

## A-3 衛星利用大気遠隔計測データの利用実証に関する研究

### (7) 衛星データを用いた、3次元化学輸送モデル (REPROBUS) によるオゾン層破壊に関する研究

環境省国立環境研究所

地球環境研究グループ衛星観測研究チーム  
エコフロンティアフェロー

中島英彰

Dr. Franck Lefèvre

平成 11~12 年度予算額

2, 000 千円)

(平成 12 年度予算額

1, 000 千円)

[要旨] 極成層圏雲 (PSC) は、南北両極域の冬季において、12~30km の高度に形成される。最近では北極域の冬季に観測される、南極の「オゾンホール」と同様の現象、及びその後のオゾン破壊において、この雲が重要な役割を果たしていることがよくわかってきた。しかしながら、その粒子の物理的性質だけでなく、PSC の生成メカニズムについては、まだよくわかっていない。この不明点を明らかにしていくことは、その発生と今後のオゾン層への影響を予測するうえで重要である。本研究では、日本の環境庁が開発した ADEOS 衛星搭載 ILAS センサーによる観測結果を解析するために、成層圏化学の現時点での最高の技術水準の 3次元モデルを用いた。特に、ILAS による硝酸 ( $\text{HNO}_3$ ) の鉛直プロファイル、PSC の組成に関する情報、及びそれが窒素酸化物の鉛直分布に及ぼす影響を導き出すために、モデル計算結果と比較検討した。

[キーワード] 成層圏、オゾン、硝酸、極成層圏雲、脱硝

#### 1. はじめに

PSC は、冬季及び春季に南北両極域において起こる、オゾン破壊プロセスで重要な役割を果たしていることがわかってきた。PSC の表面で起こっている非均質反応は、主な塩素貯蔵庫である  $\text{HCl}$  や  $\text{ClONO}_2$  を、 $\text{Cl}_2\text{O}_2$  あるいは  $\text{BrO}$  も含む触媒サイクルを通して、オゾンを急速に破壊する活性塩素  $\text{Cl}$  や  $\text{ClO}$  に変える。PSC は、15~20km の成層圏低温下 (一般的に、195K 以下) で発生する。したがって、極域オゾン破壊の幅は、毎冬固有の気象と密接に関連している。ガス相の窒素酸化物 ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) 濃度の減少も、オゾン破壊の度合いを決定する重要な要素である。 $\text{NO}_x$  の減少は、PSC 表面の  $\text{NO}_x$  の硝酸 ( $\text{HNO}_3$ ) への転換による一時的なもの、あるいは沈降粒子による  $\text{HNO}_3$  の不可逆的な除去による恒久的なもの、のどちらかである可能性がある。北極では、気温は沈降が起こる閾値に近いいため、脱硝は潜在的に重要であると考えられており、この地域で認められる冷却傾向に引き続いて、将来ますます重要な役割を果たすであろう。それゆえ、現在のモデルに、将来のオゾン層発生の確かな予測を提供できる、現実的な脱硝プロセスの説明を含むことが重要である。本研究で、我々は地球規模の 3次元化学輸送モデルを用いて、極成層圏雲の組成と脱硝の問題を調査した。モデルには、簡略だがフレキシブルな PSC 粒子の処理を含む。これによって、我々は雲の異なった組成シナリオを定義し、さまざまな仮説をテストすることができた。

アプローチを実証するために、我々はモデルの結果と、日本の環境庁によって開発された ILAS (改

良型大気周縁赤外分光計)の観測 (Sasano et al., 1999) とを比較した。この計器は、1996 年の 8 月に、極軌道衛星 ADEOS プラットホームに搭載され、宇宙に打ち上げられた。ILAS や他のセンサーを搭載した ADEOS は、1997 年 6 月 30 日まで無事に役目を果たした。ILAS は、その 11 か月の寿命の間に一日に約 14 回、オゾンその他、何種類かの微量気体成分の観測に加え、高緯度での  $\text{HNO}_3$  の鉛直プロファイルの観測データを提供した。ILAS のデータは、唯一の継続的な、高分解能の、この期間の  $\text{HNO}_3$  計測の供給源であり、それゆえ、脱硝プロセスに対する我々の知見をテストする、貴重な機会を提供してくれた。本研究で用いた ILAS データ処理アルゴリズムは、5.12 版である。

