

北極圏オゾン層国際共同気球キャンペーン

近藤 豊・岩坂泰信・小口 高・鳥山哲司・岩田 晃  
(名古屋大学空電研究所)

P. Aimedieu (CNRS, France)

W. A. Matthews, P. V. Johnston (DSIR, New Zealand)

W. R. Sheldon, J. R. Benbrook (U. Houston)

D. J. Hofmann (U. Wyoming)

B. Hultqvist (Swedish Inst. Space Phys.)

International Arctic Ozone Campaign

By

Y. KONDO, Y. IWASAKA, T. OGUTI, A. IWATA, N. TORIYAMA,  
P. AIMEDIEU, W. A. MATTHEWS, P. V. JOHNSTON,  
W. R. SHELDON, J. R. BENBROOK,  
D. J. HOFMANN, and B. HULTQVIST

**Abstract:** In order to investigate the physical and chemical processes in the cold winter stratosphere, we carried out a balloon campaign at ESRANGE in Kiruna in cooperation with Sweden, France, USA, New Zealand, and West Germany from January to February, 1989. Concentrations of ozone,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_y$ , and aerosol were measured on board the balloons launched by CNES from ESRANGE on January 23 and 30, 1989. We also made ground based optical measurements of  $\text{NO}_2$  and ozone. These observations show that the Arctic stratosphere in January was chemically perturbed by heterogeneous reactions.

## 概 要

1989年の1月から3月にかけて、スウェーデンのキルナ（68°N）にあるエスレンジ基地及びスウェーデン宇宙物理研究所において北極圏オゾン層の調査を実施した。この観測調査はスウェーデン宇宙科学機構、アメリカ（ワイオミング大学、デンバー大学、ヒューズトン大学、NASA）、フランス（フランス宇宙科学機構、高層大気研究所）、ニュージーランド（科学産業省）、西ドイツ（マックスプランク研究所）との国際共同研究として実施された。調査は1月に行われた大型の気球を用いた実験と、1-3月にかけて連続して行われた地上からのリモートセンシングから成る。

測定した項目は

1. 成層圏温度
2. 極成層圏雲の濃度及び化学組成
3. 窒素酸化物（二酸化窒素，硝酸，全窒素酸化物）濃度
4. オゾン

である。

今日の調査で以下の重要な点が見出された。

- 1) 北極圏でも南極と同様  $-85^{\circ}\text{C}$  を下回るような低温になり、極成層圏雲の発達を観測された。
- 2) 極成層圏雲には硝酸成分が含まれていると考えられる。
- 3) その雲の影響により窒素酸化物の濃度が大きく減少していた。
- 4) 1月後半にオゾンが 20-26 km の高度で平均 15 % 程度破壊されていることが観測された。

### 1. キャンペーンの目的

南極の冬から春先の成層圏は強い極うず (Polar Vortex) が存在し、気温が  $-80^{\circ}\text{C}$  を下回るような低温がしばしば9月まで続く（太陽の高度から言えば南半球の9月は北半球の3月に相当する）。この孤立した低温の成層圏で極成層圏雲 (Polar Stratospheric Clouds, PSCs) が発達する。PSCs は硝酸と水の凝集した粒子 (Type I の PSCs)、あるいはより低温下で氷の粒 (Type II 及び Type III の PSCs) から成る。この雲の表面上では非常に速い速度で  $\text{ClONO}_2$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  などから  $\text{Cl}_2$  や  $\text{HOCl}$  あるいは  $\text{ClNO}_2$  といった気体への変換が起こる。またこの時同時に本来  $\text{ClO}$  によるオゾンの破壊を止める  $\text{NO}_2$  (二酸化窒素) の貯蔵気体である  $\text{HNO}_3$  (硝酸) が氷に捕捉されて、そのある部分は重力沈降により対流圏に運ばれてしまう。この雲の表面での反応は冬の間にもかなり進行しうると考えて良い。冬の期間に生成した  $\text{Cl}_2$  や  $\text{HOCl}$  は直接にはオゾンをこわさない。9月になり日照が始まると  $\text{Cl}_2$  や  $\text{HOCl}$  は短時間で  $\text{Cl}$ ,  $\text{ClO}$  に変わり、急速にオゾンを壊しはじめる。 $\text{ClO}$  によりオゾンが破壊される時間は数週間である。

南極に比べ北極では気温がやや高く通常 PSCs の発達は相対的に弱い。また、本来オゾンホールは進行するはずの 3~4 月にはすでに北極成層圏のうずは壊れ、中緯度の大气との混合が起こる。今回の北極圏でのキャンペーンの主な目的は北極圏のうずが十分発達し、成層圏が低温状態になる 1~2 月の化学状態が南極と比べどうなっているかを詳しく測定することであった。

