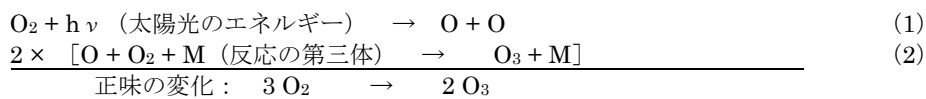


参考資料

参考資料1. 成層圏におけるオゾンの生成と消滅

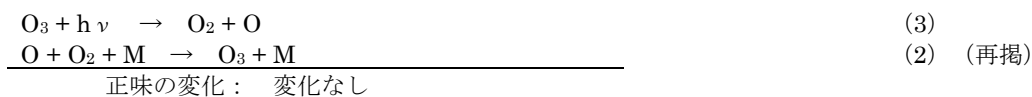
成層圏オゾンの生成・消滅反応

大気中でオゾン (O₃) を生成する唯一の反応は、何らかの作用によって大気中に供給された酸素原子 (O) と大気の主成分の一つである酸素分子 (O₂) との結合反応 (反応 (2)) である。成層圏で正味の化学変化としてオゾンの生成をもたらすための酸素原子の供給源は、エネルギーの高い太陽紫外線が到達する成層圏中上部での酸素分子の光解離反応 (反応 (1)) である。



ここで、Mは窒素分子又は酸素分子で、反応によって生じた化学エネルギーを持ち去り、生成したオゾン安定化して再び酸素原子と酸素分子に解離しないようにする役割を担っている。

オゾンは太陽の光を吸収して解離し、酸素原子を生成する (反応 (3)) *。オゾンの光解離によって生成した酸素原子は直ちに反応 (2) によってオゾンを再生するので、反応 (3) と (2) では正味の化学変化 (オゾンの生成・消滅) は起こらない。酸素分子の光解離 (反応 (1)) によって酸素原子が生成した場合は、正味としてオゾンの生成をもたらすのと、対照的である。



ここで示した反応 (3) と (2) は、成層圏でのオゾンを取り巻く反応の中で最も活発に起こっている反応である。この2つの反応は正味の変化としては何らの化学変化も引き起こさないものの、紫外線を熱に変換する反応 (成層圏の熱源としての反応) に相当しており、周りの大気を暖める役割を果たしている。

反応 (3) によって生成された酸素原子の大部分は上述のとおり反応 (2) によってオゾンを再生するが、ごく一部はオゾンと反応することで酸素分子にもどる (反応 (4))。これが成層圏におけるオゾンの分解反応である。



* オゾンの光解離は、紫外線のみではなく、可視光 (人間の目に見える光) や赤外線の一部 (理論的には波長 1180nm より短波長の光) でも起こる。

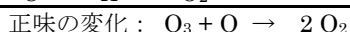
反応(3)と(4)の正味の化学変化は、反応(1)と(2)による正味の化学変化(オゾンの生成)のちょうど逆の変化になっている。

成層圏でのオゾンの生成・消滅の基本的な部分は、反応(1)～(4)によって構成される一連の化学反応群で説明される。反応(1)～(4)は酸素のみを考慮した化学反応群であり、純酸素機構あるいはチャップマン機構と呼ばれている。

チャップマン機構ではオゾンの分解速度は反応(4)に支配される。反応(4)は気温が低くなると効率は悪くなるため、何らかの理由で成層圏の気温が低下するとオゾンの分解速度が低下し、その結果、オゾン量の増加をもたらす。一方、オゾン量の増加は反応(3)と(2)を通して成層圏をより加熱する(気温を上げる)方向に働くことで、オゾンの分解速度の低下は緩和される*(気温の変化を介したフィードバックの存在)。

オゾン分解反応サイクル

成層圏では、反応(3)と(4)によるオゾン分解反応以外にも、成層圏に存在する極微量の活性種が関与するオゾン分解反応がある。オゾン分解反応に関与する活性種としては、水素酸化物(HO_x と総称。H、OH及び HO_2)、窒素酸化物(NO_x と総称。NO及び NO_2)、塩素酸化物(ClO_x と総称。Cl及び ClO)、臭素酸化物(BrO_x と総称。Br及び BrO)がある。これらの活性種が極微量であるにもかかわらずオゾン層でのオゾンの消失に影響を及ぼし得るのは、これらの活性種の関与するオゾン分解反応が連鎖反応になっているためである。これまでに幾つかのオゾン分解反応が提案されているが、その中でも成層圏中上部で重要となる反応は次に示す反応である。



ここで、XはH、OH、NO、Cl又はBrである。反応(5)と(6)は、オゾン分解反応サイクルを構成しており、例えば $\text{X}=\text{Cl}$ の場合、 ClO_x サイクルと呼ばれている**。 ClO_x サイクルは、MolinaとRowlandのクロロフルオロカーボン(CFC)によるオゾン層破壊の予見として有名である***。 ClO_x サイクルの場合、反応(5)によって一酸化塩素(ClO)に変換された塩素原子(Cl)が反応(6)によって再生され、再び反応(5)に関与することで、

*逆に何らかの理由で成層圏の気温が上昇した場合は、オゾンの分解速度が増大し、オゾン量の減少をもたらす。オゾン量の減少は成層圏の加熱を抑える(気温を下げる)方向に働くことで、オゾンの分解速度の増大は緩和される。

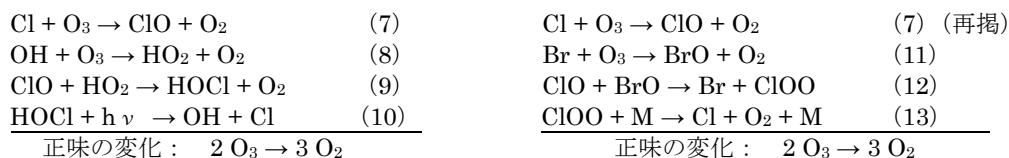
**同様に、 $\text{X}=\text{H}$ 又はOHの場合は HO_x サイクル、 $\text{X}=\text{NO}$ の場合は NO_x サイクル、 $\text{X}=\text{Br}$ の場合は BrO_x サイクル、と呼ばれる。また、オゾン分解反応サイクルは総称として、 XO_x サイクルと呼ばれている。

***「CFCによるオゾン破壊」として表現されるが、CFCが直接オゾンと反応してオゾンを分解する訳ではない。CFCはCl原子を成層圏に運ぶ「運び屋」の役割を担っている。成層圏に達したCFCは、太陽紫外線による光分解反応並びにその後続の化学反応によってCl原子を遊離する。

連鎖的にオゾン分解する*。なお、 ClO_x サイクルをはじめとする XO_x サイクルの正味の化学変化は反応 (4) と同じ**である。

成層圏では、下部成層圏により多くのオゾンが存在している。そのため、上部・下部成層圏のそれぞれの高度域に存在するオゾン量に対し、同じ割合（例えば 1% の減少）のオゾンが消失すると仮定すると、下部成層圏でのオゾンの消失の方がオゾン全量の変化により大きく影響を及ぼすことになる。ところが、下部成層圏においては、酸素原子との反応を含む反応 (5) と (6) で表した XO_x サイクルはオゾン分解反応として十分に機能しない。この理由は、反応 (5) と (6) で表される XO_x サイクルにおいてオゾンの分解効率は酸素原子の濃度に依存するが、酸素原子の濃度は高度が下がるにつれて著しく減少するため、下部成層圏では効率的なオゾン分解を引き起こすのに十分な濃度の酸素原子が存在しないためである。

このため、下部成層圏でのオゾン分解では酸素原子との反応を必要としないオゾン分解反応サイクルの存在が必要であり、極微量な活性種同士の反応などが重要となる***。下部成層圏において塩素酸化物が関係するオゾン分解反応サイクルの例を以下に示す。



HO_2 や BrO は極微量な活性種ではあるものの、下部成層圏におけるそれらの濃度は酸素原子の濃度に比べると高く、そのため ClO とは異なる反応サイクルに属するとされていた HO_2 や BrO との相互反応を含む上記のオゾン分解反応サイクルが有効となる。

大気中にはこれらの連鎖反応に関与する活性種を除去する反応（連鎖を停止する反応）が存在するため、連鎖反応が無限に続くわけではない。例えば塩素酸化物 (Cl 及び ClO) を介した ClO_x サイクルの場合、塩素原子がメタンとの反応によって塩化水素 (HCl) に変換される反応（反応 (14)）や一酸化塩素が二酸化窒素との反応によって硝酸塩素 (ClONO_2) に変換される反応（反応 (15)）が連鎖を停止する反応に相当する。



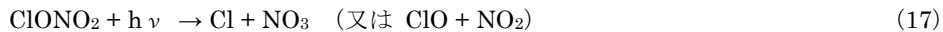
塩化水素や硝酸塩素は反応性が比較的低く、オゾン分解反応には直接は関与しない。しかし、

*CFC の光化学反応では、 Cl 原子だけでなく、 F 原子も生成する。しかし、 FO_x の効率は極めて悪く、オゾン分解には寄与しない。これは、 F 原子が生成しても、 CH_4 や H_2O との反応によって容易に HF に変換され、再び F 原子に活性化されることはないことに起因している。 HCl に貯留された Cl 原子が反応 (16) によって活性化されるのと対照的である。

**オゾン分解反応サイクルは「触媒反応サイクル」とも呼ばれている。例えば、 ClO_x 触媒サイクルなど。

*** HO_x サイクルの場合、 OH だけでなく、例外的に HO_2 もオゾンと直接反応するため、 $\text{OH} + \text{O}_3 \rightarrow \text{HO}_2 + \text{O}_2$ と $\text{HO}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{OH} + 2 \text{O}_2$ によって構成されるオゾン分解反応サイクル（正味の化学変化は、 $2 \text{O}_3 \rightarrow 3 \text{O}_2$ ）が存在する。この反応群も「 HO_x サイクル」と呼ばれている。

塩化水素や硝酸塩素からは、次の化学反応によって塩素原子や一酸化塩素が再生される。



このことから、塩化水素や硝酸塩素は塩素酸化物を不活性な形で一時的に貯留する役割を担っていることになる。

オゾン層破壊物質

成層圏でのオゾン分解に関与する活性種を構成する水素、窒素、塩素、臭素は対流圏から成層圏に輸送されてくる物質（ソースガスと呼ばれている）によって供給される*。ソースガスとしては、水蒸気やメタン（水素源）、一酸化二窒素（窒素源）**、塩化メチル（塩素源）、臭化メチル（臭素源）がある。これらのソースガスは生物活動や自然活動によって大気に放出されるほか、人間活動に伴っても放出されている。

ソースガスの中には自然起源を持たない物質もある。人工物質であるクロロフルオロカーボン（CFC）、ハイドロクロロフルオロカーボン（HCFC）、ハロン、四塩化炭素及び1,1,1-トリクロロエタンがその代表的な物質であり、20世紀に最も顕著な濃度上昇を示したソースガスである。塩素や臭素を含むこれらの人工物質は、成層圏での塩素及び臭素の新たな供給源となっており、オゾン層破壊物質と呼ばれている。

活性種の生成、貯留、除去

成層圏に輸送されたオゾン層破壊物質をはじめとするソースガスは、光化学的な反応によってオゾン分解に関与する活性種を生成する。先に述べたとおり、生成した活性種はオゾン分解反応に関与しながら反応性のやや低い物質に変換される。例えば塩素酸化物の場合、CFCなどの有機塩素化合物の光化学的な反応によって生成した塩素原子は最終的に反応性が低い塩化水素や硝酸塩素などに変換される。一方、塩化水素や硝酸塩素からは光化学的***に塩素原子や一酸化塩素が再生される（反応（16）及び（17））。そのため、塩化水素や硝酸塩素のような反応性のやや低い物質は活性種の貯留成分（リザーバー）と呼ばれている。

オゾン層を破壊する反応サイクルに直接関わってくるのは塩素酸化物のような活性種であり、オゾンの分解率は活性種の濃度の変化に影響される。一方、塩化水素や硝酸塩素のような貯留成分はオゾン分解サイクルとは直接的には関わっていないが、活性種の生成に関与している。特に下部成層圏では、オゾン分解に関与する活性種を構成する原子（塩素酸化

* 活性種の供給源としては、対流圏からのソースガスの輸送以外に成層圏を巡航する航空機からの NO_x の直接放出などもある。

** 一酸化二窒素（ N_2O ）については、オゾン層破壊係数（ODP）（ODPについては本文 P82 を参照）が0.017と見積もられている（Ravishankaraら、2009）。なお、 N_2O は現在、モントリオール議定書の対象外であり、オゾン層保護法による規制を受けていないが、京都議定書の温室効果ガスとして地球温暖化対策推進法による排出抑制の対象となっている。

