

ヨーロッパ北極成層圏オゾン観測キャンペーン (EASOE)

近藤 豊^{*1}・杉田 考史^{*1}・小池 真^{*1}
岩坂 泰信^{*1}・鳥山 哲司^{*1}・金田 昌広^{*1}
P. Aumedieu^{*2}・U. Schmidt^{*3}

European Arctic Stratospheric Ozone Experiment

By

Y. Kondo, T. Sugita, M. Koike,
Y. Iwasaka, N. Toriyama, M. Kanada,
P. Aumedieu and U. Schmidt

Abstract: In order to investigate the processes leading to the chemical loss of ozone in the Arctic, EASOE (European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) took place from November 1991 to March 1992. During this campaign we made four balloon-borne measurements at Esrange (68°N, 20°E) near Kiruna, Sweden in December 1991 and January 1992. Scientists from Nagoya University made measurements of total reactive nitrogen (NO_y), nitric oxide (NO), ozone, and aerosols. On the same gondola, instruments to measure nitric acid (HNO_3), O_3 , N_2O , CFCs, and the photodissociation coefficient of NO_2 from University of Denver, CNRS of France, and KFA of Germany were also mounted. The results on the concentrations of NO_y , NO, O_3 , N_2O , and aerosols obtained on January 22 and 31 are reported.

概 要

北極域での成層圏オゾンの化学的破壊に関係した冬の初めから春までの

*1 名古屋大学太陽地球環境研究所

*2 CNRS, France

*3 KFA, Germany

一連の大気物理・化学過程を詳しく調べるため、1991年11月より1992年3月の期間、ヨーロッパ研究者を中心にEASOEキャンペーン（European Arctic Stratospheric Ozone Experiment）が行われた。日本からは名古屋大学太陽地球環境研究所の大気グループ参加しスウェーデンのキルナ（Kiruna）の近くのEsrange（68°N, 20°E）で1991年12月、1992年1月に4回の大気球観測を行なった。名古屋大学の担当した観測項目は総反応性窒素酸化物（NO_y）、一酸化窒素（NO）、オゾン（O₃）、エアロゾル（数密度、捕集）である。また同じゴンドラにはデンバー大学のHNO₃測定用赤外放射計、ドイツのSchmidtのグループのN₂O、CFC測定用グラブサンプラー、NO₂光解離係数（J_{NO2}）測定用放射計、仏CNRSの高分解能オゾン計が搭載された。1992年1月22日、31日の実験で得られたNO_y、NO、O₃、N₂O、エアロゾル数密度の観測結果を報告する。

1. EASOEの目的

南極域での大規模なオゾンの減少（オゾンホール）の発見以来その原因を解明すべく多くの研究がなされてきた結果、それが極域特有の化学反応に起因することが分かった。簡単に言えば、次のような過程がオゾンホールの生成にとって本質的である。1. 南極の冬期、冷却された成層圏で極域成層圏雲（Polar Stratospheric Clouds: PSCs）が生成し、その雲を構成している粒子上でHClやClONO₂などの安定な塩素化合物がオゾンを破壊する反応性塩素に変換される。2. 春に、太陽光が南極に戻ってきたときにこの反応性塩素によるオゾン破壊の触媒的な光化学的なサイクルにより早い速度で極渦の中でオゾンが破壊される。3. 本来反応性塩素によるオゾン破壊作用を弱める作用のある窒素酸化物（NO_x）もPSCsにより粒子に補足されたり硝酸に変換されてしまう。

一方北極域でも冬期に気温が低下しPSCsが発生することが観測されている。しかし北極域の場合強いプラネタリー波動の活動により平均的には冬の終頃（2月の初め）には気温が上昇するためオゾンの破壊は南極域と比べ不完全なものとなっている。同時にこのプラネタリー波動は極渦の境界の形を北極を中心にした同心円から大きく変形させたり、極渦の内外

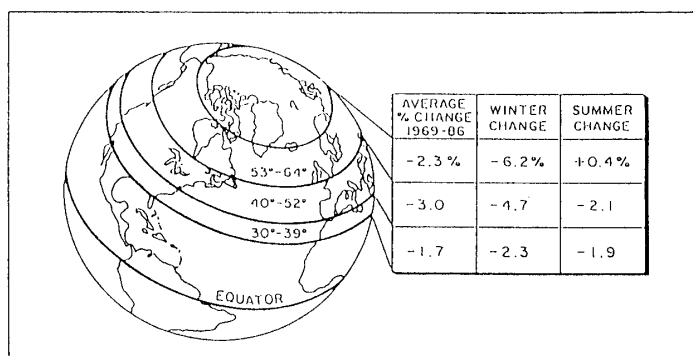


図1 オゾントレンドパネルによる1969-1986の間の北半球のオゾン全体量の緯度毎、季節毎の変化。

の輸送を盛んにする。このため北極域でのオゾン破壊の過程の解明には南極はよりもより精密な理解が必要になってくる。図1に示したように北半球中高緯度でも冬期を中心にオゾンの長期的な減少が起きている。この原因が北極域で起きていることとどのように関係しているのか定量的に調べることも重要な課題となっている。

予想しなかったことに1991年6月の中旬にフィリピンのピナツボ火山が数日にわたり大規模な噴火をおこした。この際、多量の火山性気体や粒子が成層圏に注入されたことがこれまで多くの観測から確認されている。噴火の規模は今世紀最大のものと推定されている。成層圏に運ばれた火山性気体は硫酸エアロゾルという直径1ミクロン以下の微粒子を作る。硫酸エアロゾルの表面上でおきる不均一反応により、窒素酸化物(NO_x)の濃度が下がり、反応性の塩素化合物(ClO_x)の濃度が上がると考えられる。この結果北極域を含めグローバルに成層圏オゾンの破壊が増幅されると予想される。1991-1992年はちょうどピナツボ噴火の影響を調べるに格好の機会となった。