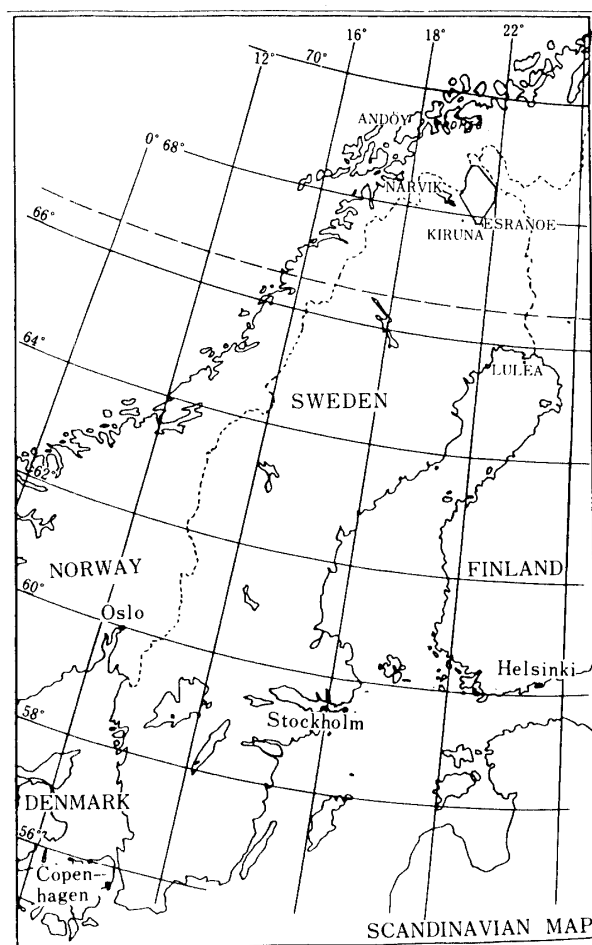
## 2. キャンペーンの概要

大型の気球実験はフランスの CNES のチームがキルナ (68°N) 近くのエスレンジ基地を利用する形で 1989 年 1 月に実施された。また、我々はキルナの宇宙物理学研究所の施設を利用して、地上分光観測を 1989 年 1~3 月まで実施した。スカンジナビアの地理を図 1 に示す。このキャンペーン中に観測した項目を以下に示す。

### I 気球観測

ゴンドラ A (1 月 23 日放球)

a)  $\text{NO}_y$  (名大, ニュージーランド)



130

図 1 キルナの地理的位置

- b)  $\text{HNO}_3$  (デンバー大, ニュージーランド)
- c) Ozone (フランス, 名大, ワイオミング大)
- d) Aerosol (ワイオミング大)
- e) 気温 (名大, ワイオミング大, フランス)

ゴンドラ B (1月30日放球)

- a) Aerosol 組成 (名大)
- b) Aerosol 濃度 (ワイオミング大)
- c)  $\text{HNO}_3$  (西ドイツ)
- d)  $\text{NO}_2$  (ニュージーランド)
- e) オゾン (ヒューストン大, ワイオミング大)
- f) 気温 (ワイオミング大, ヒューストン大)

気球は  $100000 \text{ m}^3$  の大きさものが使用された。

## II 地上分光観測

- a)  $\text{NO}_2$
- b) Ozone

の全量。ニュージーランドと日本及びスウェーデンの共同観測として行われた。

現時点ですべての観測項目のデータ処理が終わっている訳ではない。また、データ処理が終わっている結果についても、ここで図として公表する段階にないものがある。それらについては文章による記述にとどめてある。

## 3. 観測結果

〔気球のトラジェクトリー〕

1月23日の水平及び垂直方向のトラジェクトリーを図2 a, b に示した。1月30日のトラジェクトリーを図3 a, b に示した。1月23日では気球は著しく南下しており、極側から低緯度に流れている気流にのっていることが分かる。このことは後に示すように気球で観測された低い気温と対応していると言える。図2 b, 図3 b から分かるように気球の上昇速度は  $2.5 \text{ m/s}$  であり、通常の  $5 \text{ m/s}$  の値よりかなり遅い。これは昨年のキルナでのいくつかのフライトの失敗の経験に基づいて、意図的に行われたものである。すなわち上昇率が速いと気球温度が低下するため、上昇中バルブを開いて上昇速度を落としたのである。また、気球の材質自体も低温用に改良してある。この結果、この期間放球した気球4個はすべて正常に飛行した。