*** 塩化水素（HCl）から塩素原子を再生する反応(16)自体は光化学反応ではないが、塩化水素と反応するOHラジカルは、太陽紫外線によるオゾンの光解離反応を含む一連の化学反応によって生成される。このため、塩化水素からの塩素原子の生成も光化学的な反応として扱っている。

物の場合は塩素原子)の大部分は反応性の低い貯留成分として存在し、その一部が貯留成分から活性種に変換され、活性種として存在している。さらに貯留成分から活性種を生成する効率や活性種が貯留成分に変換される効率は貯留成分によって異なっている。したがって、オゾンの破壊効率を正確に評価するには、貯留成分間の分配や貯留成分と活性種との間の分配を知る必要がある。

貯留成分はガス状の水(水蒸気)との間ではほとんど反応しないものの、氷や液滴の水とはなじみやすい特徴を有している。貯留成分と微粒子状の水との関係は、貯留成分から活性種の生成や大気中からの活性種の除去とも関連しており、オゾン層破壊の規模や長期的な変化を理解する上で重要である。

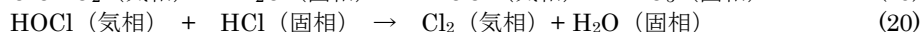
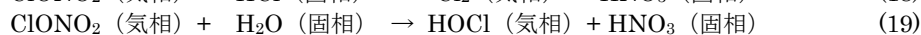
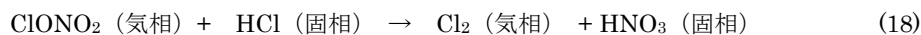
対流圏から成層圏に物質が輸送されるのと同様に、成層圏から対流圏にも物質が輸送される。成層圏に輸送されたソースガスから生成した塩素、臭素、窒素、水素の原子は、貯留成分として、成層圏内を輸送され、最終的には対流圏に戻ってくる。先にも述べたとおり、貯留成分は氷や液滴の水となじみやすいため、雨に溶けて最終的には大気から除去される。

オゾンホールと極域のオゾン破壊プロセス

南極域の成層圏オゾンは、北半球の同緯度と比べて冬・春には著しく少ないことが知られていた。これは、北極域に比べて南極域では、極をめぐる成層圏の西風(極夜渦又は極渦という)が円状に安定して流れているため、極域の空気は低緯度側のオゾンの濃い空気と混ざりにくいからだと説明されてきた。1980年代に入って、春季特に10月期にはオゾン量が異常に少ないこと、さらにその量が年々減少を続けていること、また、この低オゾン量の領域が南極大陸全域にかぶさるように広がっていることが明らかとなって、この現象をオゾンホールと呼ぶようになった。オゾンホールが最も発達する南半球の春季には、オゾンホール内側の下部成層圏(高度10~25km)において、オゾンがなくなったといえるほど低濃度となることが観測されている。

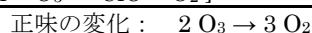
オゾンホールが形成される春季の南極域では、太陽光は弱いため十分な濃度の酸素原子が存在できず、反応(5)と(6)で示したようなオゾン分解サイクルは効率的ではない。さらに、著しい低濃度オゾンが観測される10~25kmの高度領域では、通常ならば塩素酸化物・臭素酸化物の大部分は化学的にやや不活性な貯留成分の形で存在しているため、反応(9)~(15)で示したようなオゾン破壊反応サイクルもそれほど強力に働かないはずである。このため、オゾンホール形成では何らかの特異的なオゾン分解反応が存在していると考えられた。

南極域上空の成層圏の気温は冬季(極夜)に著しく低下するため、南極域下部成層圏では極成層圏雲(PSC)と呼ばれる微粒子が生成される。極成層圏雲が存在すると、太陽光が届かない条件でもその粒子表面で不均一相反応(反応(18)~(20))が進行し、反応性が低い硝酸塩素や塩化水素が、光解離しやすい塩素分子(Cl_2)や次亜塩素酸(HOCl)に変換される。



さらに、上記の不均一相反応によって生成される硝酸 (HNO₃) は極成層圏雲粒子上にとどまるため、気相中では NO_x 濃度が低く抑えられることになり、反応 (17) の連鎖停止反応の効率が抑えられ、効率よく連鎖反応が進行するための条件が整うことになる。

南極域では反応 (18) ~ (20) で表した不均一相反応が効率よく進むため、太陽光が戻る春季に光化学反応を通して多くの塩素酸化物が生成されることになる。実際、オゾンホール内では高濃度の ClO の存在が観測で確かめられている。このように、南極域成層圏では ClO 濃度が異常に高いため、反応 (21) ~ (23) を含む特異的なオゾン分解反応が存在し、著しいオゾン破壊が進行している。



なお、上記のオゾン分解反応も ClO_x サイクルと呼ばれている。

また、オゾンホール内では高濃度の ClO が存在するため、上記の ClO_x サイクル以外にも ClO が関与する反応によって、オゾンが効率的に分解される。特に、先に反応 (11) ~ (13) の形で述べた ClO-BrO の相互反応を含むオゾン分解サイクルは重要である。

南極域と北極域の相違

極成層圏雲は冬季成層圏の極低温状態でのみ存在し、高度 20 km 付近で -78°C 以下で形成される、硝酸水和物の結晶微粒子又は硫酸・硝酸・水の過飽和混合液の微粒子から成るものと、-85°C 以下で形成される氷の結晶微粒子から成るものとの二種類がある。極夜渦が安定していて成層圏大気が極低温となる南極域冬季では、極成層圏雲が下部成層圏に常に存在し、塩素化合物は活性化され、春になって成層圏に太陽光が当たるようになると、一気にオゾン分解反応サイクルが働き出し、オゾンが減少し始める。

一方、北極域の冬季は、成層圏の極夜渦は下層大気の擾乱の影響を受けて変形・蛇行しやすく、冬の途中で分裂・衰退することもあり、一般的に不安定である。このため、極成層圏雲は冬の間長期継続して存在することは珍しく、したがって、南極域のような大規模なオゾンホールは発生しにくい。それでも、南極域と同じオゾン分解反応サイクルは北極域でも働いており、年によっては小規模のオゾンホールが現れることもある。オゾンが少なくなった北極域の空気は間歇的に低緯度側に拡がるので、北半球の中高緯度における冬・春のオゾン減少は近年顕著である。

参考資料2. QBOによるオゾン変動

赤道大気の準2年周期振動（QBO）は、赤道域の下部成層圏において約2年の周期で東風と西風が交代する現象である。1-2節で述べたとおり、オゾン全量にはQBOに伴う地球規模の変動が存在する。その変動は、主にQBOに伴う鉛直流（上下方向の大気の流れ）の影響を受けると考えられるので、本節ではQBOの鉛直構造と、QBOに伴ってオゾン量が変動するしくみを解説する。

近年のQBOとそれに伴うオゾン全量偏差

図1-資-1の上のパネルには、2007年以降の赤道上空における東西風速の鉛直分布の経年変化を示す。図で、ある気圧面において横軸の時間方向に風速を見ていくと、東風と西風が約2年の周期で交代していることがわかる。また、東風も西風も上層から時間とともに下層へ降りてきており、例えば、50hPa付近の高度が西風（図1-資-1で陰影の部分）の時は、上層の10hPa付近の高度では東風になっているような鉛直構造をしている。

下のパネルには、一例として（a）2010年10月（b）2010年4月のオゾン全量の1997年～2006年平均値からの偏差の分布を示す。上層が西風で下層が東風の状況に相当する（a）2010年10月では赤道付近のオゾン全量が増加しそのすぐ高緯度側で減少、逆に上層が東風で下層が西風の状況に相当する（b）2010年4月では赤道付近のオゾン全量が減少しそのすぐ高緯度側で増加している。また、2010年の4月および10月に限らず、過去に赤道上空の東西風分布が（a）または（b）と同様な状況であったときは、同様なオゾン全量の偏差が生じている。上のパネルで太い縦実線は（a）の状況に相当する時期で、赤道付近でオゾン全量が増加しそのすぐ高緯度側で減少が見られた時期、太い縦鎖線は（b）の状況に相当する時期で、赤道付近でオゾン全量が減少しそのすぐ高緯度側で増加が見られた時期である。（b）の状況においては、下部成層圏に西風が長く留まる場合が多く、したがって、（b）に相当するオゾン全量の変化もその期間に長く見られることが多い。

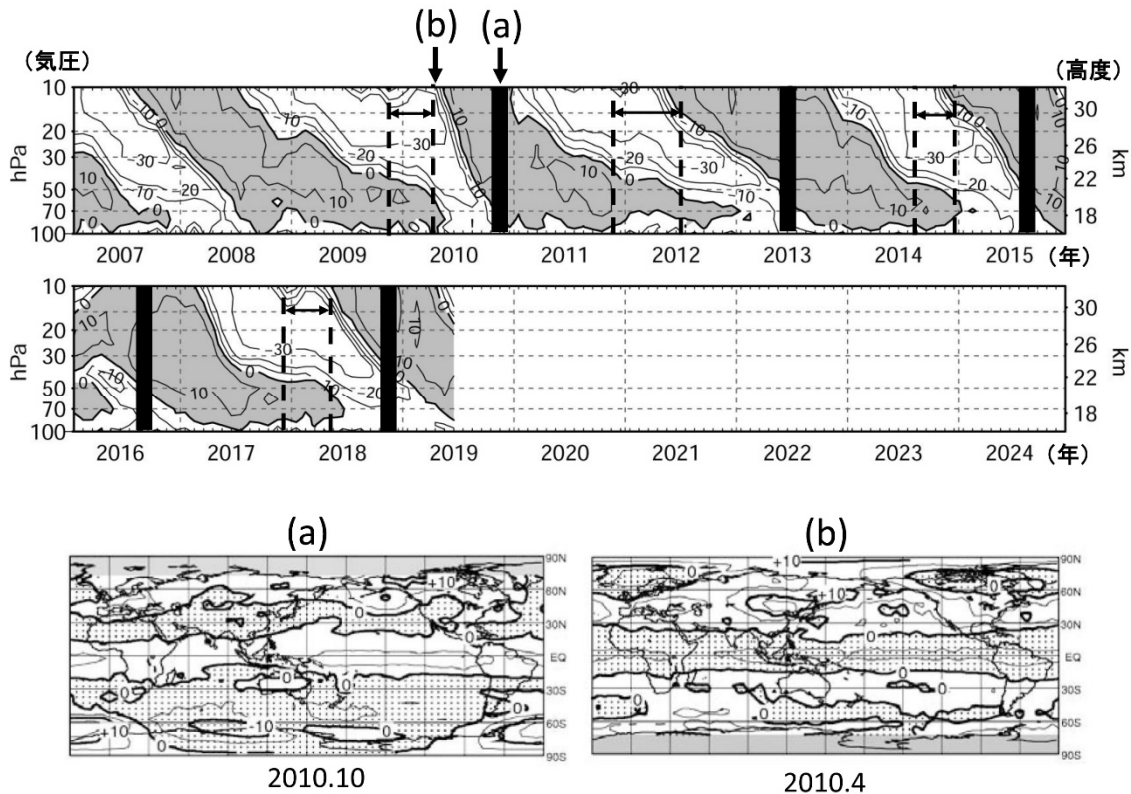


図1-資-1 QBOによる赤道東西風の変動とオゾン全量偏差

(上) シンガポール (1°N, 104°E) における月平均東西風速の時間-高度断面図。等値線は 10m/s の間隔で描かれている。正の値 (陰影部分) が西風、負の値 (白い部分) が東風。縦の黒太実線は上層に向かって西風が強まるフェーズで、赤道でオゾン全量が正偏差、そのすぐ高緯度側で負偏差の構造が最もよく認められる時期を表す。縦鎖線はその逆のフェーズの時期を表す。ただし、後者のフェーズは比較的長く続く傾向があるので期間で示されている。

(出典) ベルリン自由大学の QBO データサイト*の Figure 1 を元に作成。

(下) 月平均オゾン全量偏差 (%) の地球規模の分布図。1979~2006 年の平均値からの偏差を表す。(a) 2010 年 10 月、(b) 2010 年 4 月。上のパネルにそれぞれの時期が矢印で示されている。

(出典) 気象庁オゾン層観測報告 2010・資料 1 より作成。

QBO に伴う鉛直流とオゾン輸送

大気中のオゾン濃度は光化学反応と輸送の両方の影響を受けて変化する。QBO が起こる下部成層圏ではオゾンの光化学寿命が長く、オゾン混合比の鉛直勾配が大きい (上層に向かって急増する分布をしている) ので、QBO によって 1 年スケールの非常にゆっくりとした上昇流偏差または下降流偏差が生じた場合でさえも、それによるオゾンの輸送の変化によってオゾン濃度が変化する。図 1-資-2 に、赤道成層圏の上層が西風、下層が東風の場合 (a) と、その逆の上層が東風、下層が西風 (b) の場合に生じる鉛直・南北風の平均状態からの偏差 (矢印) と気温の偏差 (図中、WARM, COLD で表示されている) を示す。ここで (a) (b) は、図 1-資-1 の (a) (b) の時期に対応している。(a) の場合、西風が吹いている上層では、赤道から少し離れたところではコリオリ力によって南北両半球とも赤道向きに流