以上述べたような冬の初めから春までの一連の北極域での大気物理・化学過程を詳しく調べるため、1991年11月より1992年3月の期間、ヨーロッパ研究者が中心にEASOEキャンペーン(European Arctic Stratospheric Ozone Experiment)が行われた。このキャンペーンのより具体的な目的は以下の通りである。キャンペーンの詳しい説明は参考文献EASOE[1991]を参照のこと。

- a) 冬期のオゾンの高度分布の変化を測定する。
- b) 大気微量成分、特に塩素と窒素の濃度を測定する。
- c) 極域成層圏雲の役割を調べる。特に、脱窒、脱水過程を研究する。
- d) 化学的擾乱を受けた大気の輸送過程を調べる。
- e) ピナツボ噴火の成層圏化学への影響を調べる。

2. EASOEの概要

EASOEは大きく次の6の研究活動から構成された。

- a) 地上観測として図2に示したような21箇所におけるリモートセンシング観測及びドブソン観測を実施した。
- b) 大型気球観測
KirunaのEsrangleからの39回の気球観測を実施した。
- c) オゾンゾンデ観測
18箇所毎週2回以上のオゾンゾンデ観測を実施した。観測地点は図2に示した。
- d) 航空機観測
キルナ空港を中心に運航された3機のジェット機からのリモートセンシング観測。
- e) 理論、モデル計算
人工衛星データも組み合わせ光化学-力学シミュレーションを行なう。
- f) データセンター
ノルウェーの大気研究所(NILU)にデータセンターを設置しEASOEの期間及びその後もEASOEデータを編集したEASOE参加研究者にE-mailなどを通して配布する活動をおこなう。

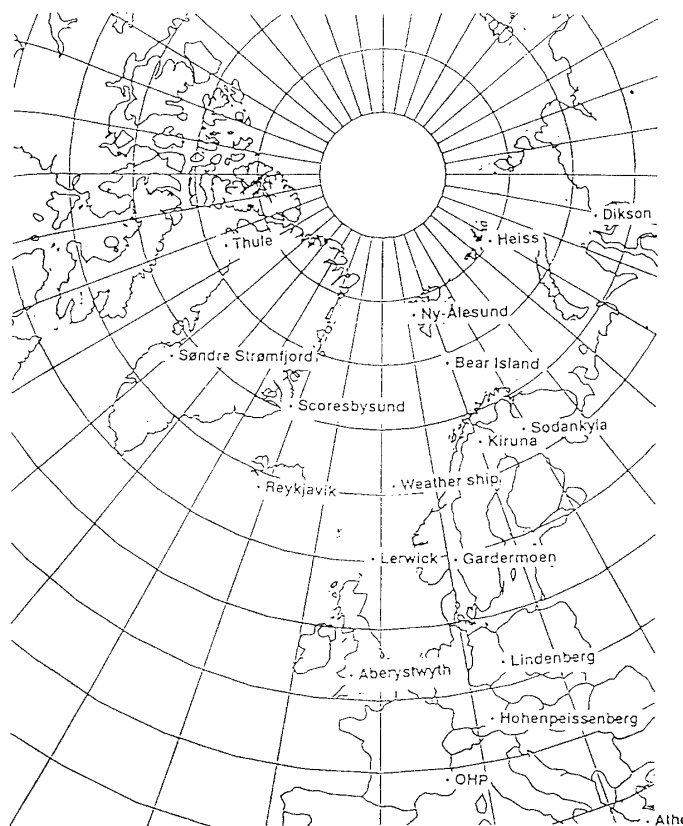


図2 EASOEにおける地上観測およびオゾンゾンデ観測点.

3. 日本の大気球観測の概要

気球用測定器

日本からは名古屋大学太陽地球環境研究所の大気グループが参加し4回の大気球観測を行った。名古屋大学の担当した観測項目は総反応性窒素酸化物 (NO_y)、一酸化窒素 (NO)、オゾン (O_3)、エアロゾル (数密度, 捕集) である。 NO_y , NO は化学蛍光法測定器により測定された。 NO の検出検出限界は約20pptvである。この測定器の詳細は Kondo et al. [1990, 1992] を参照。 O_3 は ECC オゾンゾンデにより測定された。エアロゾルの数密度の測定には今回新に開発されたエアロゾルカウンターを使用した。この測定器は0.4から5ミクロンの間の7つの粒径を同時に測定できるものである。エアロゾルを気球上で捕集しその組成を実験室で電子顕微鏡で調べるために捕集も用いられた。詳細は Kondo et al. [90, 1992] を参照。また同じゴンドラにはデンバー大学の HNO_3 測定用赤外放射計, ドイツの Schmidt のグループの N_2O , CFC 測定用グラブサンプラー, NO_2 光解離係数 (J_{NO_2}) 測定用放射計, 仏 CNRS の高分解能オゾン計が搭載された。

気球観測

気球観測はスウェーデンのキルナ (Kiruna) の近くの Esrangle (68°N , 20°E) で1991年

表 1

観測日	観測項目
1991年12月17日	NO _y , O ₃ , HNO ₃ , N ₂ O, CFC
1992年1月22日	NO, O ₃ , HNO ₃ , N ₂ O, CFC, JNO ₂ エアロゾル (数密度, 補集)
1992年1月27日	エアロゾル (数密度, 補集, 散乱特性)
1992年1月31日	NO _y , O ₃ , N ₂ O, CFC

表 2

PT (K)	高度 (km)	PV on Jan 31	in/out	PV on Jan 22	in/out
350	13	6	?	7	?
380	14	7	out	9	out
400	16	9	out	10	out
475	20	33	in	24	out
550	23	108	in	102	in
700	27	170	in	190	in

Kiruna での Potential vorticity (PV) の値. PV の単位は $10^{-6} \text{Km}^2 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-1}$
in/out はそれぞれ vortex の内, 外を意味する.