〔気温〕

1月23日及び1月30日の気温の高度分布を図4 a, b に示す。1月23日は高度  $20\text{--}26 \text{ km}$  で  $-80^\circ\text{C}\sim-90^\circ\text{C}$ 、また、1月30日は  $-75^\circ\text{C}\sim-83^\circ\text{C}$  という低温状態になっていたことが分かる。エスレンジから行われた気象ゾンデの観測でも  $-80^\circ\text{C}$  という低温が1月の中頃以降しばしば見出された。

〔オゾン〕

1月23日の気球観測ではオゾンの高度分布に高度  $21\sim 26 \text{ km}$  の間で最大 30% 近い、く

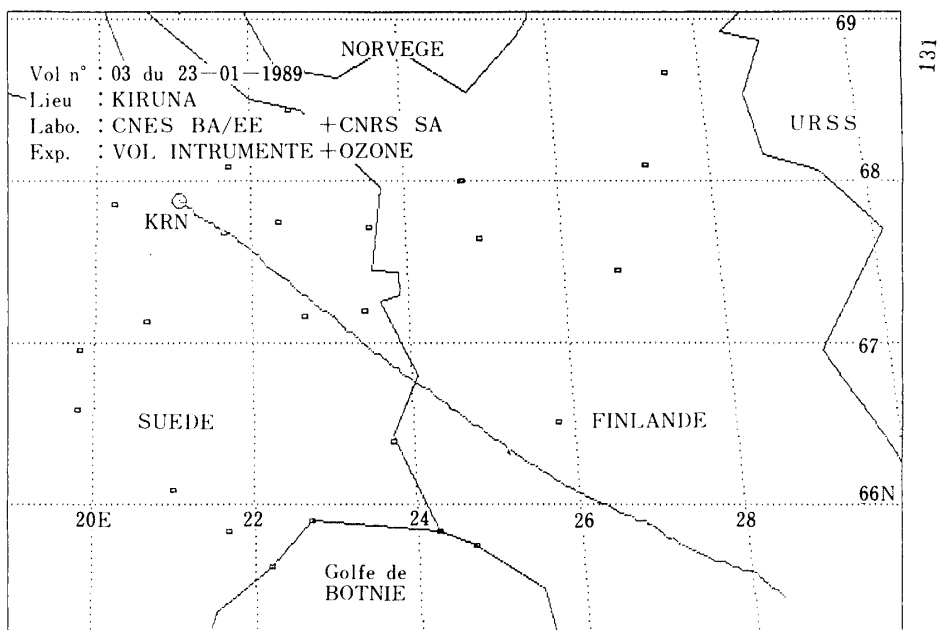


図2(a) 1月23日に放球された気球の水平航跡

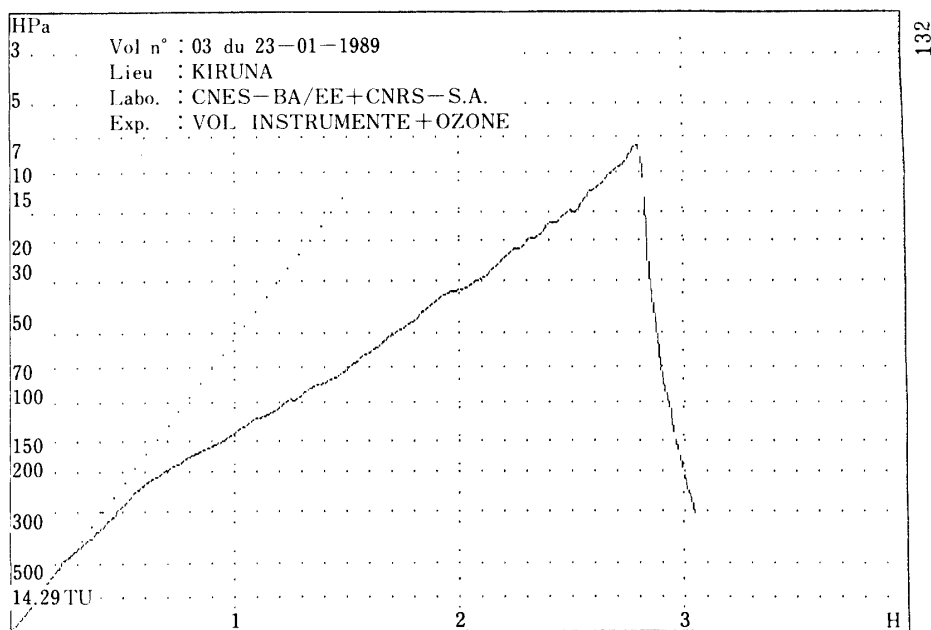
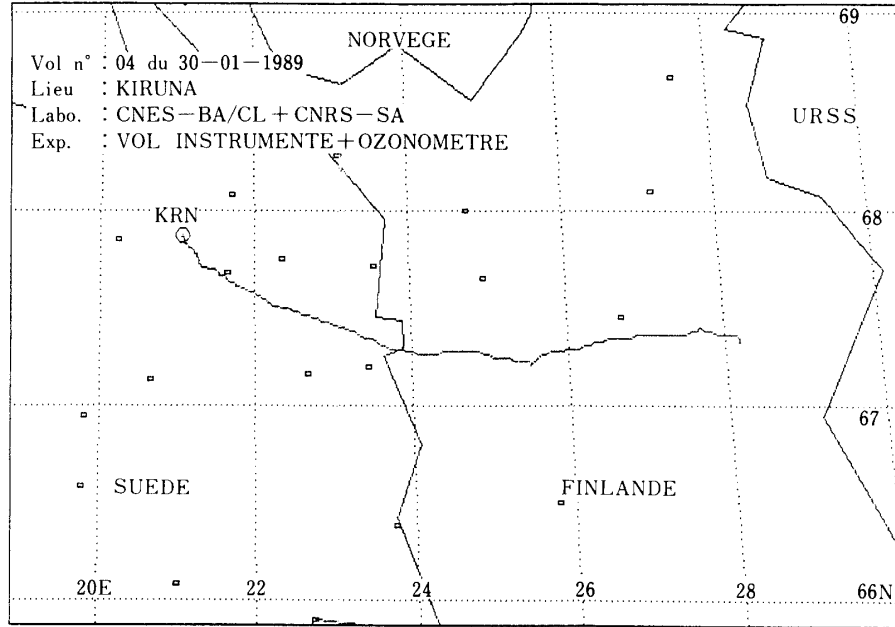
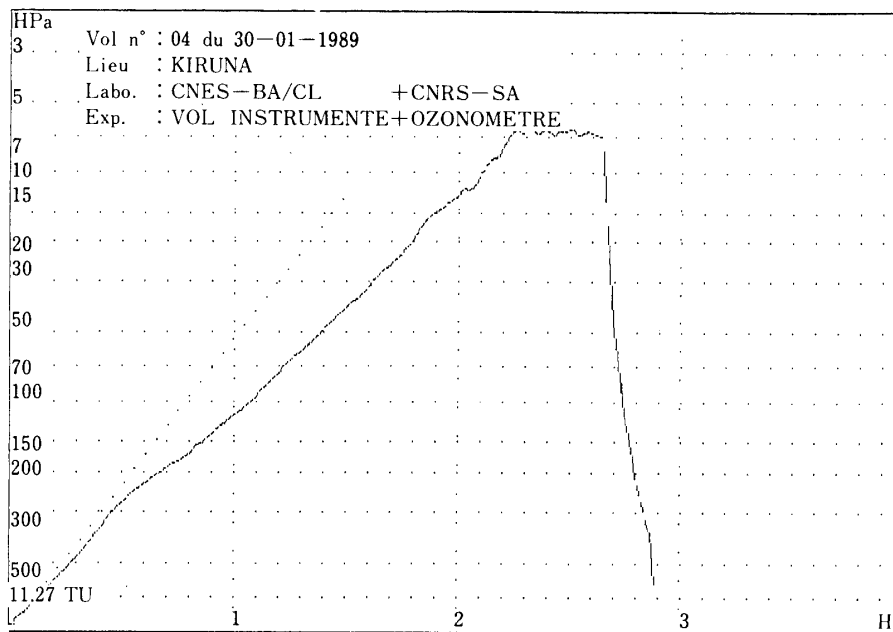