* <https://www.geo.fu-berlin.de/en/met/ag/strat/produkte/qbo/index.html>

れが収束し、東風が吹いている下層では、その逆に南北両半球とも流れが赤道から離れて発散する。それを補うように上層から下層へ下降流偏差が生じる。この下降流偏差によって、もともと赤道域に生じている上昇流が弱まり、オゾン濃度の低い下層からの空気の流入が弱まり、オゾン全量が増加する。また、赤道から少し離れたところでは上昇流偏差が生じ、これによってオゾン全量が減少する。(b)の場合、(a)と逆のことが起こる。

日本など、中高緯度域における QBO によるオゾン全量の変化は、赤道のすぐ高緯度側(図1-資-2 (a)の上昇流、(b)の下降流)の影響を間接的に受けていると考えられる。

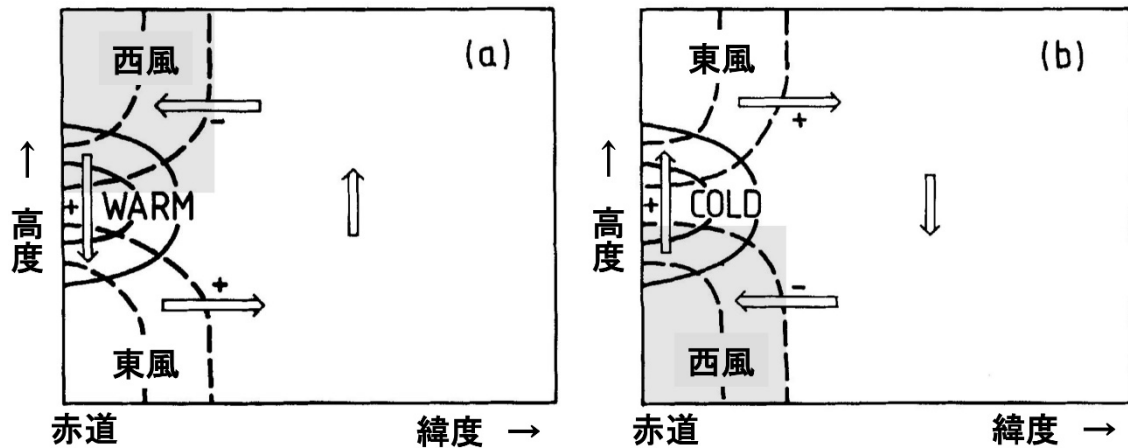


図1-資-2 QBOの東西風分布とそれに伴う大気循環の模式図

QBOによる、経度平均の東西風速(鎖線)、経度平均気温の偏差(実線)、鉛直・南北風の偏差(矢印)、西風の加速(+・減速(-)の分布。(a)上層に向かって西風が強まる場合(b)上層に向かって東風が強まる場合。(a)の状態では上層の西風が吹いている領域で西風の減速(図中の-)、下層の東風の吹いているところで西風の加速(図中の+)が起こり、1年ほどで(b)の状態へと移る。(b)では、上層の東風の吹いているところで西風加速、下層の西風の吹いているところで西風の減速が起こり、1年ほどで(a)の状態へ戻る。

(出典) Plumb and Bell (1982) Figure 1 より作成

参考資料3. オゾン層観測手法の種類

ブリューワー分光光度計、ドブソン分光光度計等

(全量観測)

ブリューワー分光光度計やドブソン分光光度計によって、オゾン全量を測定することができる。ブリューワー分光光度計は、直達又は天空から散乱された太陽紫外線を回折格子によって分光し、オゾンに強く吸収される波長の光と比較的吸収が少ない波長の光の強度比を測定することにより、地上から大気上端までの気柱に含まれるオゾンの総量(オゾン全量)を求めるドブソン分光光度計は、プリズムを用いて分光を行い、同様の測定を行う。

これらのほかの測定器として、2つのバンドパス・フィルターにより分光するフィルター式分光光度計があり、旧ソ連圏で使用されている。

(反転観測)

ブリューワー分光光度計又はドブソン分光光度計を用いてオゾンの高度分布を求める手法で、天頂方向から入射する光の強度比を2種類の波長で測定する。この場合、大気に入射した太陽光のうち、空気分子で散乱され真下に向かったものが測定される。どの高度で散乱された光が卓越するかは、太陽天頂角と波長に依存する。これらの関係は、太陽天頂角が大きいほど高度依存性が強くなるので、いくつかの異なる太陽天頂角での測定から、オゾンの高度層ごとの濃度が算出される。

オゾンゾンデ

オゾンゾンデはゴム気球に測定器を取り付けて飛揚させ、各高度で測定したデータを無線で地上に送信するもので、地上から高度 35km 位までの間のオゾン濃度を測定することができる。定常的に使われているオゾンゾンデの測定原理は、電気化学法と呼ばれるものである。ヨウ化カリウム (KI) 溶液にオゾンを含む空気を通し、ヨウ化カリウムとオゾンの反応で生じるヨウ素分子が陰極電子と作用してできる陰イオンによる電流を測定する。この場合、反応したオゾンの数密度に比例した電流が得られるので、空気中のオゾン濃度がわかる。

レーザーレーダー

レーザーレーダー(ライダー)は、レーザー光を用いた一種のレーダーである。ブリューワー分光光度計やドブソン分光光度計が太陽紫外線を光源としてオゾンによる吸光を測定するのに対し、レーザーレーダーは自らが紫外レーザー光を発して、大気による散乱光を発生させ、オゾンによるその吸収の大きさを測定することでオゾン密度を求める。また、パルス光を用いるので、高度分布を求めることができる。

具体的には、オゾンによる吸収の大きな波長と比較的吸収の小さな波長のレーザーパルス光を大気中に発射する。レーザー光は空気分子などで散乱されるので、後方に散乱される

光を光学望遠鏡（受光望遠鏡）で受信し、パルスを送ってからの時間遅れの関数として記録する。時間の遅れからは距離（高度）の情報が得られ、2つの波長の信号強度の違いにより地上からその高度までのオゾンによる光の減衰（積分された吸収量）がわかる。したがって、一定の演算処理によってオゾン密度の高度分布が計算される。

これまで、米、仏、日本等で開発されてきたオゾンレーザーレーダーによれば、高度 40～50km の上部成層圏までの測定を、2～4 時間の測定時間をかけることにより高度分解能 1～4km で行える。

ミリ波センサー

オゾンからの熱放射をミリ波帯で測定するもので、オゾン分子の回転状態遷移によって生じるスペクトル線の輪郭からオゾンの高度分布に関する情報が得られる。大気の高い高度から発せられるスペクトル線の輪郭は、幅の狭いスペクトルとなるが、高度が下がると空気分子との衝突のためスペクトル幅が広がる。測定されるスペクトルは、これらの重ね合わせである。気温・気圧の高度分布がわかっているならば、各高度に対するスペクトルの形状は計算されるので、オゾンの高度分布を算出することができる。

ミリ波センサーは、昼夜を問わず観測できるという利点がある。高度 70～80km までの高度分布を分解能 10km 程度、5～20 分程度で測定できる。

人工衛星センサー

すべての気体成分は、それぞれ固有の放射・吸収スペクトルを有していることから、適切な波長を選んで、大気の放射・吸収の測定を行うことで、成分別の濃度を遠隔的に測定することができる。衛星に搭載されるオゾン観測センサーとしては、オゾンの発する赤外放射やミリ波放射を測定する方式（放射測定法）と、オゾンによる太陽光の吸収を測定する方式（吸光測定法）とに大別できる。後者にはさらに、太陽光を直接の光源として地球周縁大気を通過する際の吸収を測定する方法（太陽掩蔽法）と、地球大気による太陽光の散乱光を測定する方法（後方散乱法）とがある。

放射測定法に基づくセンサーにも、地球周縁方向を測定対象とする方法と、衛星直下を測定方向とする方法がある。前者の代表例としては、LIMS、CLAES、MLSに加え、日本の測器としてSMILES、また後者には、同じく日本の測器IMGがある。

太陽掩蔽法では、太陽とセンサーの位置関係によって主たる吸収を受ける高度が異なることを利用して、高度分布の測定を高精度に行うことができる。太陽掩蔽法の代表例としては、SAGE、SAGE II、HALOEに加え、日本の測器としてILAS、ILAS-IIが挙げられる。後方散乱法の場合には、空気分子で後方散乱された太陽紫外線強度をいくつかの波長で測定する。波長によって大気層への紫外線の侵入高度が異なることを利用して、オゾン高度分布又は全量を求める。後方散乱法としては、TOMS、SBUV/2、GOME等が代表的である。

参考資料4. オゾン層の観測ネットワーク

全球大気監視計画(GAW 計画)

国際オゾン委員会 (IOC) は、1957～1958年の国際地球観測年 (IGY) に際して各国の気象機関にオゾン観測の実施を呼びかけ、これにより全地球規模でオゾン観測が行われるようになった。オゾン層破壊が懸念されるようになって、オゾン層のモニタリングの重要性が再認識され、WMO は、1981年にこれまでの観測所網を全球オゾン観測システム (GO₃OS: Global Ozone Observing System) として整備した。

また、オゾン層破壊、地球温暖化等の地球環境問題の顕在化に伴い、オゾン、温室効果ガスなどの大気微量成分を地球規模で観測し、データの収集、管理、提供を行う体制の実現が必要になったことから、WMO は1989年に既存の観測網である GO₃OS 及び大気バックグラウンド汚染監視網 (BAPMoN: Background Air Pollution Monitoring Network) を基礎とした全球大気監視 (GAW) 計画を発足させた。

大気組成変化検出のためのネットワーク(NDACC)

成層圏及び対流圏大気組成変化の検出、衛星観測データの検証、オゾン層や大気組成変動のメカニズムの理解を目的として、レーザーレーダー、ミリ波放射計、フーリエ変換赤外分光計、可視・紫外分光計等の地上ベースの遠隔測定によるモニタリングステーションを北極域、北半球中緯度、熱帯、南半球中緯度及び南極大陸に配備するプロジェクトが国際的に進められている。

我が国は、運営委員会に参加している他、ニュージーランドのローダーにおける気象庁気象研究所によるエアロゾルレーザーレーダー、北海道陸別町における名古屋大学・国立環境研究所によるミリ波オゾン放射計、赤外分光計観測等を行っている。

参考資料5. オゾンデータの管理・公表

気象庁によるデータ収集・管理・公表

我が国が収集した札幌、つくば、那覇、南極昭和基地におけるオゾン観測データは、気象庁地球環境・海洋部オゾン層情報センターに集められ、データチェックを経た後、毎月20日頃に気象庁ホームページ地球環境のデータバンクの「オゾン層・紫外線のデータ」(https://www.data.jma.go.jp/gmd/env/ozonehp/diag_o3uv.html)の中で各地のオゾン全量の経過等について公表される。これらの観測による成果については、毎年年次報告として公表しており、「オゾン層・紫外線の年のまとめ」「大気・海洋環境観測年報」が気象庁ホームページで公表されている。

WOUDC によるデータ収集・管理・公表

日本を含め世界各地から収集したオゾンデータは、カナダにある WMO の世界オゾン・紫外線資料センター(WOUDC)に送付され、品質管理が行われる。また、反転観測値については、すべての観測点のデータを同一方式で処理して高度層ごとのオゾン量を算出している。

これらの結果は、WOUDC に保存されるとともに、「世界のオゾンデータ (Ozone Data for the World)」としてインターネットで公表され、世界各国に還元されている。

このほか、NASA やドイツ航空宇宙センター (DLR) が、TOMS データや GOME-2 データ等の衛星による観測データをインターネット上で公開している。

参考資料6. 2018年の月平均オゾン全量と偏差(%)の地球規模の分布

月平均オゾン全量・偏差(%)の地球規模の分布図を以下に示す(図1-資-3)。月平均オゾン全量(左図)の等値線間隔は $15 \text{ m atm}\cdot\text{cm}$ 、偏差(%) (右図)については5%である。陰影部は太陽高度角の関係で観測できない領域を示す。NASA提供の衛星データをもとに気象庁が作成した。