## 2. 研究目的

Reprobus は、1992 年から我々が開発してきた 3 次元化学輸送モデルである (Lefèvre et al., 1994 参照)。これは、55 の化学種あるいは化学族を含む総合的な化学的手法を使って、成層圏と対流圏上部の化学過程を説明するものである。化学モジュールは、150 以上のガス相と光分解反応を算出する (DeMore et al., 2000)。光分解率は、高度関数、太陽の天頂角、オゾン気柱全量、アルベドとして表される 4 次元ルックアップ表を用いて、時間段階及び太陽で照らされた格子点ごとに計算される。

Reprobus によって計算される 55 種のうち 40 は、何らかの 3 次元の風データセットに結合される可能性のある、セミラグランジュ輸送コードによって、明確に輸送される。輸送されたトレーサには、一般に低成層圏で長寿命種 (例えば  $\text{N}_2\text{O}$  あるいは  $\text{HCl}$  など) であるだけでなく、暗闇でかなり寿命の長い、より不安定な組成物 ( $\text{OCIO}$  あるいは  $\text{Cl}_2\text{O}_2$ ) がある。

非均質化学理論体系は、形成すると考えられる極成層圏雲粒子の大半を取り扱う。したがって、 $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  二元液滴や  $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  三元液滴の平衡組成や容量を計算するために、 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{H}_2\text{SO}_4$  の温度や総量の関数として、解析式 (Carslaw et al., 1995) を用いるような、氷または硝酸三水和物 (NAT) 結晶のような固体粒子、あるいは液体粒子など、さまざまな PSC 形成シナリオを定義することができる。ルーチンは、成層圏液体エアロゾルの、最も重要な非均質反応率を計算するために、可溶性種である  $\text{HCl}$ 、 $\text{HBr}$ 、 $\text{HOCl}$ 、 $\text{HOBr}$  の水性相濃度も計算する。

沈降率は、粒子の各種類ごとに、大きさの関数として計算される。一般に、液体粒子は、著しい減少速度に達するほど、大きくはならない。したがって、その沈降は無視される。これは固体粒子には、当てはまらない。というのは、固体粒子は、氷の結晶が 10 ミクロン以上の大きさになると、1 日当たり数キロメートルの鉛直落下スピードに達するからである。NAT 粒子の沈降は、モデルの  $\text{HNO}_3$  の鉛直分布にも影響を与える。一方、氷の結晶の沈降は、 $\text{HNO}_3$  と  $\text{H}_2\text{O}$  分布の両方に影響を与える。それゆえ、モデルの脱硝 (及び脱水) 振幅は、固体粒子の量と大きさに大きく左右される。これらの粒子の凝縮と気化に別のシナリオを仮定することは、モデルによって予測される成層圏の脱硝に大きな影響を与えることになる。

我々の行ったすべての実験において、Reprobus は、ECMWF で 6 時間ごとに解析される、温度と風のフィールドに結合される。本研究に使用した版には、地上から 10hPa までの 31 レベル、及び 2 度経度ごとに 2 度緯度の水平分解能がある。1999 年の我々の研究と比較した改良点は、上部成層圏及び熱帯圏界面地域のより現実的な  $\text{H}_2\text{O}$  フィールドを入手するために、110hPa 圧力までの ECMWF 水蒸気解析も利用していることであるが、モデルの詳細な物理的処理 (例えば、深い対流、沈殿) が行われていないために、問題が生じている可能性がある。