図2(b) 1月23日に放球された気球の時間-高度変化



133

図3(a) 1月30日の場合の水平航跡



134

図3(b) 1月30日の場合の時間-高度変化

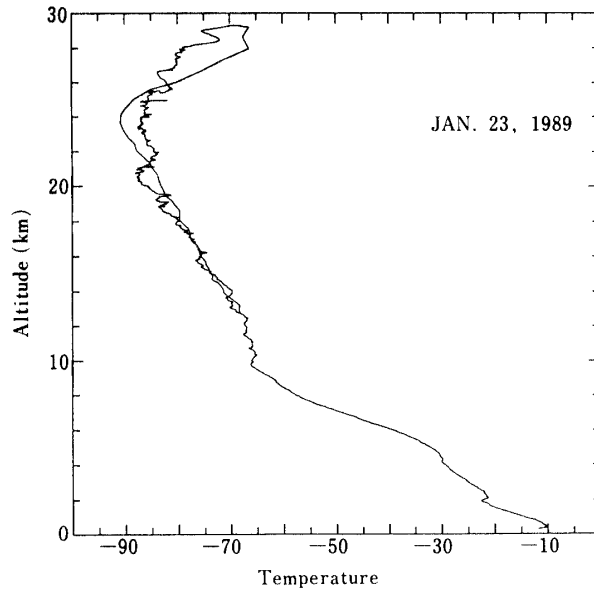


図4(a) 1月23日の気温分布（上昇及び下降時）

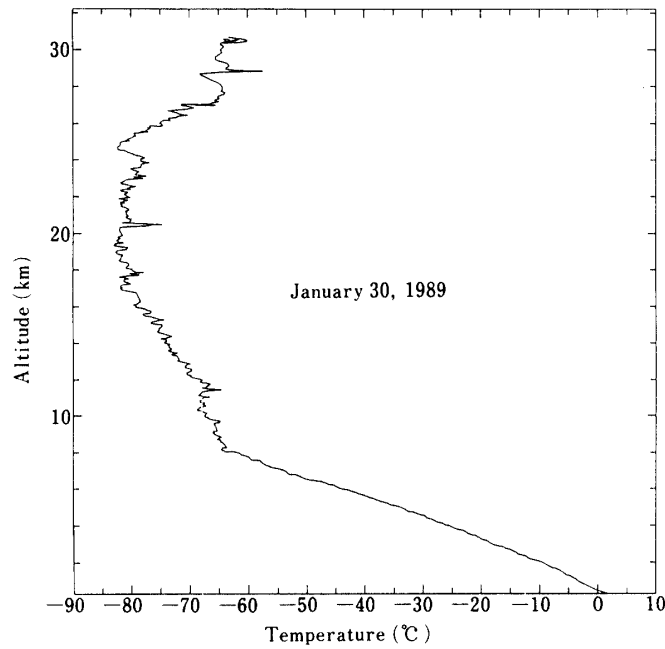


図4(b) 1月30日の気温分布（上昇時のみ）

ぼみがみられた。このような幅広い高度領域にわたる構造は力学的な輸送効果によってできる下層の細かな構造とは明確に区別できる。1月30日の気球観測でも高度20~26 kmの間でやはりオゾンの相対的な減少が見られた。この減少の大きさは1月23日の値と比べてやや少ない。1月23日は30日に比べより低温になっていたという前述の結果と対応させると興味深い。南極マクマード (78°S) では8月の中頃から、ここで見られるようなオゾンの減少が始まる。太陽の高度はキルナ (68°N) とマクマードの緯度の差を考慮するとほぼ一致する。この点に関する詳しい報告は現在準備中である (Nature 印刷中)。

図5に地上分光観測で得られたオゾンの全量を示す。1月23日、30日に気球で観測されたオゾンの高度分布より求められた全量も示した。地上観測値とはよく一致する。1月24日、25日、31日にオゾンの大きな減少が見られる。これはおそらくキルナの北に位置する極うずの中心に近い領域ではオゾンが少なくその air mass が輸送されてきたためであろうと考えられる。より詳しい気象解析が必要となる。

[NO<sub>2</sub>]