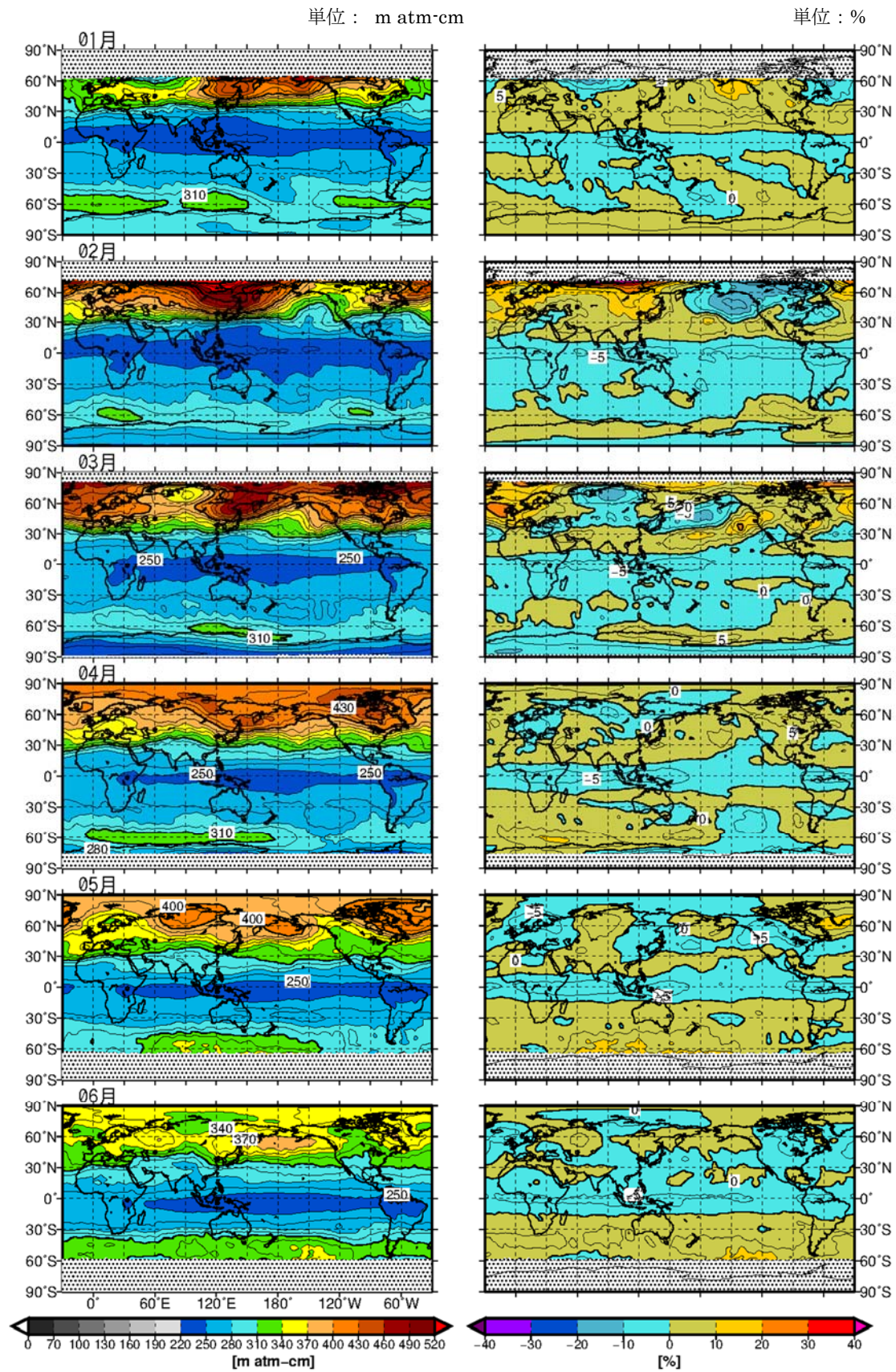


図1-資-3(1) 月平均オゾン全量・偏差(%)の地球規模の分布図(2018年1~6月)
 (出典) 気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ(2018年)より

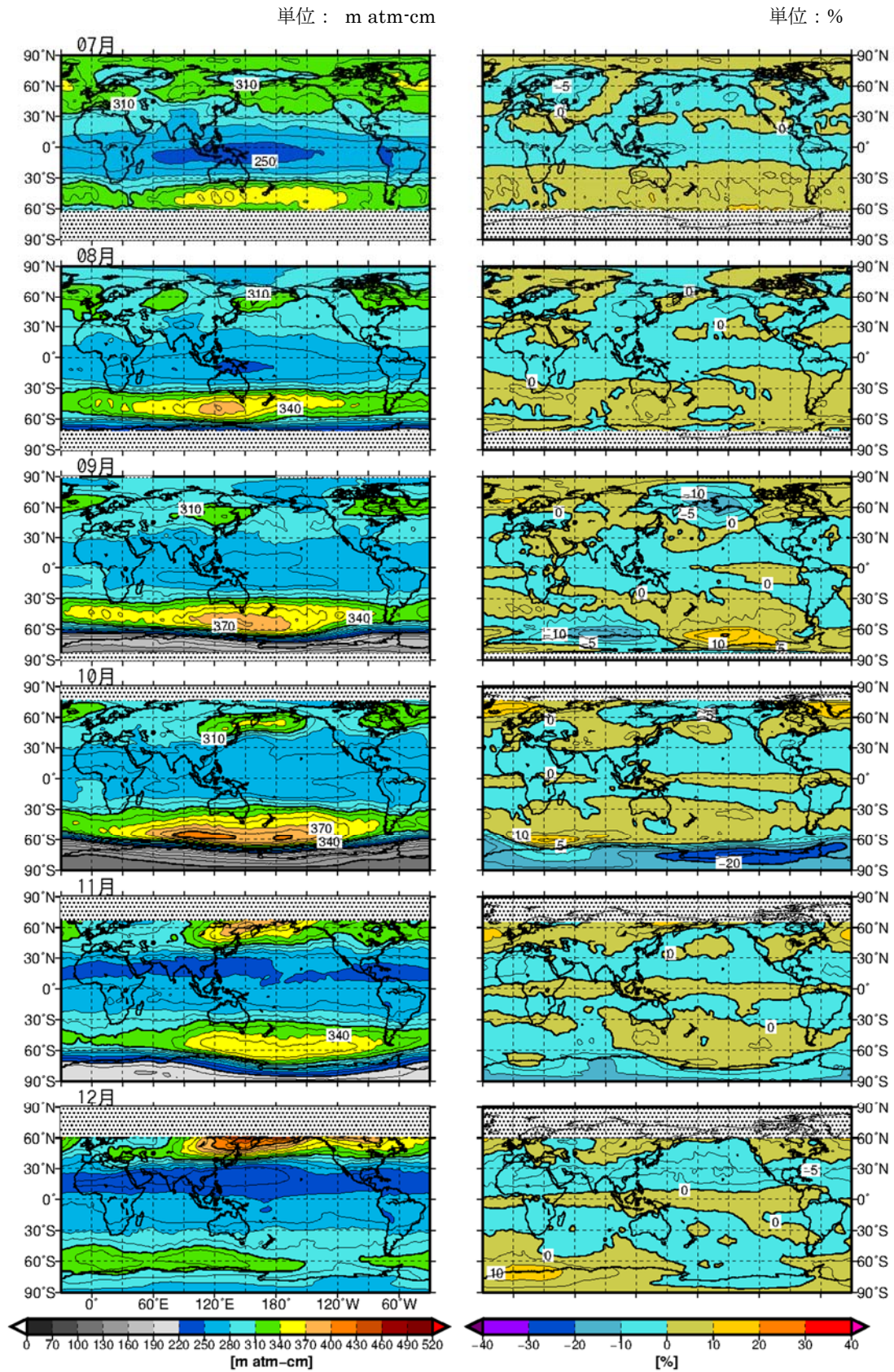


図1-資-3(2) 月平均オゾン全量・偏差(%)の地球規模の分布図(2018年7~12月)

(出典) 気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ(2018年)より

参考資料7. 1979～2018年の南半球の月平均オゾン全量分布（10月）

220m atm-cm以下のオゾンホール領域を点域で示しており、オゾンホールの経年変化がわかる。NASA及びNOAA提供の衛星データをもとに気象庁が作成した。図中の●印は南極昭和基地を表す。