### 3. 研究方法

この作業の次に行う手順は、極成層圏雲の組成に対する、1996年～1997年の北極域冬季3次元シミュレーションを行うこと、及び $\text{HNO}_3$ ガス相の除去と脱硝の点で、その影響を調べることであった。次に、ILASによって観測された硝酸量と比較することにより、最も可能性のあるモデル結果シナリオを選び出した。

#### (1) 3次元モデルのコーディングとインストール

我々の作業の第1段階は、モデルのセットアップを完了させること、及び積分が行われるNIESのNEC/SX-4スーパーコンピュータに、コードをインストールすることであった。プロジェクトに用いられるREPROBUSの版のコーディングは予定通り完了し、SX-4で稼働させることができた。この版には、シミュレーションの間に、ILAS計測と最も空間/時間的に一致するモデル・プロファイルを抽出する、特殊なサブルーチンがある。このモデルの最新版に必要なとされるCPU時間は、1日の積分当たり約750秒である。

対流圏の、より現実的な水蒸気フィールドを得るために、我々は欧州中期予報センター(ECMWF)からNIESに、1996年12月～1997年3月期をカバーする、一連の新しい6時間ごとの地球解析を移転した(現在では、風、温度、表面圧力と共に個別の湿度も含む)。

#### (2) 化学的初期設定

EFF研究の大部分は、3次元積分の化学的初期設定の改良に充てられた。我々の研究において、硝酸全球分布の初期値は、ILAS観測とモデルによって計算された $\text{HNO}_3$ の比較によって、PSCの発生と脱硝の診断に用いられるのと同じくらいに、特に重要である。以下の3次元モデルの初期設定の2つのオプションについて、研究を行った。

##### ① ILASによる初期設定

このオプションには、モデルを以下のシミュレーションで比較するものと、定量的に一致する初期値を用いるメリットがある。しかし、ILASの地理的カバーは、計測が単一緯度線に沿ってのみ行われるために、地球的規模とはほど遠い。この制約を克服するために、大気と同様の動的な状態のグリッド点の値を決定する、各ILAS計測に対応付けられた気象情報を利用することが可能である。この方法は、Lary et al. (1995年)によって説明された。また、この方法には、ポテンシャル渦度等価緯度(EQL)-温位空間への写像トレーサ・フィールドがある。EQLは、所与のシータ表面上の、所与のポテンシャル渦度積分路内に密閉された、領域を考察することで計算された。このポテンシャル渦度積分路上の各点に割り当てられたEQLは、そのポテンシャル渦度積分路として同じ領域を囲む、緯線の緯度である。こうして、ILASによる硝酸観測は、EQL関数及び温位の座標として写像され、1996年12月20日～1997年1月5日の期間の平均値を取った。ILAS計測は、その期間の64～65N緯度帯内に限定されていたが、渦度追跡座標系としてのEQLの利用によって、30N～90Nの緯度を計測することができる。

次の段階は、所与の気象状況に対するREPROBUSの3次元グリッドの各点に、これらの計測値を割り当てることである。初期設定に選択されたデータは、1997年1月3日であった。ポテンシャル渦度は、その日に計算され、一連の等温位レベルに加えられた。その後、各等温位レベルの積分路内



の領域が計算され、等緯度 EQL に変換された。ILAS 観測値は最終的に、鉛直内挿を行った後、各グリッド点に割り当てられた。というのは、Reprobus が圧力レベルを利用するのに対して、ILAS 観測値はポテンシャル温度座標内に入れられるからである。

例として、図 1 は 1997 年 1 月 3 日の、ILAS 計測による 500K 表面に再構築された  $\text{HNO}_3$  フィールドを図示している。熱帯地域は未だに定義を与えられていない（それゆえ、帯状気候平均に満ちている）が、半球の大部分は再構築法で初期設定されることがわかる。計算されたフィールドが、ILAS と定量的に一致するだけでなく、その日の大気状態と動的にも一致する。このため、シミュレーション初期の「スピニアップ」効果が減少する。