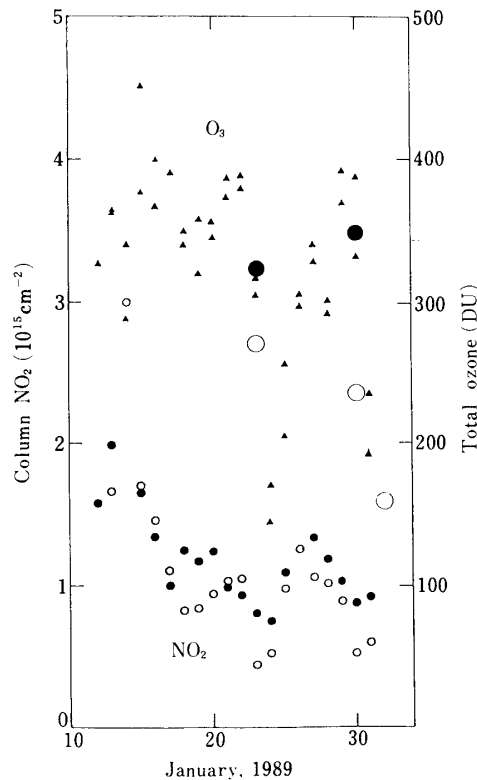


図5 NO<sub>2</sub> 及びオゾンの全量値

小さな黒丸：日没時 NO<sub>2</sub>

小さな白丸：日出時 NO<sub>2</sub>

三角：オゾン

大きな黒丸：気球観測から求めたオゾン

大きな白丸：TOMS の値



NO<sub>2</sub> コラム密度は図5に示したように1月18日以降  $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  以下に下がっている。24日、30日頃では  $0.5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  まで下がっており南極オゾンホールよりも低い値となっている。このことは南極と同様に北極でも PSCs 中での不均一反応により NO<sub>2</sub> が失われていることを示している。この観測だけでは NO<sub>2</sub> が HNO<sub>3</sub>、ClONO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> など他の化合物に変換されたただけなのか、HNO<sub>3</sub> に変換された後に氷にトラップされ成層圏中から失われてしまったのかは判断できない。しかし、次に述べる NO<sub>y</sub> の観測から、NO<sub>2</sub> は NO<sub>y</sub> の形で大部分は依然として成層圏中に存在していたことが分かる。Mount et al. (1988) はやはり1988年の冬期グリーンランド (77°N) 上空でここで測定した同じような低い NO<sub>2</sub> 濃度を観測している。

[NO<sub>y</sub>]

図6に1月23日に気球で観測された NO<sub>y</sub> の高度分布を示す。ここで NO<sub>y</sub> とは NO + NO<sub>2</sub> + NO<sub>3</sub> + 2N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> + HNO<sub>3</sub> + ClONO<sub>2</sub> + HNO<sub>4</sub> + エアロゾル成分の総計である。この我々の測定は北極上空の成層圏高度領域における初めて得られた高度分布である。この特長は次の通りである。

- NO<sub>y</sub> の濃度は 21 km 付近で約 21 ppbv の最大値になるピーク値を持つ。
- 20~22 km の層は、同じゴンドラ上で測定された PSCs に含まれていると推定される硝酸の量と一致している。つまり、21 km 付近の PSCs は硝酸と水が凝集したものと考えて良いことになる。
- 26~28 km に大きな NO<sub>y</sub> の谷ができています。この部分の NO<sub>y</sub> の減少は PSCs が関与する不均一反応が既に起こって、脱窒化が進んだものとも解釈できる。おそらく 27 km より下では NO<sub>y</sub> を構成する成分の大部分は HNO<sub>3</sub> であり、それより上

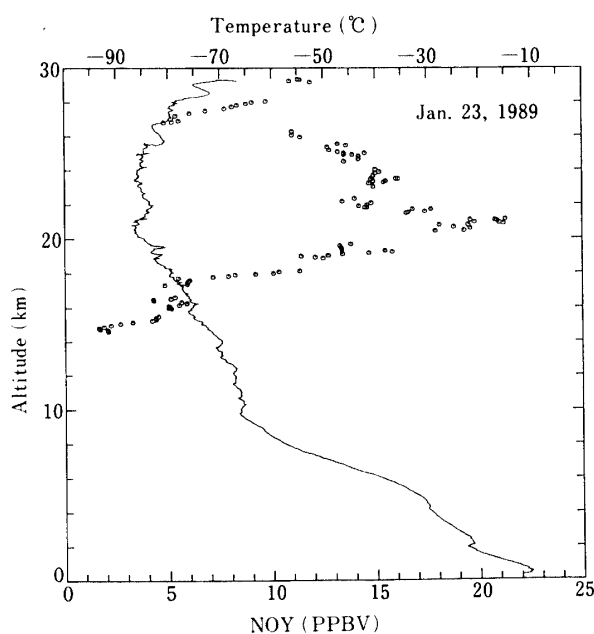


図6 1月23日に測定された NO<sub>y</sub> の垂直分布

では  $\text{NO}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{ClONO}_2$  などであろう。通常 27 km より上では PSCs は発達せず、この領域では  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NO}_y$  は均一反応で支配されていると考えられる。27 km の谷は不均一反応と均一反応の起こる境目を意味しているとも見える。気温もこの高度より上で急速に上昇しており、このことを裏付けている。

- d) 全体として見ると  $\text{NO}_y$  は 10 ppbv 以上存在しており、南極オゾンホール中での航空機による  $\text{NO}_y$  の測定値と比べ高い値となっている。また  $\text{NO}_y$  のコラム密度は  $2 \times 10^{16}$  程度であり、これも通常の北極の  $\text{HNO}_3$  密度と大きく異なっていない。このように、1月23日の時点では PSCs による  $\text{NO}_2$  から  $\text{HNO}_3$  への変換はほとんど完了しているが、PSCs の落下に伴う脱窒化 ( $\text{NO}_y$  の減少) はまだ起こっていないことが分かる。