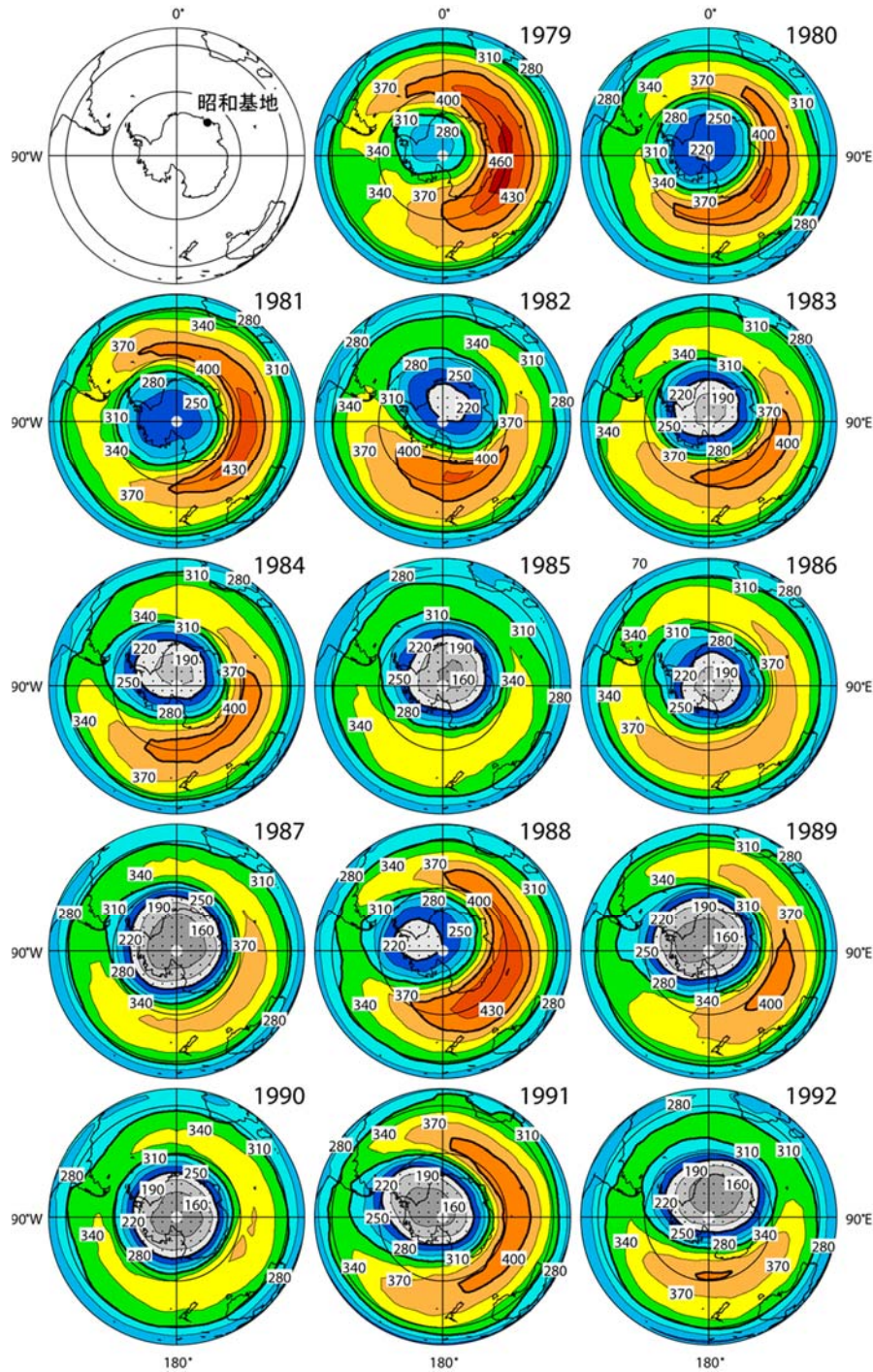


図1-資-4(1) 10月の南半球月平均オゾン全量分布図（1979～1992年）
 (出典) 気象庁提供データ

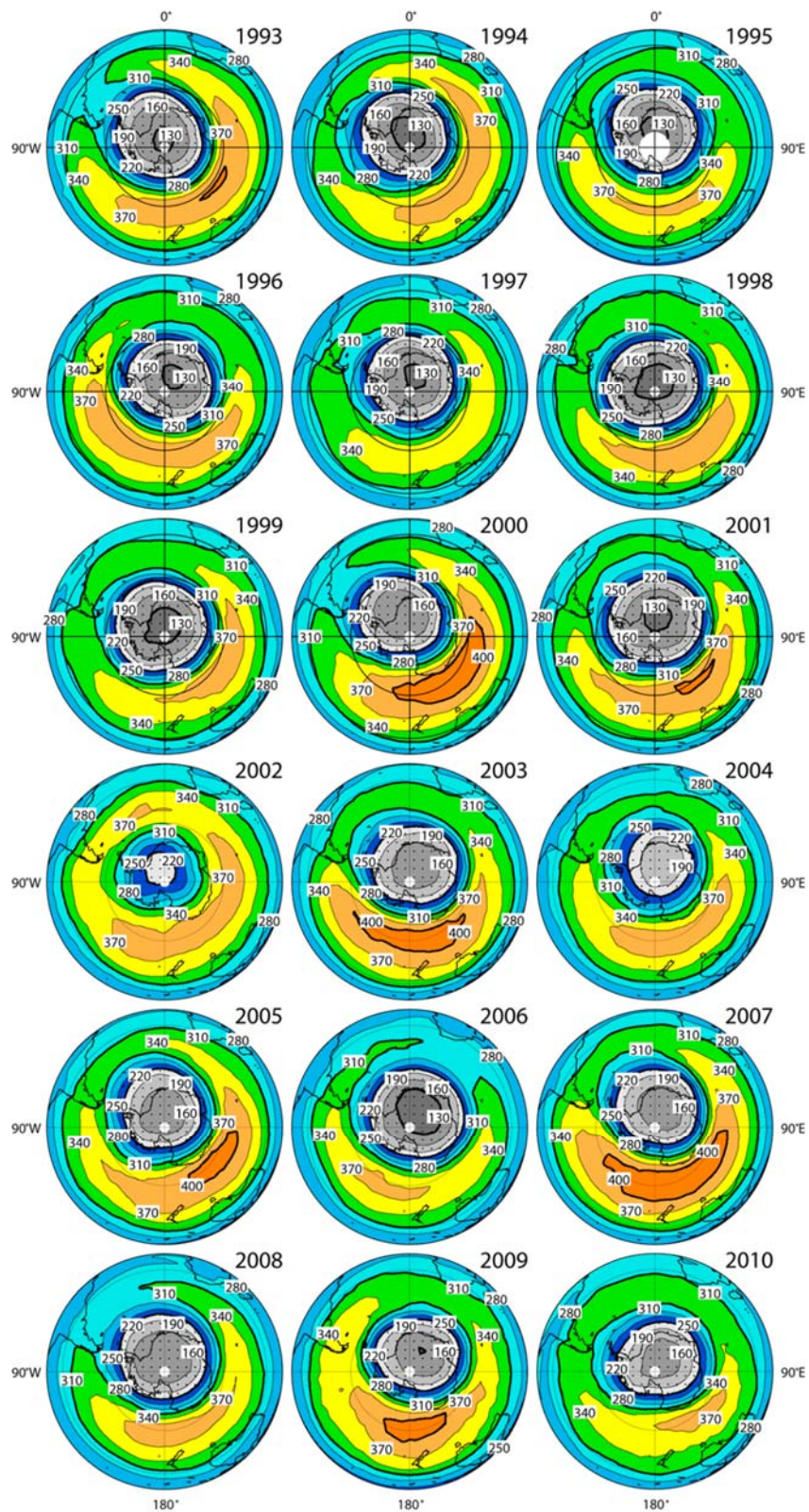


図1-資-4(2) 10月の南半球月平均オゾン全量分布図(1993~2010年)
(出典) 気象庁提供データ

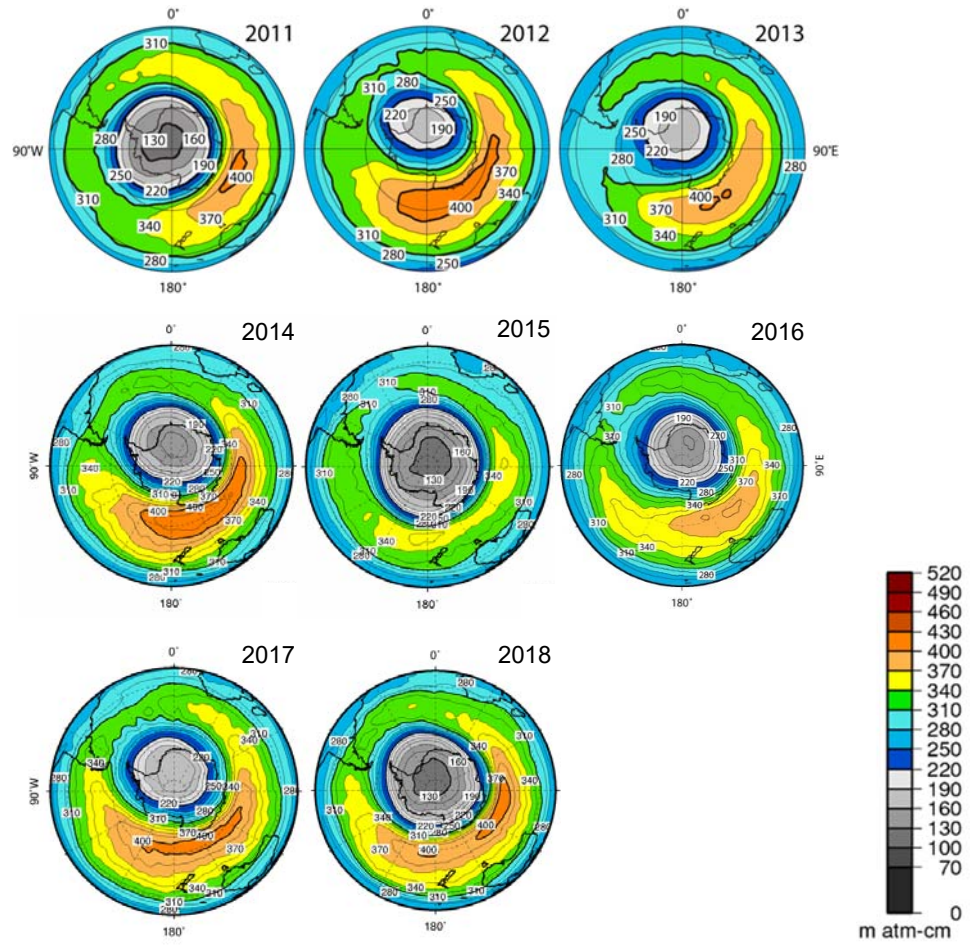


図1-資-4(3) 10月の南半球月平均オゾン全量分布図(2011~2018年)
(出典) 気象庁提供データ

参考資料8. 地上観測による南極域でのオゾン全量推移

南極昭和基地（●印）、ハレー（△印）、ベルナドスキ/ファラデイ（×印）、ロゼラ（□印）における2018年8～12月のオゾン全量観測値を図1-資-5に示す。また、図中にはオゾンホールを目安とする220 m atm・cmを破線で示した。

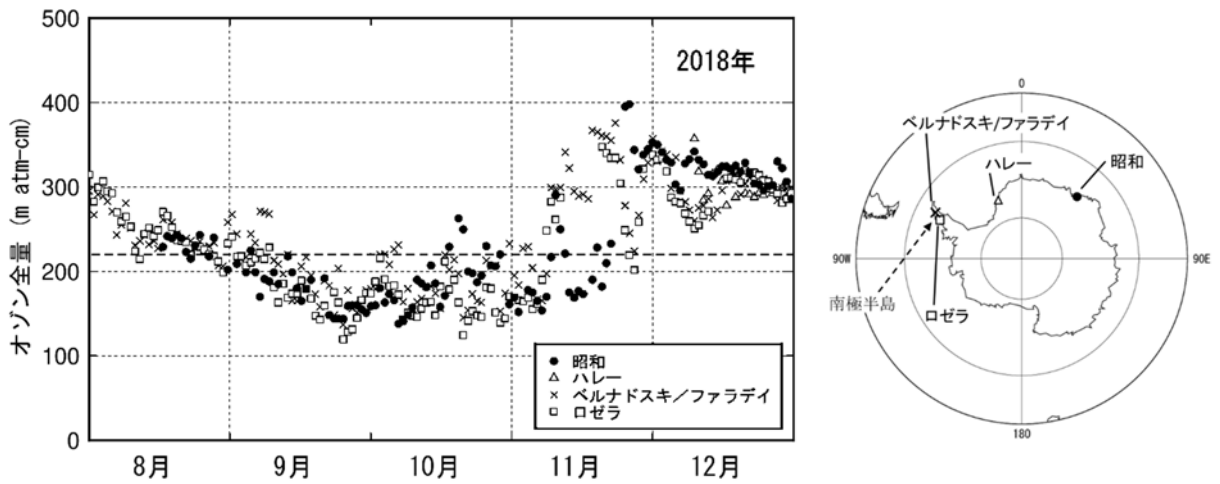


図1-資-5 南極域各国基地におけるオゾン全量の変化（2018年）
 （出典）気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ（2018年）より

参考資料9. つくばのオゾン分圧・規格化偏差の高度分布(2018年)

つくばにおける2018年のオゾン分圧の高度分布とその規格化偏差の推移を示す(図1-資-6)。

規格化偏差とは、参照値からの偏差が、標準偏差によって表される通常の変動の大きさと比較してどの程度大きいかを示す数値である。具体的には、1994～2008年のオゾン分圧の月平均値を参照値とし、月平均値の標準偏差によって2018年の各月のオゾン分圧の偏差を除した値を用いている。

規格化偏差図(右図)で1994～2008年の平均値からの差が+1を上回る場合を濃い灰色の領域(オゾン分圧が多い領域)、-1を上回る場合を薄い灰色の領域(オゾン分圧が少ない領域)として表示している。

オゾン分圧(左図)を見ると、1年を通して高度18～28km付近にオゾン分圧の高い層があり、中でも1～5月の高度18～24km付近は高くなった。また、2～4月は高度10km付近の低い高度まで、オゾン分圧の高い領域が広がっている。

オゾン分圧の高度毎の月別累年平均値からの規格化偏差(右図)をみると、6月以降、高度約22km以上で概ね負偏差となった。

前述の月平均オゾン全量(P38図1-3-17「2018年における月平均オゾン全量」)において「多い」となった2月と4月については、2月は高度約8～25kmで大きな正偏差とやや大きな正偏差が、4月は高度約20～30kmで正偏差が見られた。また「少ない」となった8、10、12月については、8月は約30kmより低い高度でやや大きな負偏差、10月は高度約20～30kmで大きな負偏差、12月は高度約10～32kmでやや大きな負偏差が見られた。その他の月の偏差の主な特徴としては、6～8月の高度約6kmより下層で大きな負偏差、7月の高度約16～20kmで大きな正偏差が見られることがあげられる。

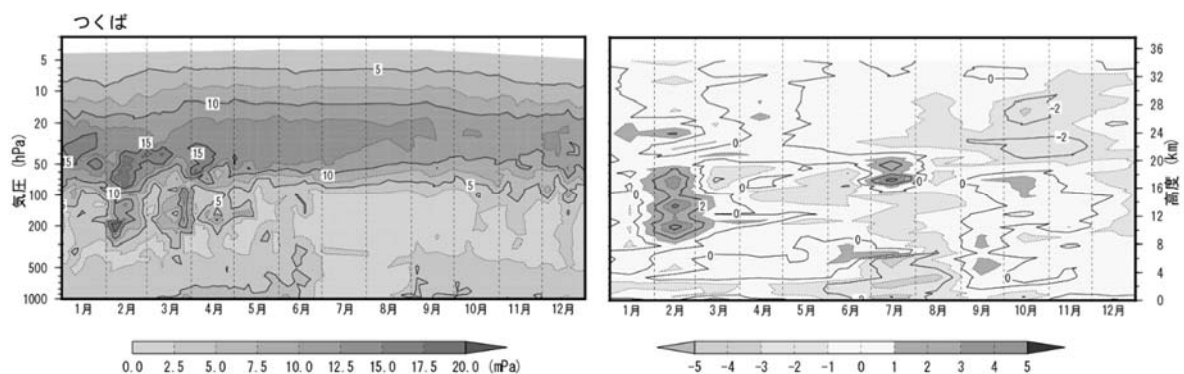


図1-資-6 つくばのオゾン分圧(左)と規格化偏差(右)の高度分布(2018年)

つくばのオゾンゾンデ観測によるオゾン分圧・偏差の高度分布図。オゾン分圧図(左)は個々の観測値を用い、規格化偏差図(右)は月平均値から作成。

札幌と那覇のオゾンゾンデ観測は2018年1月に終了した。

(出典) 気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ(2018年)より

参考資料10. 南極昭和基地のオゾン分圧・規格化偏差の高度分布（2018年）

南極昭和基地上空における2018年のオゾン分圧の高度分布とその規格化偏差の推移を示す（図1-資-7）。規格化偏差図（下図）で1994～2008年の平均値からの差が+1を上回る場合を濃い灰色の領域（オゾン分圧が多い領域）、-1を上回る場合を薄い灰色の領域（オゾン分圧が少ない領域）として表示している。