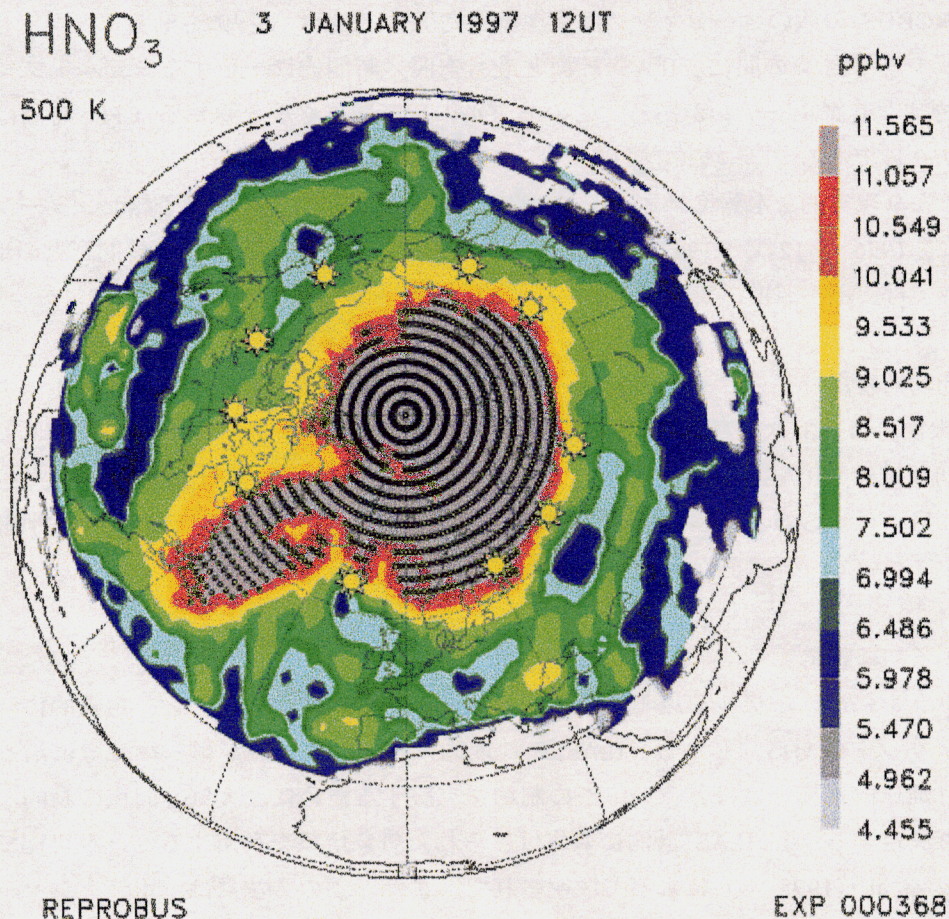


図 1 ILAS 計測による 500K 等温位面上の  $\text{HNO}_3$  分布は、(等価緯度、温位面)空間に限定される。このフィールドは、1997 年 1 月 3 日の気象状況に対して再構築された。ILAS 観測は、64N 緯度帯 (太陽記号を参照) に限定されているが、この方法によって硝酸を、極と 30N の間に位置する、ほとんどすべてのグリッド点に帰することができる。点記号は、極渦内部に存在していることが検出されたグリッド点を指す。この分布は、3 次元モデルの予備試験のための初期  $\text{HNO}_3$  フィールドとして用いられた。

この方法の主な限界は、「REPROBUS は、圧力座標系を用いるのに対し、入力データ (ILAS) が温位面ビンに鉛直に離散化される」ということだ。鉛直内挿は、より低いレベルの問題を克服するとはいえ、より重大な困難が、モデルの最上位レベルで発生する。そこでは、温位レベルは、寒冷極に