[PSCs, エアロゾル]

#### ○目視観測

1月の中旬から極成層圏雲が地上でも目視で観察できた。硝酸の水の凝集した硝酸三水和物の赤色の細かな雲 (Type I) や水でできた大きな粒子 (Type III) の雲が太陽が地平線より5度位沈んだ状態ではっきりと確認できた。この氷の雲は通常、真珠雲、あるいは真珠母雲と呼ばれているものと同じと考えて良い。これはスカンジナビア半島の西側の山岳によって作られる Lee wave の影響で気温が低下するためにできる雲である。従って、Type III の雲の発達する領域は局在化している可能性はある。

#### ○気球観測

ワイオミング大学のエアロゾルカウンターにより、1月23日の気球観測で半径0.2ミクロン程度の小さな粒子が21km付近に高濃度で検出された。 $\text{NO}_y$  との関係については既に述べた。また、1月30日では半径2ミクロン程度の大きな粒子が25km付近で多数観測された。この場合エアロゾルの総体積にはこの大きな粒子が実質的に大きな寄与をしていると考えられる。また、1月30日のエアロゾルを薄膜フィルム上に採集し、電子顕微鏡で分析を試みた。

これまで、極成層圏のエアロゾル物質の直接採集は、何回か試みられているが、極域成層圏での採集は、1986年と1987年の南極の春にアメリカが実施し航空機による、バルクサンプリングのみである。結果の詳細は未だ公表されていないが、報道では、 $\text{NO}_y$  が粒子状物質に含まれていたことを示している。この方法では、粒子状物質が丸ごと捕捉されているため(化学分析用に大量に採集する)、化学組成の異なるエアロゾルが共存する(その可能性はなほだしく高い)場合には、捕捉後それらが混じりあって、個々のエアロゾル化学組成すら復元できない場合もある。また、航空機による観測の通例として、高度分布に関して情報を得難いために、立ち入った議論が出来ない(オゾンホール形成にかかわる粒子は沈降運動が激しく高度分布はきわめて大切)。

ここで取られた手法は薄膜上の化学反応を利用した個々の粒子の観察である。このため、バルクの化学成分分析では判定できなかった化学成分の混合状態の識別(内部混合か外部混合か?等)、エアロゾルを構成する分子状態の判定等が可能になる。

インパクターに、炭素膜、Ca膜、及びニトロン膜処理をした電子顕微鏡グリットを装着

し、毎分15 lの流量の空気を引き込み、50%カットオフ捕捉率を0.102~0.104ミクロンに設定した状態(15 kmで)、気球の上昇の間、6分毎に採集した。

この結果、18 km~24 kmの間で、硝酸イオンを含んだエアロゾルが検出された。その上は、やや中和の進んだ硫酸塩粒子とかなり純度の高い硫酸粒子が認められた。また、18 kmより下では、硫酸エアロゾルと硫酸塩エアロゾルが認められ、圏界面に近い場所の方が中和が進んでいる様である。この硝酸イオンを含むエアロゾルを直接的に採集した例は今までになく、初めてのものと考えられる。このイオンは、おそらく硝酸に起因すると考えられ、オゾンホール形成に不可欠と考えられている不均一反応を反映しているもの間違いはない。気温分布と考えあわせると、この層にのみ硝酸エアロゾルが見られるためには、硝酸蒸気分圧が1.5ケタ程度低下している可能性がある。もしそうであれば、厳冬期の粒子生成に伴う、窒素化合物の気相からエアロゾル相への変換(気相からの脱窒)あるいは粒子の沈降に伴う成層圏からの対流圏への窒素化合物の輸送の結果を反映しているのかもしれない。図7には、ニトロン薄膜上に採集されたエアロゾルが、硝酸イオンと反応し独特の結晶をエアロゾルの周りに形成して様子を示した(20.5~21.9 kmで採集された例)。