12月17日, 1992年1月22日, 27日, 31日の4回実施された. これらの気球観測の実施日と各観測項目を表2に示した. また大気球実験のなるべく近くで小型気球によるオゾンゾンデ観測が Esrange より実施された. 表1にオゾンゾンデ観測日を示した. フィンランドの Sodankyla (67.4°N, 26.6°E) でのオゾンゾンデ観測データも得られている. 1992年1月22日, 31日の実験では100000m³の気球が用いられた. 以下これらの日の NO_y, NO, O₃, N₂O, エアロゾル数密度の観測結果を中心に述べる. ただし, これらのデータはまだ Preliminary なものであることを強調しておく.

4. 観測結果

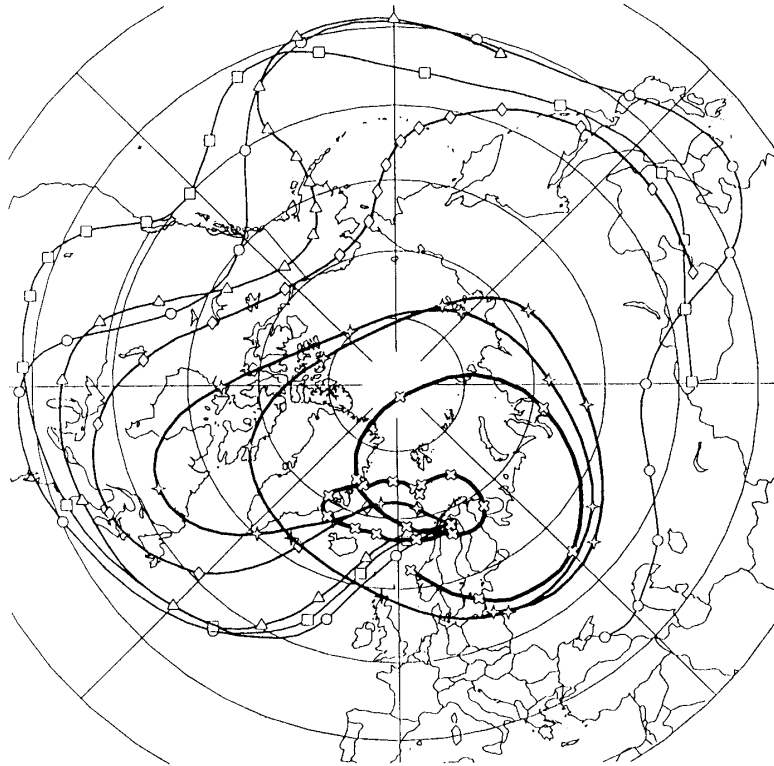
1992年1月22日の結果

1月22日の0720UT (0820 Local Time) に我々のゴンドラを乗せた気球が放球された. 気球は0930UT 頃約805hPa (高度約30km) に達し, 1050UT 頃までこのレベル高度に留まった. その後14hPa までゆっくりとした下降を行なった後ゴンドラは気球と切り離され, パラシュートによる速い降下をした. NO の測定は上昇時280hPa からレベル高度8.5hPa まで, 更にレベル高度からパラシュート降下中の76hPa の間までおこなわれた. オゾン, HNO₃ の測定は上昇中に, N₂O の測定はパラシュート降下中に行なわれた.

この日に測定された大気が極渦の境界に対しどのような位置関係にあったかは図3に示した350, 380, 400, 475, 550, 700k での等面上での10日間のトラジェクトリーから良く分かる. すなわち350-475k の間ではトラジェクトリーは低緯度に伸びているが550, 700k では高緯度に留まっている. つまり475k 以下では極渦の外側, また550k より上では極渦の内

ECMWF TRAJECTORIES

10 days analysis



Hours/mark: 12

(Filled mark if PSC since previous mark)

- End loc: Kiruna
End date: 22.Jan.1992
Level : 350 K
- End loc: Kiruna
End date: 22.Jan.1992
Level : 380 K
- △ End loc: Kiruna
End date: 22.Jan.1992
Level : 400 K
- ◇ End loc: Kiruna
End date: 22.Jan.1992
Level : 475 K
- ✦ End loc: Kiruna
End date: 22.Jan.1992
Level : 550 K
- ⊗ End loc: Kiruna
End date: 22.Jan.1992
Level : 700 K

Plotted at NILU, Fri Feb 7 1992

図3 1992年1月22日のキルナから10日間遡ったトラジェクトリー。温位350, 380, 400, 475, 550, 700K について示す。

側の大気を測定したことになる。また表2にポテンシャル渦度 (Potential Vorticity: PV) の各等温位面上での値を示す。このPV値からも上の解析結果の正しいことが分かる。

図4に上昇時のO₃と気温を、図5には大気球で測定されたO₃混合比およびこの日に Esrange から放球されたオゾンゾンデ観測の結果を比較した。両者は0.5km近い高度の差を除けば極めてよく一致していることが分かる。この高度差が実際の大気変動によるものか、単純な測定上の誤差なのかは今後検討する。

図6に上昇および降下中に測定されたNOの高度分布を示す。23km以下ではNOはほとんど0.1ppbv以下であるが23ないし24kmより急速にNO混合比が増加している。また29km付近では1.2ppbvの極大をもっている。図7はNO混合比200pptv以下の部分を拡大した図である。上昇中高度16から24kmの間でNO混合比は検出限界の約20pptv以下であることが分かる。この間の太陽天頂角 (SZA) は91から89.5度に変化している。下降を始める頃SZAは87度位になり下降中のSZAはほぼ88度であった。図8に0.4ミクロン以上の直径をもつエアロゾル濃度とNOを同時にプロットした。ピナツボ噴火によるエアロゾル濃度の増加が止むのが23kmでNOの急速な増加が始まる高度と一致している。これは増大した硫酸エアロゾル表面上で $N_2O_5 + H_2O \rightarrow 2HNO_3$ の反応によりNO_xが失われていることを示唆している。下降中のNOのデータ, J_{NO2}, O₃, N₂Oの測定値と組み合わせた解析により、