向かっていく場合には、上方へ向かって行く。これは、「等緯度は一般に、その第 1 (最上位) 段階 (温度と風フィールドはモデルより上であることがわかっている) で計算できず、それゆえ、再構築法が使えない」ということを意味している。したがって、モデル最上部は、初日の特定の気象状況と一致する可能性のない、気候学的値によって初期化する必要がある。これは、モデルの下方に伝播する第 1 段階に伴う誤差としては、重要な限界である。というのは、気団がシミュレーション中に、非断熱降下を経るからである。この結果は研究中であるが、上記で説明した方法で初期設定された、最初の 2 か月のシミュレーションは、完全な気候学的値で初期設定された積分と比較して、実際には、ほとんど改善しないことが判明した。すなわち、特に  $\text{HNO}_3$  ピーク上部において、混合率は ILAS によって計測された値よりも著しく大きいことがわかった。これは、最上位レベルの初期  $\text{HNO}_3$  を過大評価したためである。

## ② MLS による初期設定

モデルの化学的初期設定のもう一つのオプションは、UARS 衛星搭載マイクロ波リム・サウンダー (MLS) によって行われた計測値を用いることである。この計器には、3 次元モデル初期設定をもっと簡単な方法でできる、地球の半球被覆率を提供するメリットがある。しかしながら、他の UARS 計器と共有するアンテナ走査メカニズム及び電力の共用による消耗のために、1996 年～1997 年初冬のごくわずかな日数しか十分な 3 次元被写域は利用できなかった。1996 年 12 月 18 日に、最良の被写域を入手した。我々は、最近発表された第 5 版のオゾン及び硝酸データを利用した。これは、1999 年の EF 研究の期間に用いた第 4 版に比べて、多くの重大な改良 (温度と対象点検索とを組み合わせた処理の改良) が加えられている。特に、フォワード・モデル及び検索アルゴリズムのさまざまな改良は、以前の MLS データセットの第 3 版とは対照的に、現在では検索が圧力内で 10 年ごとに 6 表面で行われているという事実にもかかわらず、結果的に、より精度の高い第 5 版の  $\text{HNO}_3$  データをもたらした。1996 年 12 月 18 日の  $\text{O}_3$  及び  $\text{HNO}_3$  の該当 MLS データは、ゴダード・データアーカイブ・センターから入手し、Reprobus グリッド上に内挿し、新しい 3 次元シミュレーションを行った。衛星データによって初期設定されなかった種は、フランス気象庁のアルページュ一般大循環モデルと結合した Reprobus の 12 月の 5 か年平均版によって初期設定した。 $\text{H}_2\text{SO}_4$  のバックグラウンド濃度を用いたが、その結果、全体として、200K 以上の温度で  $1 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  より小さいエアロゾル・フィールドに至った。

## 4. 結果・考察

研究の目的は、成層圏の PSC 組成及び脱硝プロセスについて、ILAS 観測から学べることを調査することである。このため我々の戦略は、ILAS によって計測された最も適切な種、すなわち、 $\text{HNO}_3$  や  $\text{H}_2\text{O}$ 、そして脱硝が、1996 年～1997 年の北極域冬季の  $\text{HNO}_3$  の鉛直分布に対して、最も強い影響を与えることができる期間、に的を絞った。この期間ははっきりと特定され、おおむね 1997 年 2 月中旬から 3 月にわたることがわかっている。

このようにして我々の新しいシミュレーションの初期設定が実証された後、次は最も関心をそそる期間及び地理的領域について、ILAS 及び REPROBUS プロファイルの体系的な比較を行った。そこにおいていくつかのシナリオのテストを行い、特に我々は異なったスキームを通して、PSC エアロゾルの物理的状態 (固体に対して液体) を調査した。