南極オゾンホール鉛直分布の特徴は、通常オゾン量が多い高度14～22km付近におけるオゾンが大きく減少することである。

2018年のオゾン分圧は、9月上旬に高度20～24km付近で顕著に低くなりはじめ、次第に低い高度へ広がり、9月中旬には高度24km以下のほぼ全ての高度で5mPa以下となった。その後、さらにオゾン分圧を下げながら、11月中旬まで低い状態が継続したが、11月中旬は高度24～28km付近で一時的にオゾン分圧が高くなった。11月下旬以降は、高度14～26km付近で急激にオゾン分圧が高くなった。

月平均値の規格化偏差（下図）をみると、8月は高度約20～28kmでやや大きな正偏差となったが、オゾン分圧が急激に低くなった9月に入ると、同高度の正偏差は解消した。9月、10月、11月は高度8km以下でやや大きな負偏差、12月は高度約6～20kmでやや大きな正偏差となった。

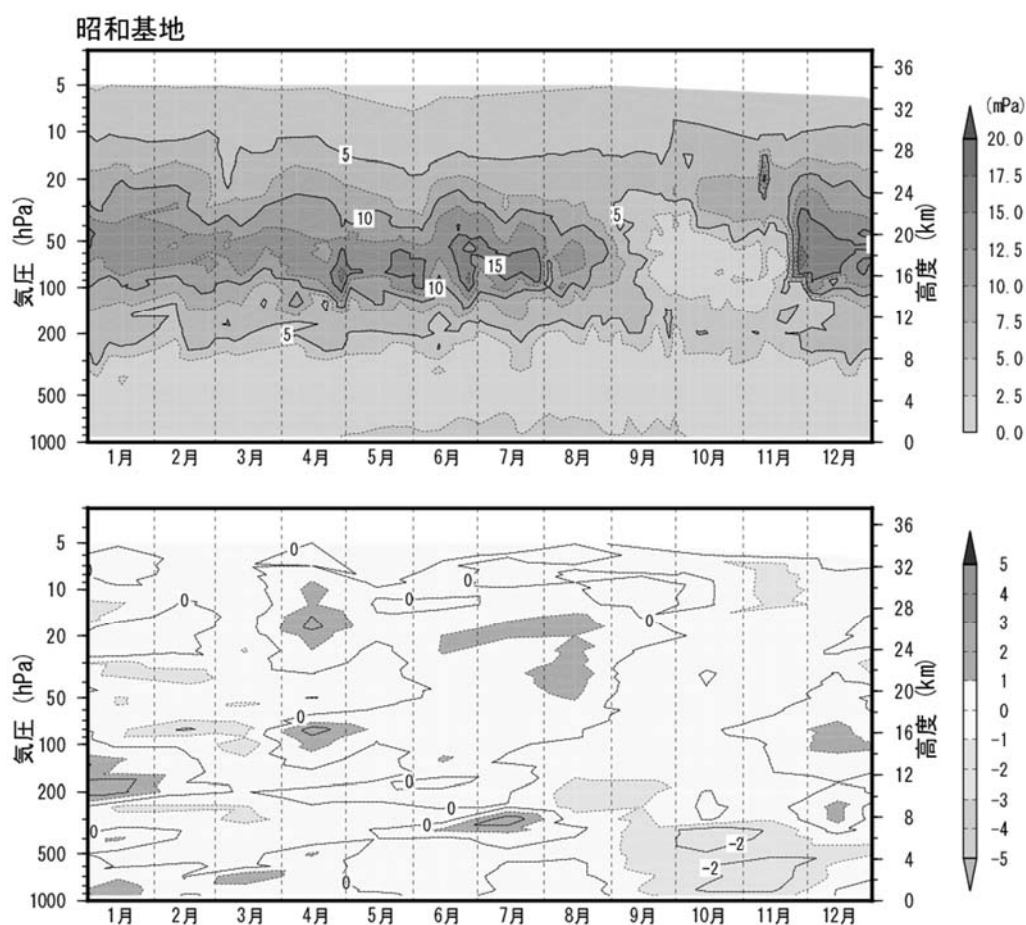


図1-資-7 南極昭和基地のオゾン分圧（上）と規格化偏差（下）の高度分布（2018年）

南極昭和基地のオゾンゾンデ観測によるオゾン分圧・規格化偏差図。オゾン分圧図（上）は個々の観測値を用い、規格化偏差図（下）は月平均値から作成。規格化偏差は月平均値の1994～2008年の平均値からの偏差を標準偏差で割った値。なお、観測データのない高度については、前後の観測で得られたオゾン分圧から内挿処理を行っている。（出典）気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ（2018年）より

参考資料 1 1. 成層圏数値モデルー化学気候モデルと化学輸送モデル

成層圏の注目する領域のオゾン量は、その領域の中での化学反応によって生成・消失するオゾン量並びに、他の領域からその領域に輸送されてくるオゾン量とその領域から他の領域に輸送されるオゾン量のバランスによって決まる。この内、化学的な生成あるいは消失の速度は、反応に関与する物質の濃度、成層圏エアロゾルが関与する場合にはエアロゾルの表面積・体積・組成、光が関与する場合は太陽光強度の波長分布に依存する。オゾン濃度・分布に影響するもう一つの要因である輸送量・輸送速度は注目している領域付近での風速分布やオゾンの濃度勾配に関連する。

オゾン濃度や分布に影響する化学反応や物質輸送の速度は、気温や圧力にも依存する。一方で、気温や圧力は、化学反応や大気の運動によってもコントロールされている。この様に成層圏での力学と化学は放射による加熱・冷却と密接に結びついている。そこで、オゾン層破壊を扱う成層圏モデルは、一般に次の概念図で示す様な構成・考え方に基ついて作られる。

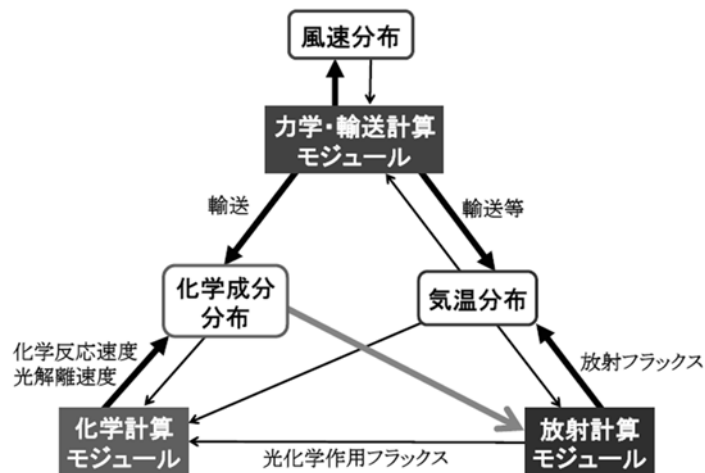


図 1-資-8 (成層圏) モデルの概念図
(出典) 永島達也ら 天気 49 巻 11 号 (2002) より

上記の概念に基づいた成層圏モデルは、大きくは、化学気候モデル (Chemistry-Climate Model : CCM) と化学輸送モデル (Chemical Transport Model : CTM) の 2 つに分類される。それぞれの特徴は次の通りである。

化学気候モデル：

化学成分の分布、気温分布、風速分布をモデル内で直接計算することで、例えば化学成分の量が増減→放射フラックスの変化→気温分布の変化→化学成分の生成量・消失量の変化、といった様なフィードバックを扱うことが可能であり、例えば CO₂ の増加に伴うオゾン層の応答などを議論する際に有効である。

化学輸送モデル：

物質輸送に係わる風速分布や気温分布を、気象観測値や客観解析データなどを利用して外部変数として与えて、化学成分分布などを計算する。例えばオゾンの生成・消滅に係わる化学プロセスを含む場合と含まない場合（トレーサー実験）との差から、化学プロセスによるオゾンの生成量・破壊量を議論する際に有効である。

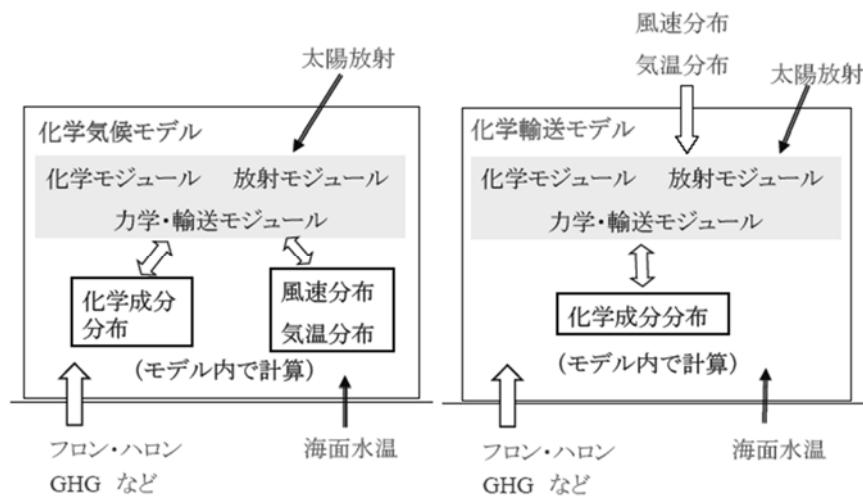


図1-資-9 化学気候モデルと化学輸送モデルの入力変数と予報変数の違い

外から中に向かって矢印で示された部分（「太陽放射」「風速分布・気温分布」「フロン・ハロン・GHG など」「海面水温」）は各モデルの入力変数であり、四角で囲った変数は予報変数である。

参考資料12. レーザーレーダー観測によるオゾン変動

各高度におけるオゾン変動

図1-資-10は、国立環境研究所オゾンレーザーレーダーによって測定した、1988年9月から2010年3月までの間の高度毎のオゾン濃度（数密度）変動をプロットしたものである。この図には、気象庁高層気象台においてオゾンゾンデによって観測されたオゾン濃度もあわせて示してあり、両観測データは一致している。

それぞれの高度レベルにおいて季節変動が見られるが、その特徴は高度によって異なっている。高度15km、20kmでは春に極大で夏から秋にかけて極小、30km、35kmでは夏に極大で冬に極小となっている。

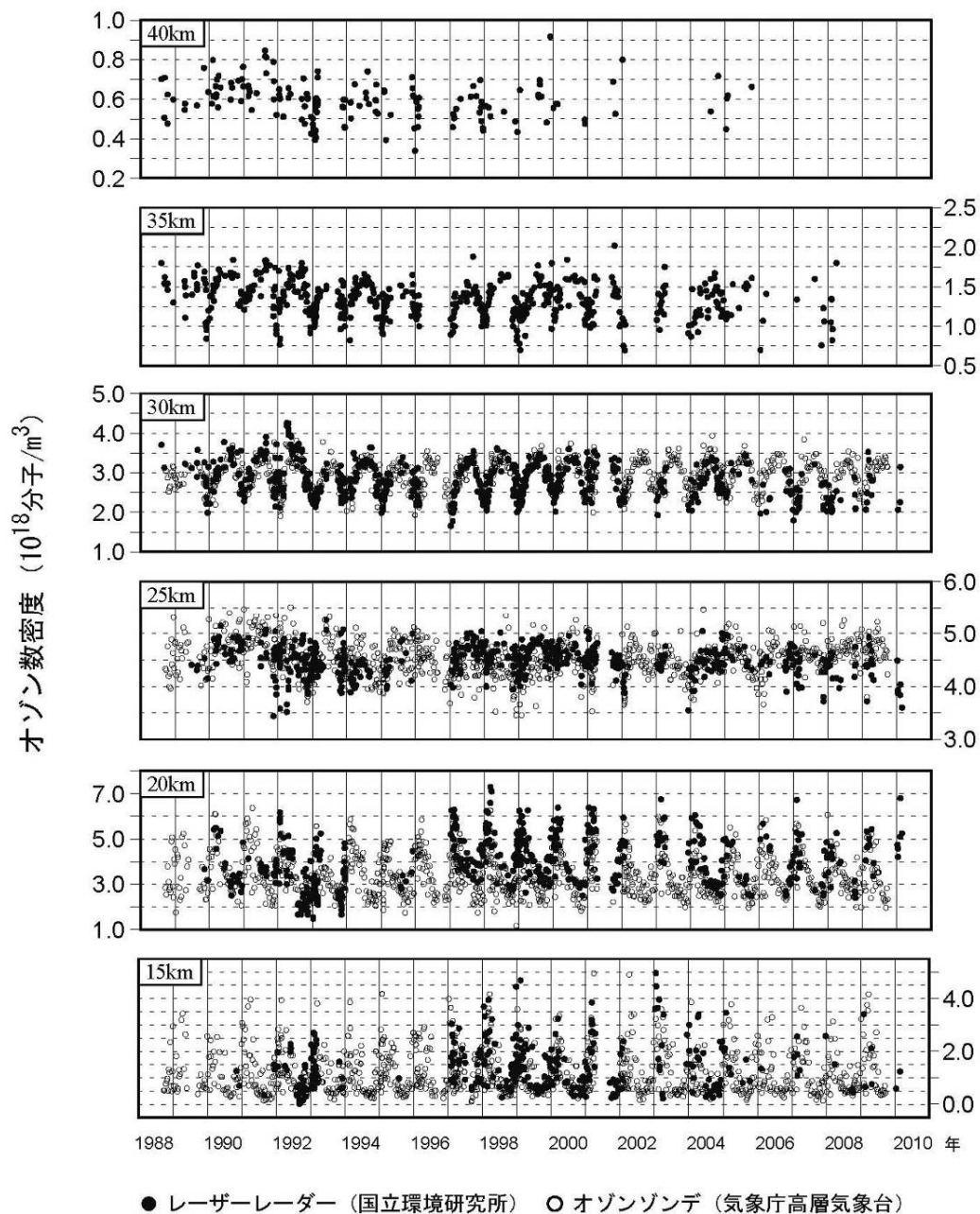


図1-資-10 各高度におけるオゾン変動（1988年9月～2010年3月）

国立環境研究所オゾンレーザーレーダーによって測定。気象庁高層気象台（茨城県つくば市）によってオゾンゾンデを用いて観測された値をともにプロットした。オゾンゾンデデータはWOUNDCのデータベースに集積されたものを用いた。なお、 10^{18} 分子/ m^3 のオゾン数密度は、成層圏の気温条件では約3mPaのオゾン分圧に相当する。（出典）国立環境研究所地球環境研究センター提供

高度 30～40km におけるオゾントレンド

図 1-資-11 における各高度のオゾン濃度の時間変化には、季節変動が強く表れており、QBO、太陽活動の影響のあることが分かっている。オゾン層破壊物質等によるオゾン層への影響を検討するには、まずこれらの周期的な自然変動を除去したオゾンの長期トレンドを求めることが必要である。そこでまず、オゾンレーザーレーダー及び衛星センサー SAGEII によって観測された 1988～2005 年の期間の各高度のオゾン濃度の各平均値を求め、この値でそれぞれの年の月平均オゾン濃度を除することによって、季節変動を除去したオゾン濃度比偏差を求めた。さらに、30～40km の高度について平均したオゾン濃度比偏差から QBO 及び太陽活動の影響を除去したオゾン濃度比偏差を求めた (図 1-資-11)。●がオゾンレーザーレーダー、□が SAGEII の値を示す。両者共に 1990 年代には減少傾向を示し、それ以降平坦化している。1988～1997 年末の間のオゾン濃度比偏差の減少トレンドは、オゾンレーザーレーダーについては $(-0.60 \pm 0.05) / \text{年}$ 、SAGEII については $(-0.52 \pm 0.04) / \text{年}$ であり大きな差はなかった。1998 年以降については両者共にほぼ平坦であり、有意なトレンドはなかった。

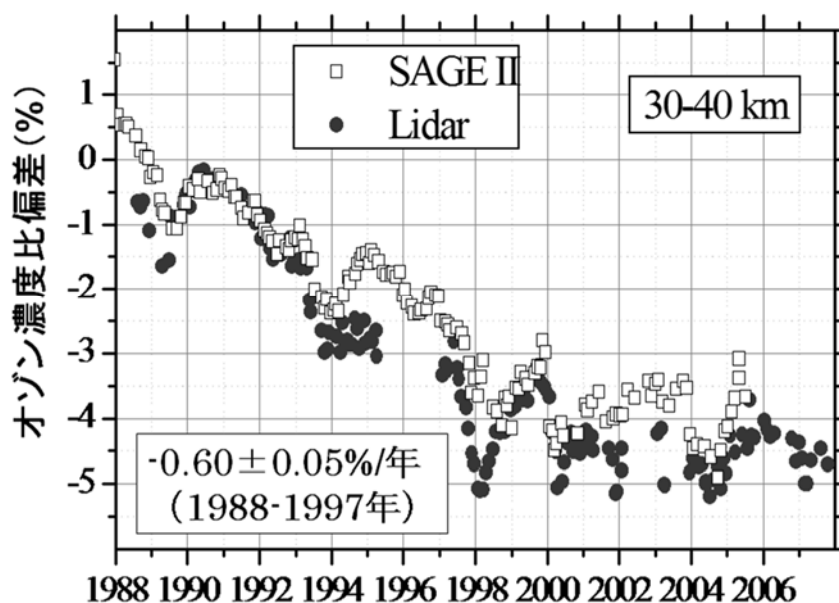


図 1-資-11 高度 30～40km のオゾン濃度比偏差 (1988～2005 年)

国立環境研究所オゾンレーザーレーダー及び NASA の衛星センサー SAGEII によって測定したオゾン濃度を基に作成した。図中の数値は国立環境研究所のオゾンレーザーレーダーによって観測した 1988 年 9 月～1997 年 12 月の間のオゾン濃度比偏差のトレンド

(出典) Tatarov et al., International Journal of Remote Sensing, Vol. 30, No. 15, 2009.より

日本の反転観測データの再評価への活用

気象庁によって実施されているドブソン分光光度計を用いた反転観測によるオゾン高度分布データの再評価・再解析が行われ、新しいデータセットが作成された。国立環境研究所のオゾンライダーデータは高層気象台によるオゾンゾンデ観測データと共に、再評価における誤差解析の際の参照データとして用いられた (Miyagawa et al., 2009)。

参考資料13. 解析に用いた衛星観測オゾンデータ*

衛星による観測データとしては、ニンバス7、メテオール3、アースプローブの3機の衛星のオゾン全量マッピング分光計（TOMS；Total Ozone Mapping Spectrometer）のデータと、オーラ衛星のオゾン監視装置（OMI；Ozone Monitoring Instrument）のデータを主に使用した。ニンバス7とメテオール3両衛星のデータについては、アースプローブ衛星に用いられている処理方法（ver. 8）で計算されたものを利用した。また、アースプローブ衛星のTOMSデータは2007年8月に公開された修正版を利用した。オーラ衛星のOMIデータについてはver. 8.5のデータに地上観測との差異がみられたため（図1-資-12）、2005年1月から2007年11月分まではver. 8を用いた。2007年12月以降はver. 8.5のデータのみしか入手できないためver. 8.5を使用している。ただし、メテオール3衛星以後アースプローブ衛星による観測が始まるまでの一部の期間、およびオゾンの長期変化に関連した解析の一部については、ノア衛星搭載のタイロス実用型鉛直サウンダ（TOVS；TIROS Operational Vertical Sounder）の高分解能赤外放射計による世界のオゾン全量データおよび太陽光後方散乱紫外線計（SBUV/2；Solar Backscatter UltraViolet）による世界のオゾン全量データを使用した。各データとその使用期間は表1-資-1のとおり。なお、本文中の図のキャプションでは、TOMSおよびOMIによるオゾン全量データを用いたことが明らかでない場合は、衛星・装置名は記載せず単に「NASA提供のデータをもとに気象庁で作成」とした。

なお、解析データとしては利用していないが、OMI ver. 8.5のオゾン全量のバイアス補正を行うために、NASAが作成したSBUV（ver. 8.6）Merged Ozone Data Setsを利用した（NASA, 2012）。

表1-資-1 解析に用いた衛星データ

米国航空宇宙局（NASA；National Aeronautics and Space Administration）
米国海洋大気庁（NOAA；National Oceanic and Atmospheric Administration）

衛星名	ニンバス7	メテオール3	アースプローブ	オーラ	ノア	ノア
国/機関	米国 /NASA	旧・ソ連	米国 /NASA	米国 /NASA	米国 /NOAA	米国 /NOAA
観測装置名	TOMS	TOMS	TOMS	OMI	TOVS	SBUV/2
期間	1978.11－ 1993.4	1993.5－ 1994.11	1996.7－ 2004.12	2005.1－	1995	1995

（出典）気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ（2018年）より

* 気象庁「オゾン層・紫外線の年のまとめ（2018年）」より引用、一部改変

衛星によるオゾン全量観測データの地上観測との比較

衛星データの長期的な安定性をみるため、TOMSおよびOMIによる観測値と、北緯30度から北緯60度の領域にある地上の観測地点における観測値との月平均値による比較結果を図1-資-12に示す。これによれば、1979～1993年のニンバス7衛星のTOMSデータは、地上観測値に比べて約1%値が高い傾向である。1993年5月以降のメテオール3およびアースプローブ衛星のTOMSデータは、ばらつきが大きく、概ね地上観測値に比べて低い。一方、2005年以降、TOMSの後継としてOMIのデータを利用しているが、バージョン変更後のデータであるOMI ver. 8.5のデータは、ばらつきは少ないものの、-2～-1%程度の地上観測値との偏差がある。ver. 8.5とver. 8のデータの存在する期間（2005年1月～2007年11月）で、帯状平均した緯度ごとのデータについて比較すると、両者のオゾン全量の差は、緯度や月によって大きさが一致する傾向がある（「オゾン層観測報告：2008」付録1-2図A1-5参照）。この期間のデータから月別・緯度別に両者間のバイアス補正値を算出した。しかし、OMI ver. 8.5のデータと北半球中緯度の地上観測との差の傾向が、2007年12月以後はそれ以前より差が小さくなっており、傾向が異なっている。このため、NASAが作成したSBUV (ver. 8.6) Merged Ozone Data Sets（以下、マージデータとする）の帯状平均値を用いてバイアス補正値の調整を行った。具体的には、2005年1月～2007年11月のマージデータとOMI ver. 8の差の平均と、2007年12月～2011年のマージデータとOMI ver. 8.5（バイアス補正済）の差の平均が同一となるように、2007年12月以降のOMI ver. 8.5（バイアス補正済）データを緯度毎にさらに補正した。本報告では、緯度帯別の長期的な変化傾向を解析する際には、2007年12月以降のver. 8.5のデータにマージデータで調整したバイアス補正を適用した。また、1993年5月～1994年11月の衛星データ（メテオール3衛星によるオゾン全量）は、オゾン全量の地上観測値からの差のばらつきが大きいため、長期変化傾向の計算から除外している。

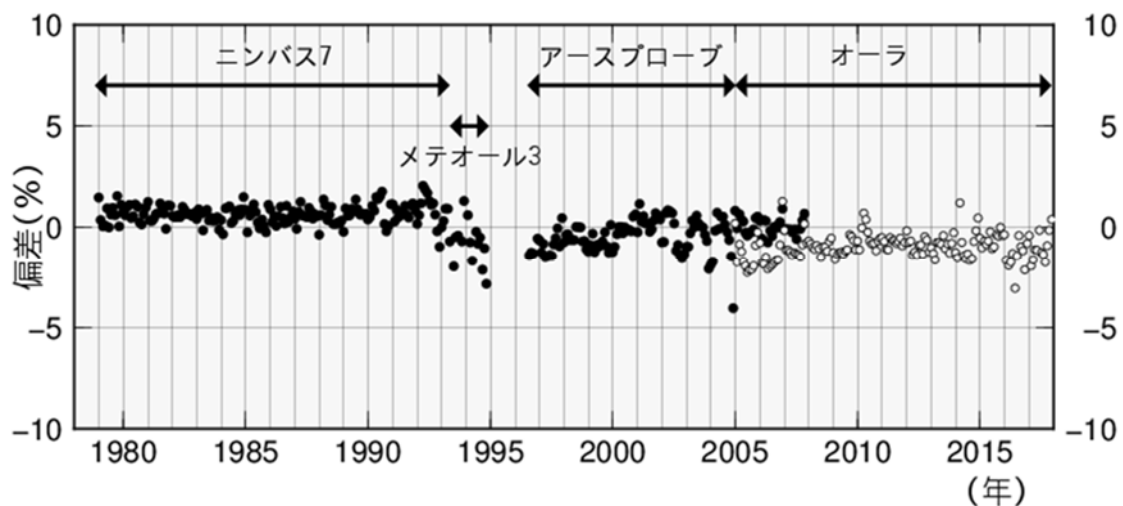


図1-資-12 衛星データと地上観測データの比較

北半球中緯度帯（北緯30度～60度）のTOMSおよびOMIによる観測値（月平均値）と地上観測値との偏差（%）の推移。地上の観測地点に対応する衛星データを求め比較した。オーラ衛星期間の●はOMI ver. 8、○はOMI ver. 8.5のデータ。各月の比較地点数は20～60地点。

（出典）気象庁 オゾン層・紫外線の年のまとめ（2018年）より

参考資料14. オゾン層の日周期変動

(その実態・メカニズムとトレンド推定への影響)

概要

成層圏（高度 10-50km）オゾン層は人体に有害な紫外線を吸収すると同時に、地球気候形成に極めて重要な役割を果たしている。これまで様々な時間スケールのオゾン量変動が研究されてきたが、地球大気の基本的な周期性である日周期変動（一日の中でオゾン量がどのように変化するか）については観測例がほぼ皆無であった。

その折、SMILES (Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder: 超伝導サブミリ波リム放射サウンダ)が国際宇宙ステーション日本実験棟(JEM: Japanese Experiment Module)「きぼう」の船外プラットフォームに取り付けられ、大気微量成分観測を実施した（期間：2009年10月-2010年4月）。SMILESは(a)超高精度観測 (b)一日のうち異なる時刻を観測可能、という日周期変動観測に不可欠な二大長所を併せ持つ。

SMILES 観測データを用いた研究からオゾン日周期変動のグローバルパターンを世界で初めて高精度で検出⁽¹⁾し、数値シミュレーションの結果も使用してその変動メカニズムを解明⁽²⁾した。これにより、観測・理論に裏打ちされた成層圏オゾン日変動の描像を世界で初めて得ることができた。

(1)オゾン日周期変動のグローバルパターンの検出

図1-資-13左に示すように、成層圏オゾン量は高度によって異なる日周期変動パターンを示し、その変動幅は平均値に対して最大8%程度に達することがわかった。これはオゾン層破壊・回復に伴う長期変化（数%/10年）と同程度の大きさである。また、カラムオゾン量（ある地点の上空に存在するオゾンの総量）も1%程度の日周期変動を示すこともわかった。なお、観測とは独立な化学輸送モデル（数値シミュレーション）でも同様の特徴が再現されている（図1-資-13右）。

(2)変動メカニズムの解明

従来、成層圏オゾン日変動は主として光化学効果（太陽光の日周期変動による光化学変化）によって生じると予想されていたが、化学輸送モデルの解析により、これらに加えて力学効果（上昇流/下降流の日周期変動によるオゾンの鉛直輸送効果）も重要であることがわかった。

オゾンアセスメントレポートにおける本成果の位置付け

上記の成果は「2014年科学評価パネル（WMO, 2014）」の2.3.1節「オゾン日周期変動とそれらが長期トレンド推定に与える影響」において、オゾン量変動に関する新たな知見として取り上げられた。同時に、日周期変動の実態解明は「オゾン長期トレンド推定の精度向上の鍵」としても注目されている。すなわち、オゾンの長期トレンドを推定するにあたって用いられる衛星観測のほとんどは（SMILESとは異なり）一日の特定の時刻にのみ観測を行

う。したがって、観測時刻に偏りのあるデータを扱う際には、日周期変動を考慮した補正を行う必要がある（図1-資-14参照）。この問題は従来から指摘されてはいたものの、日周期変動の実態が明らかでなかったため等閑にされてきた。SMILESの精密観測によってもたらされた本成果は、この問題を解決する突破口を開くものである。成層圏におけるトレンドは「数%10年」のオーダーであり、日周期変動補正の効果は無視できない。アセスメントレポートへの掲載は、今後これらの効果を考慮したより精度の高いトレンド推定を促すものと理解される。

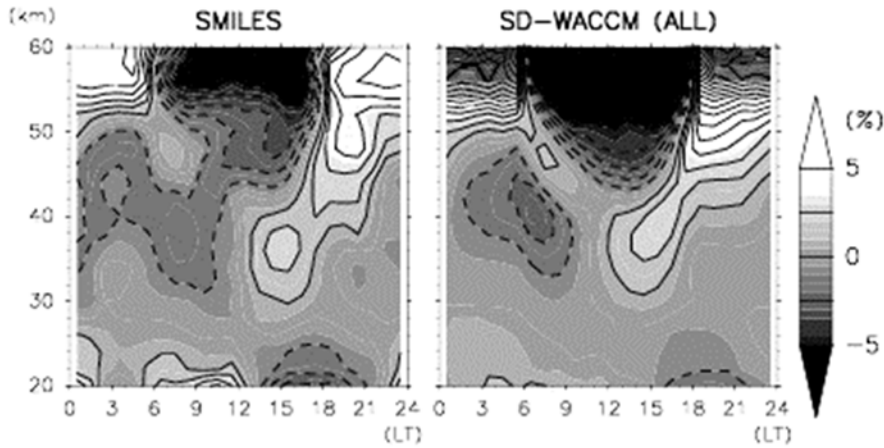
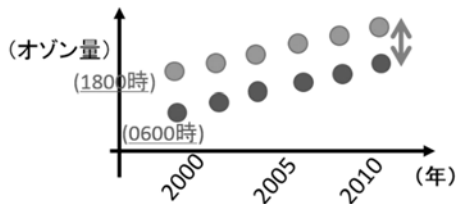


図1-資-13 熱帯（10°S-10°N）におけるオゾン量の日周期変動

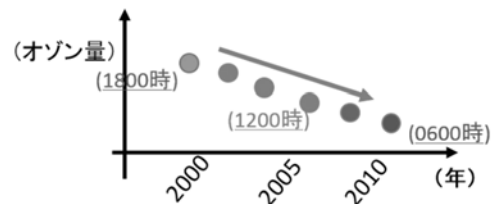
単位：日平均値に対する割合（%）の時刻（横軸）－高度（縦軸）断面図。（左）SMILES観測結果、および（右）化学輸送モデル（WACCM）によるシミュレーション結果。Sakazaki et al. 2013に基づく。同図がWMO（2014）にも掲載された。

（出典）京大大学生存圏研究所坂崎貴俊氏提供データ

[CASE 1] 観測時刻差によるバラつき補正



[CASE 2] 観測時刻の経年変化



[CASE 3] 異なる衛星測器データの統合

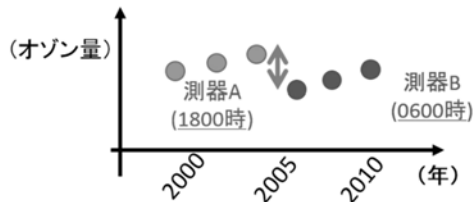


図1-資-14 オゾン量およびその長期トレンド推定に日周期変動が影響を与える例

（CASE 1）特定の時刻にのみ観測を行う衛星データ（例：太陽掩蔽観測）を使用する際、日周期変動による観測量のバラつきを補正することが必要（Sakazaki et al., 2015）。（CASE 2）観測する時刻が経年変化する衛星データ（例、SBUV(2)）を使用する際、日周期変動による”偽の経年変化”の除去が必要。（CASE 3）異なる衛星観測データを統合して一つの時系列を構築する際、観測時刻差によるデータ補正が必要。

（出典）京大大学生存圏研究所坂崎貴俊氏提供データ

参考資料15. ブリュウワ・ドブソン循環

空気は、平均的には、熱帯において対流圏から成層圏に入って上昇し、中高緯度において下降して対流圏に戻る。この全球大気循環の存在は、Alan Brewer と Gordon Dobson による水蒸気とオゾンの観測によって、半世紀以上昔に初めて推定された。これが名前の由来である。成層圏内における下降流は、オゾンの豊富な中部上部成層圏の空気を下部成層圏に輸送する主要なメカニズムであり、これが特に冬季から春季にかけてのオゾン全量の大きな南北勾配を作り出している。最近の研究により、ブリュウワ・ドブソン循環はふたつの異なる経路に分けて理解することが適切であることが分かってきた(図1-資-15)。ひとつは shallow branch (浅い経路) と呼ばれるもので、下部成層圏内を熱帯から上昇しつつ極方向へ流れて亜熱帯から中緯度において下降するものである。もうひとつは deep branch (深い経路) と呼ばれるもので、上部成層圏から中間圏にまで至ったのちに下降し中高緯度にまで至る流れである。後者の方は成層圏滞在時間が数年から10年と非常に長くなる。

大気微量成分の分布を決める輸送過程としてのブリュウワ・ドブソン循環は、対流圏で生成し上方伝播してくるさまざまな大気波動の碎波により駆動される残差子午面循環、地球規模のロスビー波等による水平混合、乱流拡散の三者があわさったものであると言える。水平混合は特に中緯度で重要である。また、成層圏と中間圏の気温分布は、オゾン、二酸化炭素、水蒸気分布に影響を受けた放射伝達過程により決まる気温分布が、ブリュウワ・ドブソン循環に伴う熱力学過程(上昇域で降温、下降域で昇温)により変調を受ける形で決まっている。

地球温暖化の進行に伴い、ブリュウワ・ドブソン循環は加速することが多くの気候モデルにより予測されている。その主な原因として、温暖化により亜熱帯偏西風ジェットが強化かつ上方変位し、その結果ロスビー波の碎波による摩擦力がより高高度、より赤道側で強化されるためであると議論されている。ただし、モデル内でパラメタ化されている山岳波とそれ以外の波とのトレンドへの貢献度の違い、定常波(stationary waves)と非定常波(transient waves)との貢献度の違いなどについて、モデル間で定量的な違いがあり、今後さらなる研究が必要である。ブリュウワ・ドブソン循環の加速により、下部成層圏のオゾンは熱帯で減少し中高緯度で増加することが予想される。さらにこうしたオゾンの変化が、放射過程、気温、東西風分布の変化を通して、波と平均流の相互作用過程を変化させ、ブリュウワ・ドブソン循環に変化をもたらすと考えられる。

観測によるブリュウワ・ドブソン循環の長期変化の検出は容易ではない。その理由は、長期変化はあっても小さいため自然変動との区別が難しいこと、ブリュウワ・ドブソン循環の直接測定は不可能で間接的にしか見積もることができないことである。とはいえ、近年、様々な気温観測データセット、準二年振動の振幅、オゾンや水蒸気や他の様々な化学種の観

測データ、二酸化炭素や六フッ化硫黄の観測データに基づいた大気年代（age of air、熱帯対流圏界面を通過してからその地点に至るまでの時間）の推定値、様々な再解析データなどを用いて、ブリューワ・ドブソン循環の長期変化が見積もられてきている。その結果、shallow branch のうちの熱帯の上昇流については複数、異種の観測データから加速傾向にあることが分かっており、これは気候モデルの結果とも整合的である。いっぽう、deep branch、中部上部成層圏については観測データにより結果はまちまちであり、不確かさが大きい。

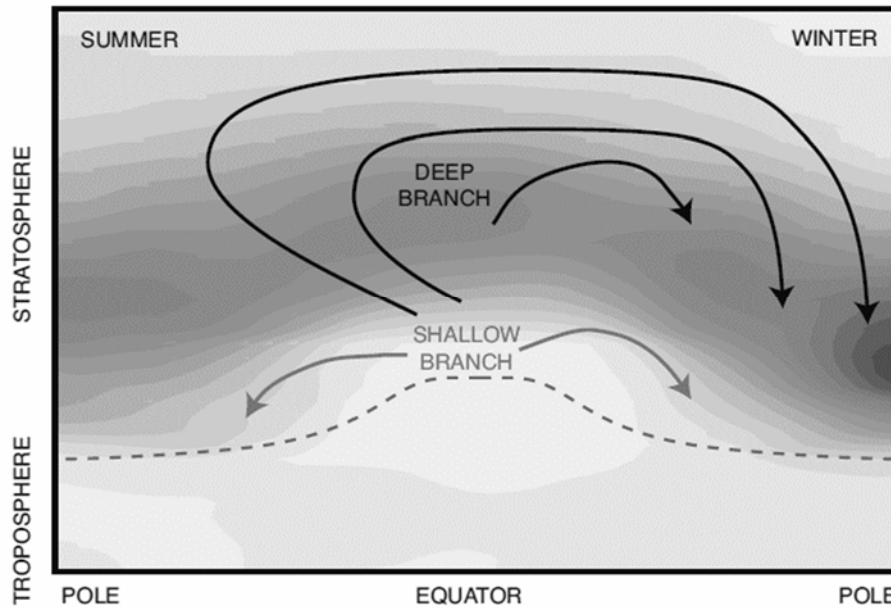


図1-資-15 ブリューワ・ドブソン循環のふたつの経路、浅い経路（shallow branch）と深い経路（deep branch）の模式図。

横軸は緯度、縦軸は高度。夏至・冬至の時期の様子。カラーで、北半球冬季の東西平均したオゾン濃度（分圧）を示す（濃い色ほど濃度が高い）。また、点線で、対流圏界面の位置を示す。

（出典）Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014（WMO, 2014）