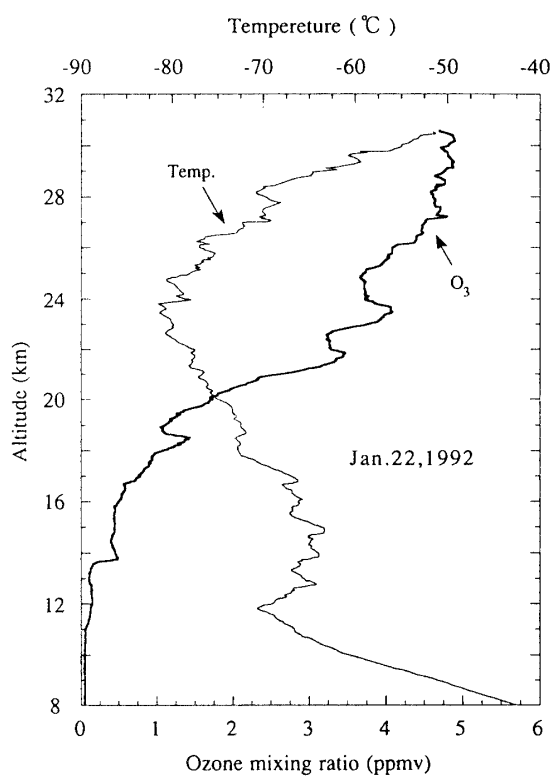


図4 1992年1月22日の上昇時のオゾン及び気温の高度分布.

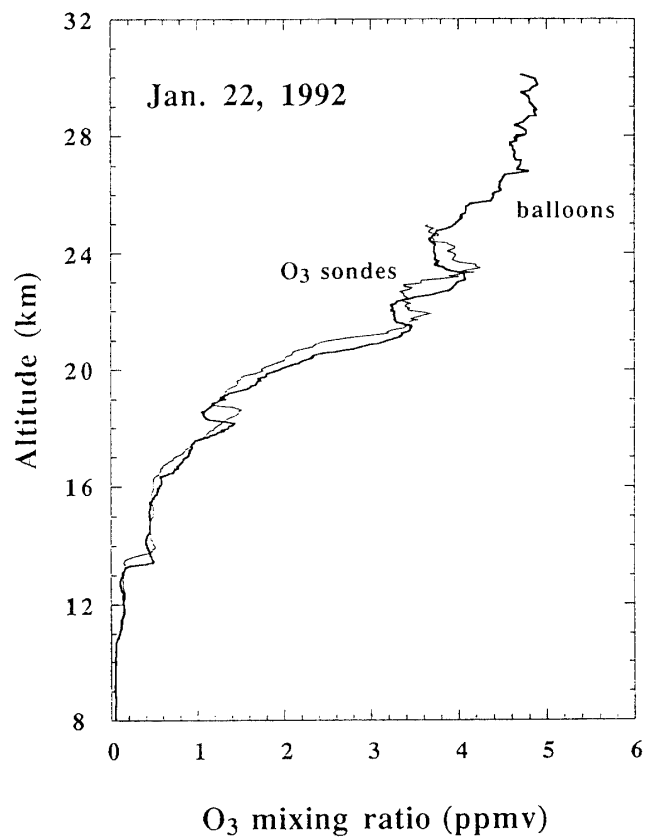


図5 1992年1月22日の大気球(太線)および小型気球(細線)によるオゾンの高度分布の観測の比較.

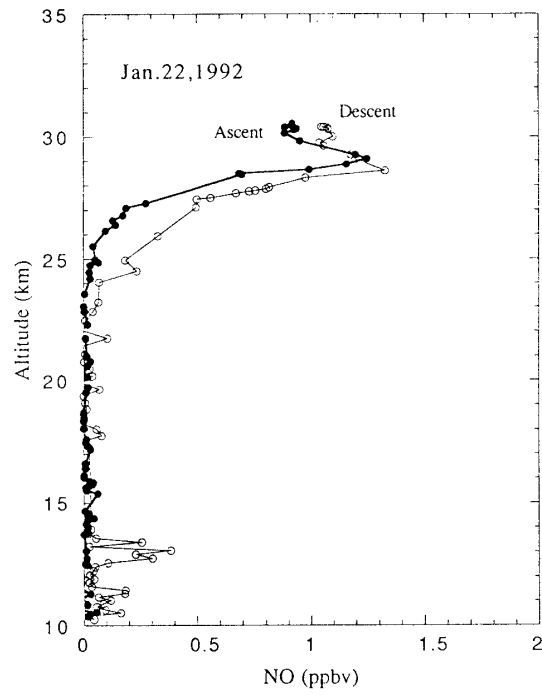


図6 1992年1月22日のNOの上昇時（黒丸）および下降時（白丸）の高度分布.

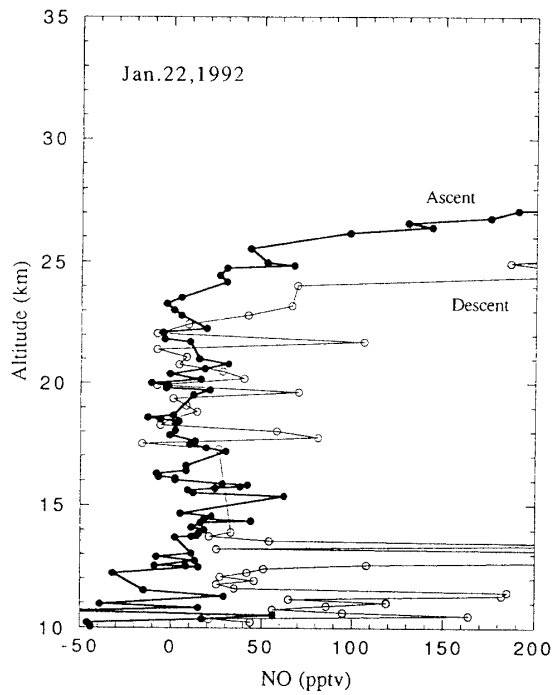


図7 1992年1月22日のNOの上昇時（黒丸）および下降時（白丸）の高度分布.
200pptv以下を拡大した図.