これには、(実験室研究で提示されているように) 通常過飽和率 10 を考慮するとはいえ、NAT 温度に達した場合 (50hPa で約 190K) の固体粒子形成についての「NAT スキーム」実験を含む。液体エアロゾルへの  $\text{HNO}_3$  の取り込みよりも 2~3K 高い温度で、NAT 形成が生じるために、このスキームは、PSC の発生及び  $\text{HNO}_3$  ガス相の除去を最大化する。また、このスキームは、二元液滴あるいは三元液滴よりも大きくなる NAT の形成も有利に働くことで、脱硝量も最大化する。Reprobus の PSC モジュールの最新版には、1999 年~2000 年北極域冬季に、Fahey et al. (2001 年) によって最近観測された、大きな NAT 粒子の成長の鍵となる、核形成選択率を含む。

「液体スキーム」は、NAT 形成を無視する。PSC 粒子は、温度が氷結点以上である間は液体のままであると考えられる。氷が気化する場合には、すべての粒子が液体相に戻っている。このスキームは、過冷却された二元溶液あるいは三元溶液の形成に有利に働く。したがって、 $\text{HNO}_3$  ガス相の除去及び脱硝の両方の振幅を最小にする。

## 5. 本研究により得られた成果

我々が実施したシミュレーション結果の例について、図 2 で示す。図 2 は、現在のプロジェクトにおける、1997 年 2 月 23 日の硝酸鉛直分布の ILAS 観測と Reprobus プロファイルとの比較を示す。上部には、液体スキームを利用して得られた  $\text{HNO}_3$  計算値をグラフ化し、NAT スキームの結果は下部に示した。ILAS 計測は、極成層圏雲の形成によるガス相からの除去を示唆する、20km 付近の  $\text{HNO}_3$  プロファイルにおける減少を呈示している。このレベルでの温度は、UKMO によって解析されたように、190K に近い。したがって、NAT 形成の閾値以下であるだけでなく、液体エアロゾル上に発生する、大量の  $\text{HNO}_3$  取り込みの閾値以下でもある。両方のシミュレーションとも、ガス相からの硝酸の大量除去を実際に確認した。液体スキームで得られたプロファイルは、観測に十分に一致しているように思われる。ガス相除去の鉛直範囲および規模の両方とも、20km 高度で ILAS によって観測されたへこみに、相対的に良く一致している。一方、NAT スキームは、ILAS 観測とは対照的に、20km でほぼ完全な  $\text{HNO}_3$  のガス相除去だけでなく、PSC の鉛直範囲も著しく過大評価している。