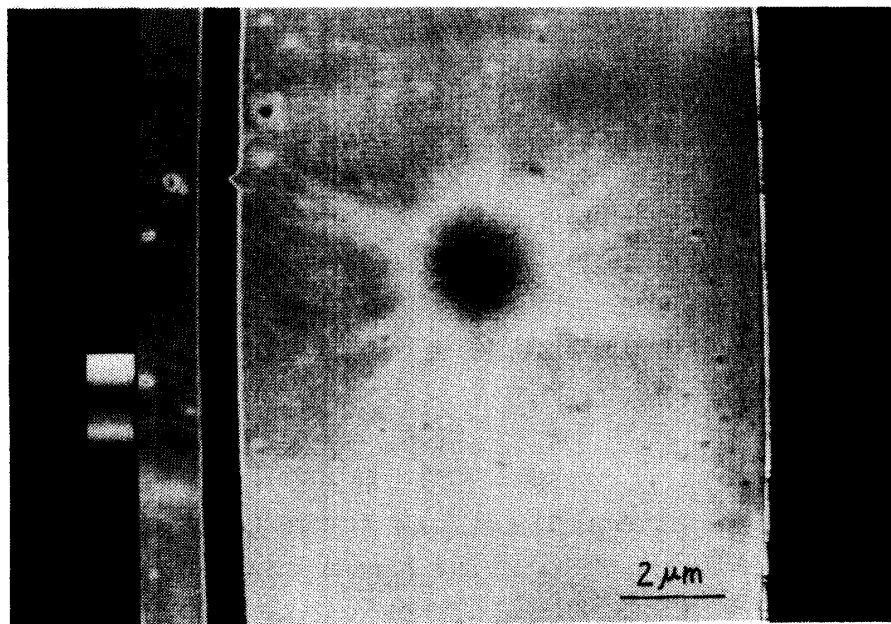


図7 北極成層圏で採取された硝酸イオンを含むエアロゾル粒子の電子顕微鏡写真

1989年1月30日

Kiruna 上空 20.9 km~21.7 km にて採取

ニトロン薄膜上に採取し、帰国後オクタノール蒸気処理をおこない、電子顕微鏡写真の撮影後、画像処理を行った。

粒子から放射状に伸びている黄緑色のものが、粒子に含まれていた硝酸イオンが電子顕微鏡メッシュに蒸着したニトロンと反応して形成された結晶である。

#### 4. ま と め

このキャンペーンの観測結果及びそれから推定されることを以下にまとめる。

- 1) 1989年1月中旬～下旬は、成層圏温度が $-80^{\circ}\text{C}$ 以下に下がっていた。
- 2) その結果 Type I, Type IIIのPSCsが発達していたことが気球及び目視観測から分かった。
- 3) オゾンが20～26 km付近で平均15%減少している。これは北極における Heterogeneous な反応の結果として起こるオゾンの化学的破壊である可能性が強い。
- 4) オゾン全量が急激することがある。これはキルナの近くにオゾンの低い領域があることを示している。このオゾンの低い領域は多分輸送効果によるものであろう。
- 5)  $\text{NO}_2$  全量は南極オゾンホールに見られる程下がっていた。これは不均一反応が起こっていることを意味する。
- 6)  $\text{NO}_y$  濃度は10 ppbv以上あり、エアロゾルの沈降効果は十分おこっていない。多分1月後半まではPSCsはかなりの部分成層圏中にとどまっており、エアロゾルは凝集と蒸発を繰り返していると思われる。 $\text{NO}_y$  のピーク付近では硝酸がエアロゾルに取り込まれている様子がかかなりはっきりと確認できた。また、高度27 km付近の $\text{NO}_y$  の谷間はこの領域におけるエアロゾルによる脱窒作用を示している。

このように北極圏の成層圏は1月の終わりから2月の初めにかけて、種々の点で南極の冬期と類似した化学的狀態にある。しかし、1月～2月ではClOによるオゾンの大規模な破壊を起こすのに必要な太陽光が不足している。この太陽光が北極圏にあたり出す3月には温度は上昇し、渦が壊れ、極と中緯度の大気は混合してしまう。また、もしここで観測されたように $\text{NO}_y$  濃度が高い状態のままであれば、日光が照る時 $\text{HNO}_3$ の光解離により $\text{NO}_x$ を放出しやはり塩素によるオゾン破壊を押さえる作用をする。しかし、将来何らかの原因、例えば気候変動により、低温の狀態が長く続くようなことになれば北極圏でもオゾンの破壊がより一層進むことになるだろう。

#### 謝 辞

スウェーデンのエスレンジでの気球実験にはフランスのCNESによる全面的な支援を頂きました。特に気球実験センター長のPirre Faucon氏の暖かい好意には大変感謝します。また、フランスのCNRSにより、我々のこのキャンペーンへの参加を公式に認めて頂いたことも感謝したいと思います。この実験の費用の一部はスカンジナビア・ニッポン ササカワ財団からご援助頂きました。岩坂泰信の用いたエアロゾル採集装置の製作費用の一部は日産科学財団のご援助を頂いています。このキャンペーンを支持して頂きました皆様に深く感謝の意を表します。

#### 参 考 文 献

Mount, G. H., S. Solomon, R. W. Saunders, R. O. Jakoubek, A. L. Schmeltekopf, Science, 242, 555-558, 1988.