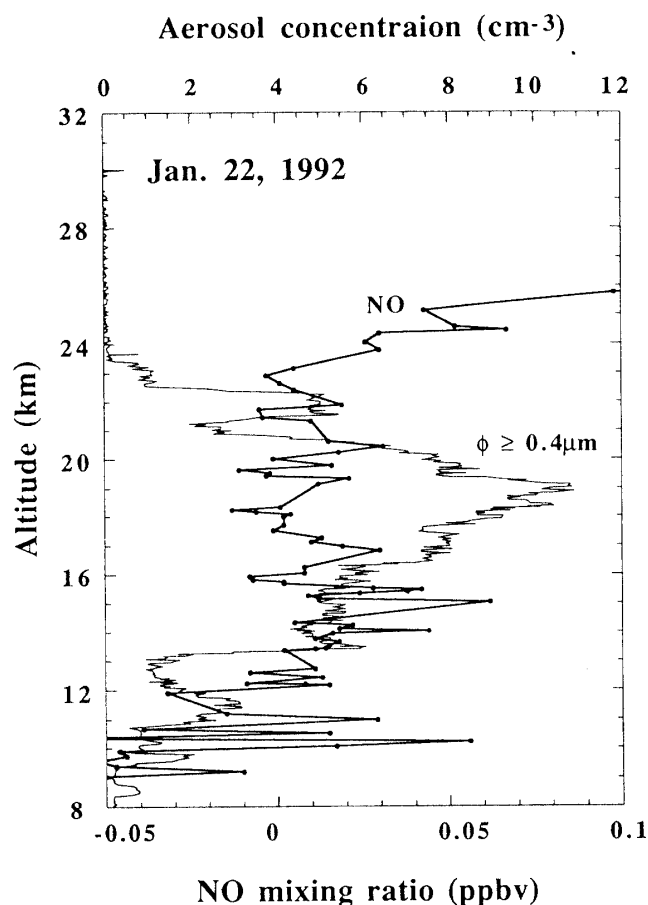


図8 0.4ミクロン以上の直径を持つエアロゾル濃度とNOの高度分布.

この点を明確にしていきたい。

図9にエアロゾル濃度とO₃濃度を同時にプロットした。高度15km以下ではエアロゾル濃度とO₃濃度とは正の相関がある一方、高度18から24kmの間ではエアロゾルの極大はO₃の極小に良く対応している。高度18から24kmの反相関の原因として1) エアロゾル濃度が大きくO₃濃度が小さい低緯度からの空気塊高緯度大気との混合と2) 高濃度エアロゾルの空気塊のなかでの不均一反応によるO₃の化学的損失の2つが考えられる。両者の効果を精度良く分離するのは容易ではない。このほかにもEASOEでは多くのO₃やエアロゾルデータ得られており、この点を研究するためにはより多くのデータと空気塊のトラジェクトリーと組み合わせたような解析が必要となろう。

1992年1月31日の結果

1月31日の0711UT (0811 Local Time) に我々のゴンドラを載せた気球が放球された。気球は0915UTに6.8hPa (高度31.2km) に達し、0935UT頃までこのレベル高度に留まった。その後9.6hPaまでゆっくりとした下降を行なった直後ゴンドラは気球と切り離され、パラシュートによる速い降下をした。NO_yの測定は上昇時に177hPaから6.8hPaまでの間まで