## HNO<sub>3</sub>ILAS モデル比較

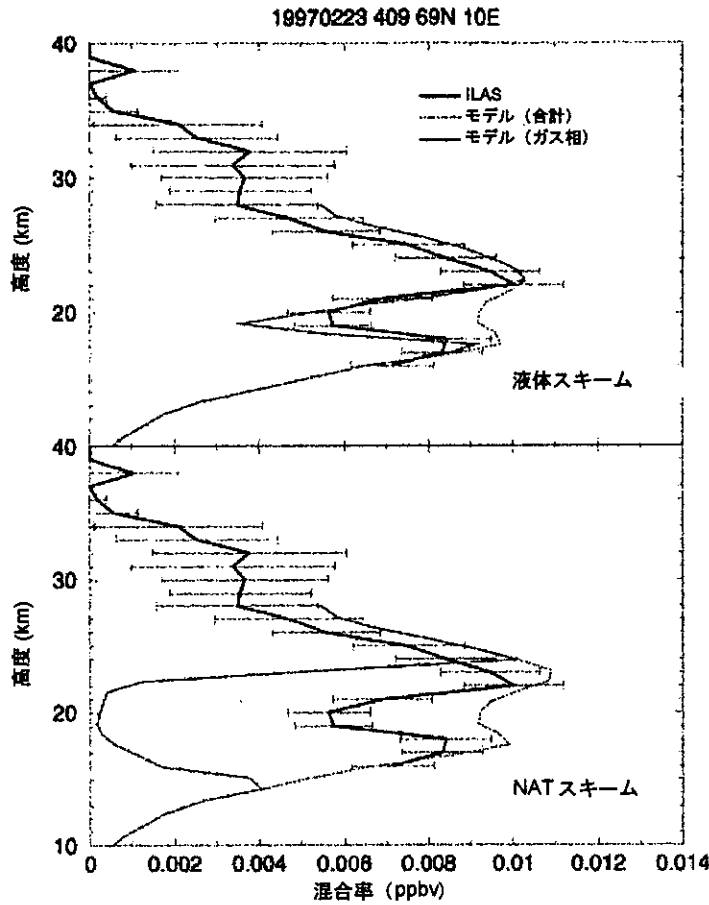


図2 ILASによる硝酸 (HNO<sub>3</sub>) 計測と1997年2月23日の3次元モデル計算の比較  
上: 液体スキーム  
下: NATスキーム

### 6. 引用文献

- Carslaw, K., B. Luo, and T. Peter, An analytic expression for the composition of aqueous HNO<sub>3</sub>-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> stratospheric aerosols including gas phase removal of HNO<sub>3</sub>, *Geophys. Res. Lett.*, 14, 1877-1880, 1995.
- DeMore, W.B., et al., *Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modelling*, JPL Publication, Pasadena, CA, 2000.
- Fahey, D.W., et al., The detection of large HNO<sub>3</sub>-containing particles in the winter Arctic stratosphere, *Science*, 291, 1026-1031, 2001.
- Goodman, et al., New evidence of size and composition of polar stratospheric cloud particles, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 615-618, 1997.
- Lary, D.J., et al., Three-dimensional tracer initialisation and general diagnostics using PV latitude-Potential temperature coordinates, *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 121, 187-190, 1995.
- Lefèvre, F., et al., Chemistry of the 1991-92 stratospheric winter : three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.*, 99, 8183-8195, 1994.
- Lefèvre, F., et al., The 1997 Arctic ozone depletion quantified from three-dimensional model simulations, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 2425-2428, 1998.

Sasano, Y., et al., Improved limb atmospheric spectrometer (ILAS) for stratospheric ozone layer measurements by solar occultation technique, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 197-200, 1999.

Waibel, A.E., et al., Arctic ozone loss due to denitrification, *Science*, 283, 2064-2068, 1999.

[国際共同研究等の状況]

本研究は、国立環境研究所と、フランス CNRS (国立科学研究センター)、及びピエール・マリー・キュリー大学との共同研究として実施された。

[研究成果の発表状況]

(1) 誌上発表 (学術雑誌)

- ① E. D. Rivière, N. Huret, F. G. Taupin, J. -B. Renard, M. Pirre, S. D. Eckermann, N. Larsen, T. Deshler, F. Lefèvre, S. Payan, and C. Camy-Peyret : *J. Geophys. Res.*, 105, 6845-6854(2000)  
“Role of lee waves in the formation of solid polar stratospheric clouds: Case studies from February 1997”

(2) 口頭発表

- ① F. Lefèvre, Y. Sasano, T. Yokota, and H. Nakajima : The 16th ILAS Science Team Meeting, Kyoto (1999)  
“An improved polar stratospheric cloud scheme coupled to a three-dimensional model: Comparison with ILAS data”
- ② H. Nakajima, F. Lefèvre, F. Figarol, T. Sugita, T. Yokota, and Y. Sasano : AGU 1999 Fall meeting, San Francisco (1999)  
PSC formation and denitrification over the Arctic in 1997 winter: Observation by ILAS and comparison with the REPROBUS model”
- ③ H. Nakajima, F. Lefèvre, T. Yokota, and Y. Sasano : 第10回大気化学シンポジウム、豊橋 (2000)  
“Improved description of PSCs in three-dimensional model (REPROBUS): Application to ILAS data”
- ④ F. Lefèvre, H. Nakajima, and Y. Sasano : The 18th ILAS Science Team Meeting, Tsukuba (2001)  
“3D Modeling of the 1996-1997 Arctic winter and comparison with ILAS data”

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし