and tropospheric transport for a reconciled estimate of the stratospheric source gas injection of bromine. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 9163-9187.
- IPCC, 2013 : Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report [Stocker, T. F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1535pp.

- Ishijima, K. *et al.*, 2010 : Stratospheric influence on the seasonal cycle of nitrous oxide in the troposphere as deduced from aircraft observations and model simulations. *J. Geophys. Res.*, **115**, D20308, doi : 10.1029/2009JD013322.
- Keeling, C.D., 1958 : The concentration and isotopic abundances of atmospheric carbon dioxide in rural areas. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **13**, 322-334.
- Keeling, C.D., 1960 : The concentration and isotopic abundances of carbon dioxide in the atmosphere. *Tellus*, **12**, 200-203.
- Keeling, C.D., J.F.S. Chin and T.P. Whorf, 1996 : Increased activity of northern vegetation inferred from atmospheric CO₂ measurements. *Nature*, **382**, 146-149.
- Keeling, R.F. and S.R. Shertz, 1992 : Seasonal and interannual variations in atmospheric oxygen and implications for the global carbon cycle. *Nature*, **358**, 723-727.
- Kim, H.-S., S. Maksyutov, M. V. Glagolev, T. Machida, P. K. Patra, K. Sudo and G. Inoue, 2011 : Evaluation of methane emissions from West Siberian wetlands based on inverse modeling. *Environ. Res. Lett.*, **6**, 035201, doi : 10.1088/1748-9326/6/3/035201.
- Law, R. M. *et al.*, 2008 : TransCom model simulations of hourly atmospheric CO₂ : Experimental overview and diurnal cycle results for 2002. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **22**, GB3009, doi : 10.1029/2007GB003050.
- Le Quéré, C. *et al.*, 2016 : Global Carbon Budget 2016. *Earth Syst. Sci. Data*, **8**, 605-649.
- Machida, T., H. Matsueda, Y. Sawa, Y. Nakagawa, K. Hirokuni, N. Kondo, K. Goto, T. Nakazawa, K. Ishikawa and T. Ogawa, 2008 : Worldwide measurements of atmospheric CO₂ and other trace gas species using commercial airlines. *J. Atmos. Ocean. Technol.*, **25**, 1744-1754.
- Maksyutov, S., P. K. Patra, R. Onishi, T. Saeki and T. Nakazawa, 2008 : NIES/FRCGC global atmospheric tracer transport model : description, validation, and surface sources and sinks inversion. *J. Earth Simulator*, **9**, 3-18.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue and M. Ishii, 2002 : Aircraft observation of carbon dioxide at 8-13 km altitude over the western Pacific from 1993 to 1999. *Tellus*, **54 B**, 1-21.
- Miyazaki, K., P. K. Patra, M. Takigawa, T. Iwasaki and T. Nakazawa, 2008 : Global-scale transport of carbon dioxide in the troposphere. *J. Geophys. Res.*, **113**, D15301, doi : 10.1029/2007JD009557.
- Montzka, S. A., M. Krol, E. J. Dlugokencky, B. Hall, P. Jöckel and J. Lelieveld, 2011 : Small interannual variability of global atmospheric hydroxyl. *Science*, **331**, 67-69.
- Nakazawa, T., K. Miyashita, S. Aoki and M. Tanaka, 1991 : Temporal and spatial variations of upper tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide. *Tellus*, **43B**, 106-117.
- Naqvi, S. W. A. *et al.*, 2010 : The Arabian Sea as a high-nutrient, low-chlorophyll region during the late Southwest Monsoon. *Biogeosciences*, **7**, 2091-2100.
- Niwa, Y. *et al.*, 2011 : Three-dimensional variations of atmospheric CO₂ : aircraft measurements and multi-transport model simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 13359-13375.
- Numaguti, A., M. Takahashi, T. Nakajima and A. Sumi, 1997 : Description of CCSR/NIES atmospheric general circulation model. CGER's Supercomput. Monogr. Rep., (3), 1-48.
- Patra, P. K., S. Maksyutov, Y. Sasano, H. Nakajima, G. Inoue and T. Nakazawa, 2003 : An evaluation of CO₂ observations with Solar Occultation FTS for Inclined-Orbit Satellite sensor for surface source inversion. *J. Geophys. Res.*, **108**, 4759, doi : 10.1029/2003JD003661.
- Patra, P. K., S. Maksyutov, M. Ishizawa, T. Nakazawa, T. Takahashi and J. Ukita, 2005a : Interannual and decadal changes in the sea-air CO₂ flux from atmospheric CO₂ inverse modeling. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **19**, GB4013, doi : 10.1029/2004GB002257.
- Patra, P. K., M. Ishizawa, S. Maksyutov, T. Nakazawa and G. Inoue, 2005b : Role of biomass burning and climate anomalies for land-atmosphere carbon fluxes based on inverse modeling of atmospheric CO₂. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **19**, GB3005, doi : 10.1029/2004GB002258.
- Patra, P. K., S. Maksyutov and T. Nakazawa, 2005c : Analysis of atmospheric CO₂ growth rates at Mauna Loa using CO₂ fluxes derived from an inverse model. *Tellus*, **57B**, 357-365.
- Patra, P. K. *et al.*, 2006 : Sensitivity of inverse estimation of annual mean CO₂ sources and sinks to ocean-only sites versus all-sites observational networks. *Geophys. Res. Lett.*, **33**, L05814, doi : 10.1029/2005GL025403.
- Patra, P. K., M. D. Kumar, N. Mahowald and V. V. S. S. Sarma, 2007 : Atmospheric deposition and surface stratification as controls of contrasting chlorophyll abundance in the North Indian Ocean. *J. Geophys. Res.*, **112**, C05029, doi : 10.1029/2006JC003885.

- Patra, P. K. *et al.*, 2008 : TransCom model simulations of hourly atmospheric CO₂ : analysis of synoptic scale variations for the period 2002–2003. *Glob. Biogeochem. Cycles*, **22**, GB4013, doi : 10.1029/2007GB003081.
- Patra, P. K., M. Takigawa, G. S. Dutton, K. Uhse, K. Ishijima, B. R. Lintner, K. Miyazaki and J. W. Elkins, 2009a : Transport mechanisms for synoptic, seasonal and interannual SF₆ variations and “age” of air in troposphere. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 1209–1225.
- Patra, P. K. *et al.*, 2009b : Growth rate, seasonal, synoptic, diurnal variations and budget of methane in the lower atmosphere. *J. Meteor. Soc. Japan*, **87**, 635–663.
- Patra, P. K. *et al.*, 2011a : TransCom model simulations of CH₄ and related species : Linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 12813–12837.
- Patra, P. K., Y. Niwa, T. J. Schuck, C. A. M. Brenninkmeijer, T. Machida, H. Matsueda and Y. Sawa, 2011b : Carbon balance of South Asia constrained by passenger aircraft CO₂ measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 4163–4175.
- Patra, P. K. *et al.*, 2013 : The carbon budget of South Asia. *Biogeosciences*, **10**, 513–527.
- Patra, P. K. *et al.*, 2014 : Observational evidence for interhemispheric hydroxyl-radical parity. *Nature*, **513**, 219–223.
- Patra, P. K. *et al.*, 2016 : Regional methane emission estimation based on observed atmospheric concentrations (2002–2012). *J. Meteor. Soc. Japan*, **94**, 91–113.
- Peylin, P. *et al.*, 2013 : Global atmospheric carbon budget : results from an ensemble of atmospheric CO₂ inversions. *Biogeosciences*, **10**, 6699–5360.
- Prinn, R. G. *et al.*, 2000 : A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE. *J. Geophys. Res.*, **105**, 17751–17792.
- Rayner, P. J., I. G. Enting, R. J. Francey and R. Langenfelds, 1999 : Reconstructing the recent carbon cycle from atmospheric CO₂, δ¹³C and O₂/N₂ observations. *Tellus*, **51B**, 213–232.
- Saeki, T., and P. K. Patra, 2017 : Implications of overestimated anthropogenic CO₂ emissions on East Asian and global land CO₂ flux inversion, *Geoscience Lett.*, **4**:9, doi : 10.1186/s40562-017-0074-7.
- Saito, R. *et al.*, 2012 : Technical Note : Latitude–time variations of atmospheric column–average dry air mole fractions of CO₂, CH₄ and N₂O. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 7767–7777.
- Schuck, T. J., K. Ishijima, P. K. Patra, A. K. Baker, T. Machida, H. Matsueda, Y. Sawa, T. Umezawa, C. A. M. Brenninkmeijer and J. Lelieveld, 2012 : Distribution of methane in the tropical upper troposphere measured by CARIBIC and CONTRAIL aircraft. *J. Geophys. Res.*, **117**, D19304, doi : 10.1029/2012JD018199.
- Spivakovski, C. M. *et al.*, 2000 : Three dimensional climatological distribution of tropospheric OH : Update and evaluation. *J. Geophys. Res.*, **105**, 8931–8980.
- Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa and H. Akimoto, 2002 : CHASER : A global chemical model of the troposphere 1. Model description. *J. Geophys. Res.*, **107**, 4339, doi : 10.1029/2001JD001113.
- Taguchi, S., R. M. Law, C. Rödenbeck, P. K. Patra, S. Maksyutov, W. Zahorowski, H. Sartorius and I. Levin, 2011 : TransCom continuous experiment : comparison of ²²²Rn transport at hourly time scales at three stations in Germany. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 10071–10084.
- Thompson, R. L. *et al.*, 2014a : TransCom N₂O model inter-comparison – Part 1 : Assessing the influence of transport and surface fluxes on tropospheric N₂O variability. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 4349–4368.
- Thompson, R. L. *et al.*, 2014b : TransCom N₂O model inter-comparison – Part 2 : Atmospheric inversion estimates of N₂O emissions. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 6177–6194.
- Thompson, R. L. *et al.*, 2016 : Top-down assessment of the Asian carbon budget since the mid 1990s, *Nature commun.*, **7**, 10724, doi : 10.1038/ncomms10724.
- Umezawa, T., D. Goto, S. Aoki, K. Ishijima, P. K. Patra, S. Sugawara, S. Morimoto and T. Nakazawa, 2014 : Variations of tropospheric methane over Japan during 1988–2010. *Tellus*, **66B**, 23837, doi : 10.3402/tellusb.v66.23837.
- Wada, A., H. Matsueda, Y. Sawa, K. Tsuboi and S. Okubo, 2011 : Seasonal variation of enhancement ratios of trace gases observed over 10 years in the western North Pacific. *Atmos. Environ.*, **45**, 2129–2137.
- Williams, D. R., 2016 : Earth Fact Sheet. NASA Goddard Space Flight Center, <http://nssdc.gsfc.nasa.gov/planetary/factsheet/earthfact.html> ; Last Updated : 19 May 2016.
- WMO, 2011 : Scientific Assessment of Ozone Depletion : 2010. Global Ozone Research and Monitoring Project–Report No. 52, 516pp..

- Wofsy, S. C. *et al.*, 2011 : HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO) : fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols. *Philos. Trans. Roy. Soc. A*, **369**, 2073-2086.
- Wofsy, S. C. *et al.*, 2012 : HIPPO Merged 10-second Meteorology, Atmospheric Chemistry, Aerosol Data (R_20121129). Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, U.S.A. http://dx.doi.org/10.3334/CDIAC/hippo_010 (2017.5 閲覧).
- Xiang, B. *et al.*, 2014 : Global emissions of refrigerants HCFC-22 and HFC-134a : Unforeseen seasonal contributions. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **111**, 17379-17384.

Study of the global cycle of greenhouse gases using atmospheric chemistry-transport model

Prabir K. PATRA*

* *Department of Environmental Geochemical Cycle Research/Institute of Arctic Climate and Environment Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology 3173-25 Showa-machi, Kanazawa-ku, Yokohama 236-0001, Japan*

(Received 27 March 2017 ; Accepted 14 September 2017)