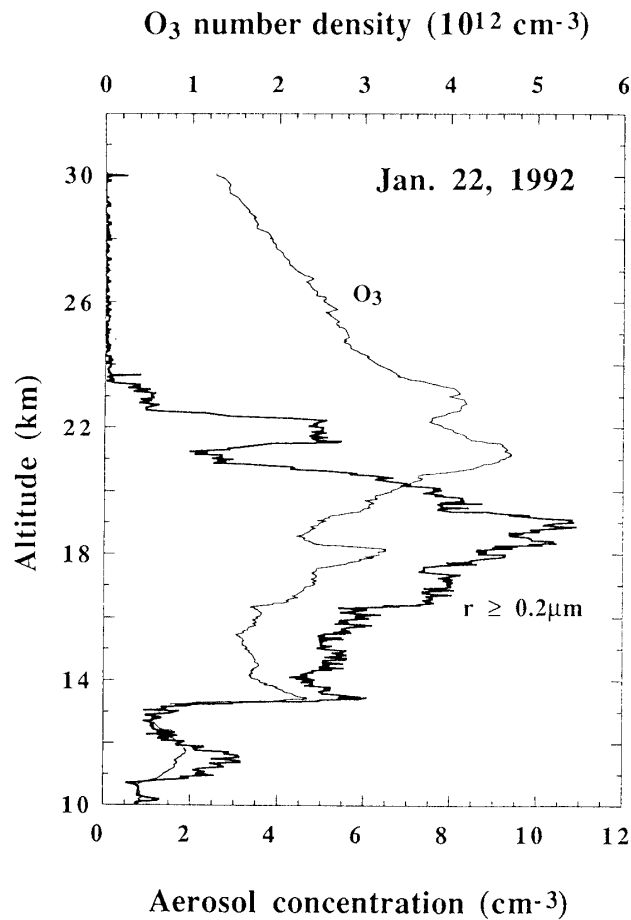


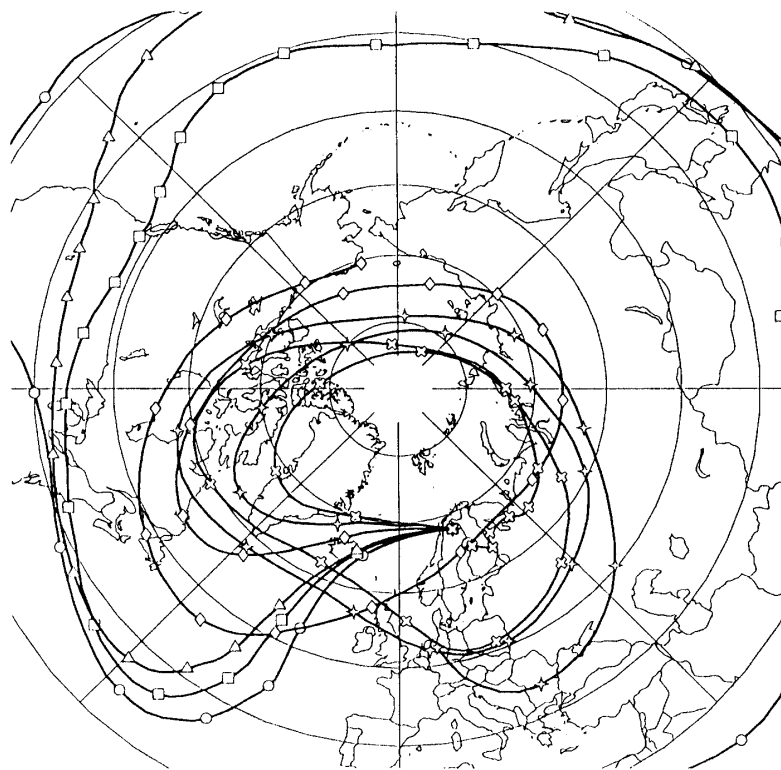
図9 0.4ミクロン以上の直径を持つエアロゾル濃度と O₃ の高度分布.

おこなわれた。オゾンの測定は上昇中に、N₂O の測定はパラシュート降下中に行なわれた。

ここでも Esrange が極渦の境界に対しどのような位置関係にあったかは図10に示した。350, 380, 400, 475, 550, 700k での等温位面上での10日間のトラジェクトリーから判断できる。350-400Kの間ではトラジェクトリーは低緯度に伸びているが475-700Kでは高緯度に留まっており、400K以下では極渦の外側475kより上では極渦の内側の大気を測定したことになる。また表3にまとめたポテンシャル過度の各等温位面上での値からも上の解析結果の正しいことが分かる。

図11に上昇時の O₃ と気温を、図12には大気球で測定された O₃ と同じ日に Esrange から放球されたオゾンゾンデ観測の結果を比較した。ここでも Esrange のオゾンゾンデ観測のほうが0.5km 近く高度が高くなっていることのほかに Esrange の値が約10%大きくなっている。大気球では CNRS のオゾン測定もあり、これは我々の値に近い。

図13に上昇中に測定された NO_y と O₃ の高度分布を示す。NO_y 混合比は18km から急速に増加し24km で13ppbv に達する。28-29km の間で NO_y は9ppbv まで下がる事意外は24から31km までは13-15ppbv の値をとり大きな変化はしていない。ここにプロットしていないが28,29km の間での NO_y はより細かな変動をしているように見える。NO_y と O₃ は22km まで



ECMWF TRAJECTORIES

10 days analysis

Hours/mark: 12

(Filled mark if PSC
since previous mark)

- End loc: Kiruna
End date: 31.Jan.1992
Level : 350 K
- End loc: Kiruna
End date: 31.Jan.1992
Level : 380 K
- △ End loc: Kiruna
End date: 31.Jan.1992
Level : 400 K
- ◇ End loc: Kiruna
End date: 31.Jan.1992
Level : 475 K
- ✦ End loc: Kiruna
End date: 31.Jan.1992
Level : 550 K
- ✧ End loc: Kiruna
End date: 31.Jan.1992
Level : 700 K

Plotted at NILU, Wed Apr 22 DST

図10 1992年1月31日のキルナから10日間遡ったトラジェクトリー。温位350, 380, 400, 475, 550, 700K について示す。

よくその高度分布の形が一致していることが分かる。図14はNO_yをO₃の関数としてプロットしたものでNO_yとO₃の相関がよい事が見える。NO_yとO₃の比をとることによりNO_y, O₃の各々の変動が打ち消されるためNO_y/O₃比はより時間的空間的変動が少ない量として便利な物理量である。図15には示したNO_y/O₃比からこの値が18km以上では0.002-0.003の値をとっている事が分かる。この比を他の測定結果や数値モデルと比較することが必要である。1989年及び1990年1月のNO_yの測定結果についてはKondo et al.[1990, 1992]を参照されたい。

NO_yはN₂O + (¹D) → 2NO の反応により生成される。このため20km以下の高度でN₂Oが50ppbv以上のときもしNO_yがPSCsにより脱窒 (denitrification) されていなければNO_yがN₂Oと負の直線的な相関があることが航空気観測により見つけられている[Fahey et al., 1990]。高度20km以上でこの点を調べるために図16にNO_yをN₂Oに対しプロットした。N₂Oが140ppbvとなる1点以外のデータで上記の関係は良く成り立っている事が分かる。このことは1992年の1月31日には極渦の内側の475Kより高い高度ではほとんど脱窒が起きていないことを意味する。これはKondo et al.[1992]で見いだされているように1990年1月な脱窒が起きていたことと対比的である。1992年は明らかに1990年と比べ北極成層圏の気温が高く脱窒を起こすのに必要なPSCsの生成が不十分であったと推測される。1992年にも

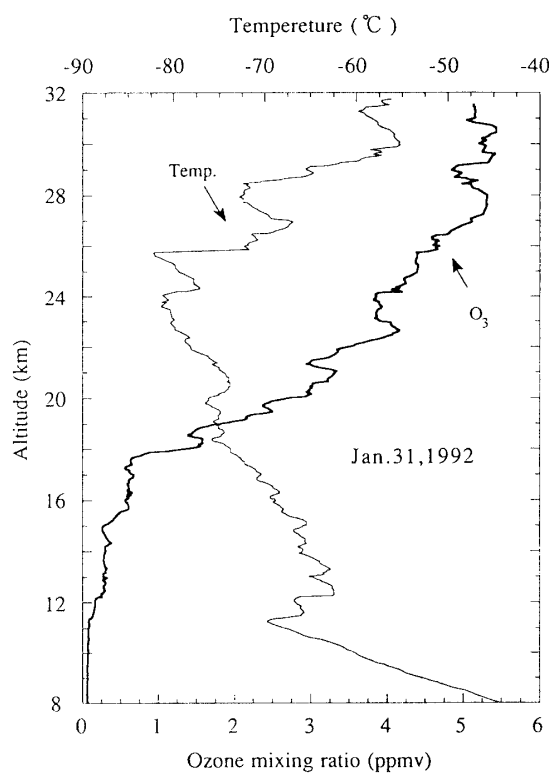


図11 1992年1月31日の上昇時のオゾン及び気温の高度分布。

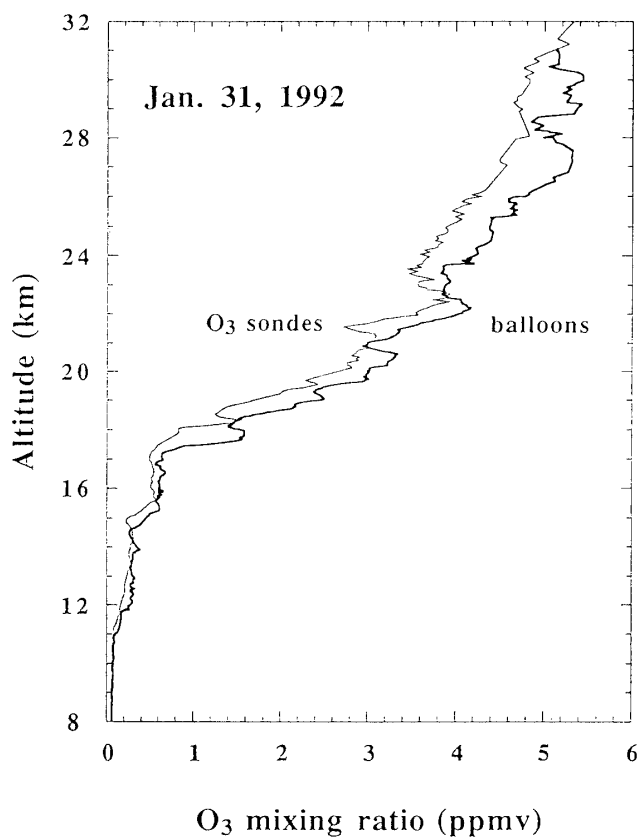


図12 1992年1月22日の大気球（太線）および小型気球（細線）によるオゾンの高度分布の観測の比較。

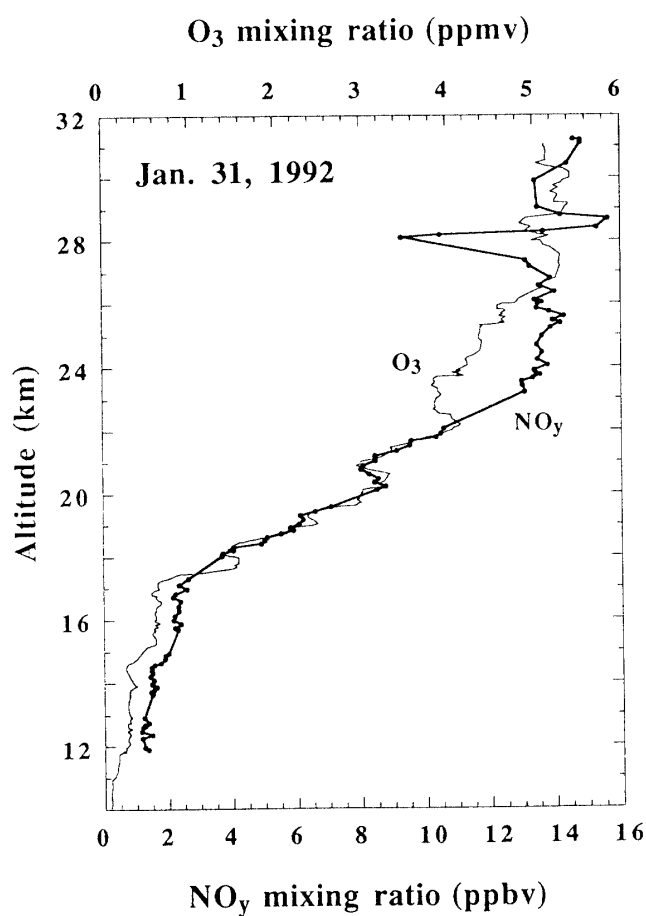


図13 1992年1月31日の上昇時のNO_y及びオゾンの高度分布.

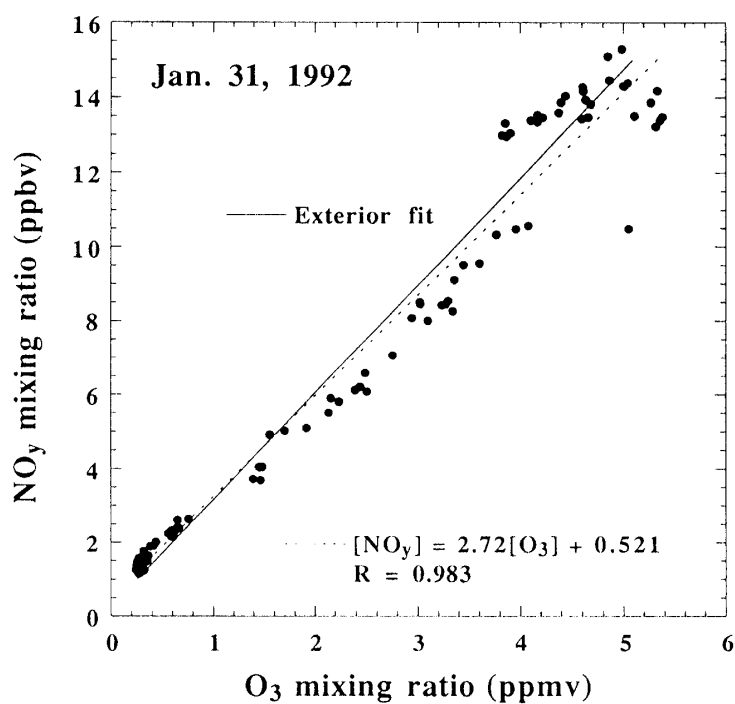
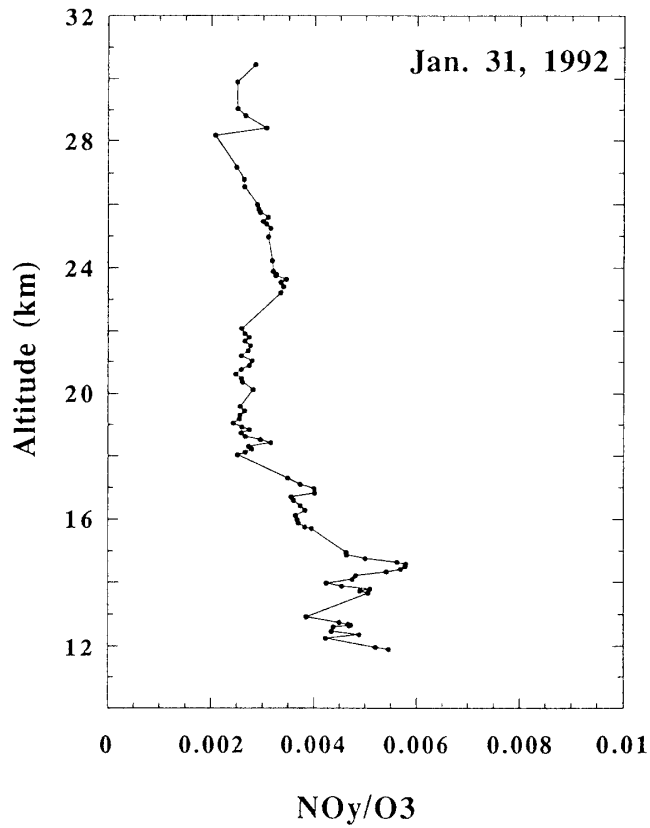
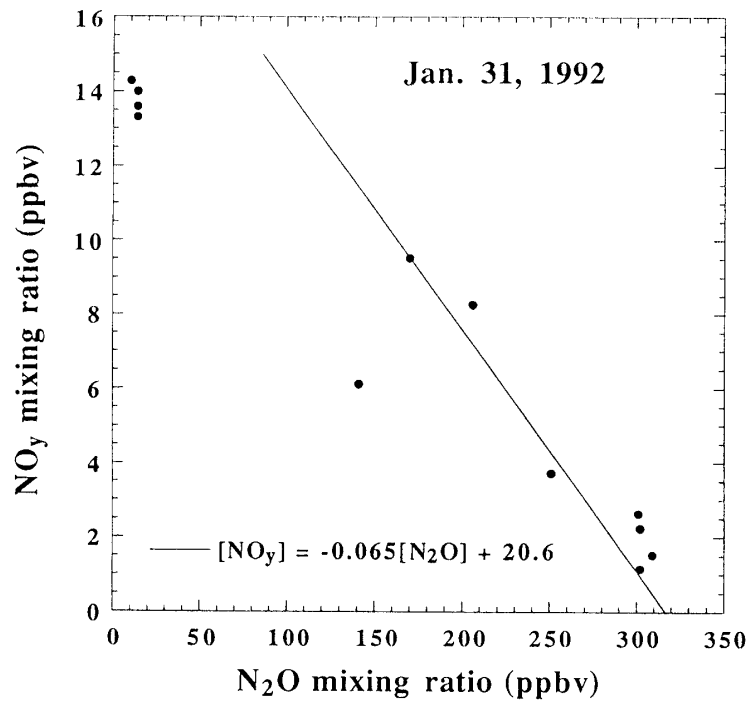


図14 O₃の関数としてプロットされた1992年1月31日のNO_y混合比. 実線はこれまでの航空機観測の値. 点線はこのデータの最小自乗直線近似.

図15 1992年1月31日のNO_y/O₃比.図16 N₂Oの関数としてプロットされた1992年1月31日のNO_y混合比.

FaheyらはNO_yとN₂Oの航空気観測を北極で行なっており、ここでの観測データと比較することになっている。

謝辞

Esrangleでの気球実験はフランスのCNESにより支援して頂きました。また名古屋大学のEASOEの参加を正式に認めて頂いたOzone Coordination Unitを中心とするヨーロッパの研究者に感謝します。我々がEASOEに参加するための費用は文部省科学研究費補助金(国際学術)によりました。また今回気球に搭載された測定器の開発には宇宙科学研究所の基礎開発費が使用されました。今回の気球実験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

- EASOE, The European Arctic Stratospheric Ozone Experiment November 1991-March 1992, The Campaign Document Prepared for the CEC, 1991.
- Kondo, Y., P. Amedieu, M. Koike, Y. Iwasaka, P.A. Newman, U. Schmidt, W.A. Matthews, M. Hayashi, and W.R. Sheldon, Reactive nitrogen, ozone, and nitrate aerosols observed in the Arctic stratosphere in January 1990, *J. Geophys. Res.* 97, 13025-13038, 1992.
- Kondo, Y., P. Amedieu, W.A. Matthews, D.W. Fahey, D.G. Murcray, D.J. Hofmann, P.V. Johnston, Y. Iwasaka, A. Iwata, and W.R. Sheldon, Balloon-borne measurements of total reactive nitrogen, nitric acid, aerosols in the cold Arctic stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 437-440, 1990.
- Fahey, D.W., K.K. Kelly, S.R. Kawa, A.F. Tuck, M. Loewenstein, K.R. Chan, and L.E. Heidt, Observations of denitrification and dehydration in the winter polar stratosphere, *Nature*, 344, 321-324, 1990.