

課題名	A-1 オゾン層破壊の長期変動要因の解析と将来予測に関する研究		
課題代表者名	今村隆史（独立行政法人国立環境研究所大気圏環境研究領域）		
研究期間	平成14-18年度	合計予算額	295,609千円（うち18年度 59,078千円）
研究体制	<p>研究体制</p> <p>(1) 温室効果気体の増加がオゾン層に与える影響の定量化に関する研究</p> <ul style="list-style-type: none"> ・化学気候モデルを用いたオゾン層変動の解析に関する研究（東京大学） ・化学気候モデルの改良とオゾン層の変化に関する研究（独立行政法人国立環境研究所） ・オゾン層破壊と大気力学との相互作用に関する研究（九州大学） <p>(2) 成層圏水蒸気量の変動の把握とオゾン分解反応への影響評価に関する研究</p> <ul style="list-style-type: none"> ・短寿命ハロゲンのオゾン層への影響に関する研究（独立行政法人国立環境研究所） ・熱帯成層圏でのオゾン・水蒸気の変動に関する研究（北海道大学） ・成層圏での酸化水素系によるオゾン破壊反応に関する研究（名古屋大学） ・熱帯対流圏界面近傍での脱水過程に関する研究（京都大学） <p>(3) 中緯度における長期オゾン変動の解析と変動要因の解明に関する研究</p> <ul style="list-style-type: none"> ・化学輸送モデルを用いた中緯度オゾン変動要因に関する研究 (独立行政法人国立環境研究所) ・オゾン層破壊と準二年変動との相互関係に関する研究（国土交通省気象研究所） ・中低緯度でのオゾンの年々変動の解析に関する研究（北海道大学） ・成層圏エアロゾルの長期変動の解析に関する研究（奈良女子大学） <p>(4) オゾン層将来予測モデルを用いた北半球トレンドの解析に関する研究（平成17-18年度） (EFF・独立行政法人国立環境研究所)</p>		
研究概要	<p>研究概要</p> <p>1. 序（研究背景等）</p> <p>国際的なオゾン層保護対策の実施の結果、成層圏においてもハロゲン濃度（塩素・臭素濃度）が緩やかな減少ステージに入った事が報告されるようになり、少なくとも大気中のハロゲン濃度を減少させる事に関しては、フロン・ハロン規制が功を奏し始めた。</p> <p>既に大気に放出されたフロン・ハロン類の多くは、大気中寿命が50-100年程度と長いため、たとえ今後新たな放出がなかったとしても、その大気中濃度の減少は年1-2%程度に留まる。逆に言えば、年1%前後の増加傾向を示す様な化合物が成層圏オゾンの生成・消失に影響を及ぼすならば、フロン・ハロンの減少効果を打ち消す可能性がある。例えばCO₂の場合、1980-2000年の期間で約30ppmv（年平均0.4-0.5%）増加している。対流圏とは異なり成層圏においてCO₂は宇宙空間への赤外放射を通して成層圏を冷却化する効果を持っている。よってCO₂の増加は成層圏の寒冷化をもたらし、極域成層圏雲（PSC）の生成と不均一反応の効率の増加によってオゾン破壊を加速させ、オゾンホール消滅時期を遅らせる、との定性的な仮説も存在している。また最近では成層圏の水蒸気に増加傾向（年約1%）あるのではないかと、この指摘もある。水蒸気はCO₂と同様に成層圏の冷却化をもたらすと共に、極成層圏雲（PSC）をはじめとした成層圏でのエアロゾルやHO_xオゾン分解サイクルで主要な役割を果たすOH、HO₂ラジカルのソース気体としての役割もある。</p> <p>現在の成層圏では、CO₂、N₂O、CH₄などの気体やエアロゾルなどを含めた化学物質の濃度やその分布、更には気象場についてもオゾンホール出現前の1970年代とは大きく異なっている。それ故、オゾン層破壊の将来予測を行う際には、フロン・ハロン以外の大気組成の変化や温暖化の進行の影響についても考慮する必要がある。</p> <p>一方、今後の成層圏オゾン層変動の予測の妥当性を考える上で、これまでのオゾン層の長期変動が何故もたらされたのかを理解することも必要である。すなわち火山噴火などによる成層圏エアロゾルの変化、中緯度オゾンと極域でのオゾン層破壊の関連、地域ごとのオゾン層変動要因の分析、塩素・臭素化学のオゾン分解への寄与、と言った要因がどの領域のオゾン変動にどの程度影響を与えたかを理解することが必要である。</p> <p>2. 研究目的</p> <p>本課題での研究目的は、①今後見込まれるフロン・ハロン濃度の減少や温室効果気体（特にCO₂）濃度の増大と言った大気組成の変化に着目して今後のオゾン層の変動を予測する事、②今後の新たなオゾン層変動要因として最近指摘されている成層圏水蒸気の変化が実際に起こっているかを成層圏への水蒸気の流入口付近で明らかにする事、ならびに③過去のオゾン層変動に如何なる要因が</p>		

関与していたかについて分類化・定量化する事である。以上の目的意識を持って、個々のサブテーマでは以下に述べる点に焦点をあてて研究を進めた。

サブテーマ（１）： フロン・ハロン類の減少ステージにおいて、オゾン層の回復を妨げる可能性が懸念される温室効果気体—特に CO_2 —の増加について、そのオゾン層に与える影響を定量的に取り扱う。 CO_2 の増加は宇宙への長波放射を通して成層圏の冷却化に寄与するため、極域での低温化とそれに伴う極成層圏雲の増大・極渦の強化を通して極域でのオゾン層破壊を加速する事が予想される。そこで、大気大循環モデルをベースに成層圏での放射および化学過程を組み込んだ化学気候モデルを開発・改良する。更に開発した数値モデルを用いて長期積分実験を行い、 CO_2 漸増時のオゾン層の変動について調べる事を目的とする。

サブテーマ（２）： 中緯度成層圏において水蒸気の増加が最近指摘されている。水蒸気はオゾン分解反応の内、 HO_x サイクルと呼ばれる触媒連鎖反応の連鎖の担体である OH 、 HO_2 ラジカルの生成源である。また水蒸気は、成層圏エアロゾルの生成や下部成層圏での放射収支にも影響を及ぼす。成層圏における水蒸気の供給源は対流圏からの流入と成層圏でのメタンの酸化であるが、メタンの増加の影響のみでは報告されている水蒸気の増加を説明出来ず、対流圏からの流入量の変化が主な原因と予想される。対流圏からの水蒸気の流入は熱帯対流圏界層（TTL）を経て起こっていると考えられる。そこで、水蒸気などの流入口である熱帯対流圏界面領域での観測を軸に、熱帯下部成層圏で水蒸気量の増加トレンドが認められるのか、TTLでの脱水を引き起こす機構は何か、を明らかにする事を目指す。また水蒸気の変動と関連する HO_x オゾン分解サイクルに係わる化学反応の評価にも取り組む。

サブテーマ（３）： 程度こそ小さいものの、中緯度成層圏でもオゾン層破壊は進行している。極渦内での大規模なオゾン破壊とは異なり、中緯度域での成層圏オゾン層の変動は中緯度成層圏での化学的なオゾン分解に加え、極域でオゾン破壊を経験した空気塊および熱帯・亜熱帯域の低濃度オゾンを含んだ空気塊の輸送・混合過程がそれぞれ影響を及ぼしあった結果として現れている。よって、中緯度域でのオゾントレンドを理解するためには、 ClO_x や BrO_x サイクルなどの気相オゾン分解反応や不均一反応場を提供している成層圏エアロゾル量と言った化学過程の変動や極域あるいは熱帯・亜熱帯域でのオゾン変動とその領域からの輸送過程を理解する必要がある。そこで、観測データの解析に基づいた成層圏エアロゾルの長期変動の解明、亜熱帯西太平洋域のオゾン全量極小域のオゾンの年々変動の解析、数値モデル（化学輸送モデル）による中緯度オゾン量のこれまでの長期変動の再現と変動要因の解析を目的とした。

サブテーマ（４）： 平成17～18年度の2年間、EFF課題としてサブテーマ（４）を実施した。北半球地域ではオゾンの年々変動が大きいと、北半球中高度でのオゾン層破壊の原因や今後の変動予測には不確実性が大きい。そこで北半球オゾン層の変動を力学的および化学的要因に分離して、過去のトレンドの特徴を解析することを目的とした。また同様の解析をオゾン層破壊の将来予測実験結果にも応用する事を目指した。

連携： サブテーマ（１）～（４）はお互いに連携しそれぞれのサブテーマでの成果や開発した手法が他のサブテーマに反映される事に注意を払って、研究を進められたい。

3. 研究の方法及び結果

（１）温室効果気体の増加がオゾン層に与える影響の定量化に関する研究

成層圏オゾン層の将来変動を考察するに当たっては、成層圏での化学—放射—力学過程の結合を十分に考慮した「化学気候モデル（CCM）」を用いた数値実験が有力な手段である。我々は東京大学気候システム研究センター/国立環境研究所の共同開発による大気大循環モデル（CCSR/NIES AGCM）をベースとした化学気候モデル（CCSR/NIES CCM）の開発を進めると共に、化学気候モデルの基本的な性能の確認と改善を図った。

本サブテーマではまず、フロンなどの塩素系オゾン層破壊物質の影響まで考慮した化学気候モデル（T21バージョンCCMと略す）を開発した。モデルが計算した緯度帯毎のオゾン全量の季節変化が実測の緯度別の季節変化をほぼ再現していることを確認した上で、温室効果ガスと有機塩素化合物濃度の境界条件を外部強制として与えて長期積分を行った。その結果、南極オゾンホール内のオゾン全量の長期変化としては、(i)1986-2000年においてオゾン全量はほぼ様な減少傾向を示す、(ii)2000-2015年の期間は微増ながらも、オゾン全量の値は低レベルで推移する、(iii)2010年代後半からオゾン全量の回復が本格化し、2040年頃にはオゾンホールの目安である220ドブソン単位を上回る値にまで回復する、と言った特徴を示すことが分かった。

一方でT21バージョンCCMには幾つかの問題点が存在していることも明らかになった。そこで様々な改善を試みることで新たな化学気候モデル（T42バージョンCCMと略す）の開発も進めた。

T42バージョンCCMでは、大気の球面形状を考慮した光解離率計算や地形性ならびに非地形性の重力波抵抗スキームの導入に加え、サブテーマ（3）の成果を活用して臭素系のオゾン分解反応の導入も含めた化学反応モジュールの改善が図られた。その結果、T21バージョンCCMで問題となった、オゾンホール時期が観測と比べて遅る問題、を解消した。オゾン層将来予測の数値実験に関する国際的なプロジェクト（CCMValと呼ばれるプロジェクト）のシナリオに基づいた長期間の数値積分を実施、T21バージョンに比べオゾンホールの縮小期間で遅れが生じ、オゾンホールが観測されなくなる時期は2060年ごろにずれ込む可能性がある事を示した（図1.2）。

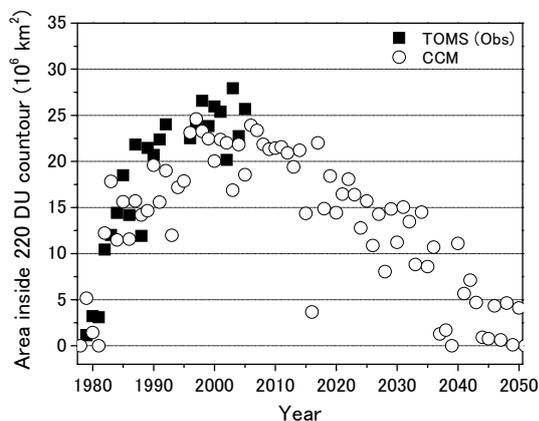


図1 オゾンホール面積の推移。■はTOMSによる観測結果。○は化学気候モデルによる長期積分実験の結果。

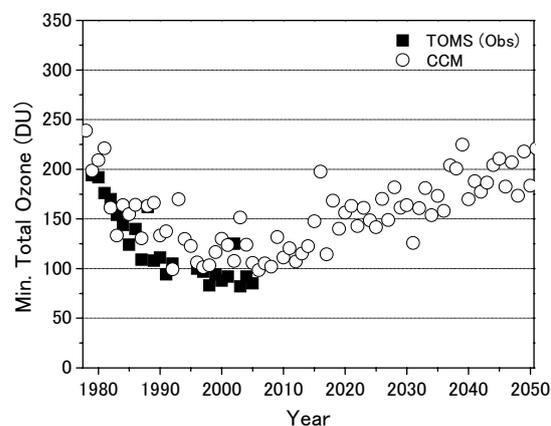


図2 南緯40度以南における最低オゾン量の推移。■はTOMSによる観測結果。○は化学気候モデルによる長期積分実験の結果。

（2）成層圏水蒸気量の変動の把握とオゾン分解反応への影響評価に関する研究

中緯度成層圏で水蒸気量の増加傾向（年約1%）が示唆されている。2でも述べた通り、成層圏での水蒸気量の変動は放射および化学プロセスを通して成層圏でのオゾン量や分布に影響を及ぼす。対流圏から成層圏への水蒸気の入流量は、流入口である熱帯域の対流圏界面近傍での脱水過程によってコントロールされていると考えられる。指摘されている成層圏下部での水蒸気量の長期的な変化の有無とその変化要因を理解するため、対流圏界面の中でも最も低温な領域を抱える太平洋熱帯域での対流圏界面近傍での水蒸気観測を行った。下部成層圏での水蒸気量に著しいトレンドが存在するか否かを把握する事を目指して、インドネシア（西太平洋）からガラパゴス（東太平洋）の上空でNOAA/FPH水蒸気センサーおよびその後継機CU-CFHセンサーを用いた観測を行った。1993年のクリスマス島および1998/1999年のガラパゴスにおける水蒸気観測の結果と合わせて、本研究での観測結果を比較した。観測地点や季節の違いを考慮する必要があるが、1998～2003年までの観測結果の比較からは、熱帯下部成層圏における水蒸気量においては、増加トレンドの存在を示す極めて明瞭な証拠は認められない。しかし2003年以降2007年はじめまでの観測結果までを合わせて比較すると、熱帯下部成層圏における水蒸気量の増加トレンドの存在を示している可能性のある結果が得られた（図3）。

TTL領域における継続的かつ高頻度の観測を目指した鏡面冷却型水蒸気センサー（Snow White）の改良にも取り組んできた。その結果、高度15km付近まではSnow WhiteとCU-CFHによって観測される水蒸気量は各々の精度範囲内で一致する事を確認でき、比較的安価なセンサーを用いた高頻度観測への道を開いた。

TTL近傍での水蒸気除去の機構解明として、ゾンデや衛星観測データの解析、さらにはサブテーマ（1）グループの協力を得たCCSR/NIES AGCMを用いた解析から、TTL領域での水蒸気変動に対して赤道ケルビン波や積雲活動など大規模・小規模波動が影響を及ぼしている事を示した。

また成層圏水蒸気に関与するHO_xサイクルに関連して、励起酸素原子と水蒸気との反応が成層圏でのOHラジカルの主要な生成源である事、オゾンの光分解が励起酸素原子の主要な生成源であることに着目して、オゾンの光分解による励起酸素原子の生成とその反応を調べた。励起酸素原子の直接検出手法として波長可変紫外レーザー光分解-真空紫外レーザー誘起蛍光検出法を開発した。開発したレーザー分光法を用いて、オゾンの光分解によるO(¹D)原子の生成収率の基準値を高精度に決定した。また大気窓領域と呼ばれる190～230nm領域でのオゾンの光分解反応によるO(¹S)原子

の生成とO(¹S)原子と水蒸気との反応速度を決定し、その成層圏化学への影響を明らかにした。

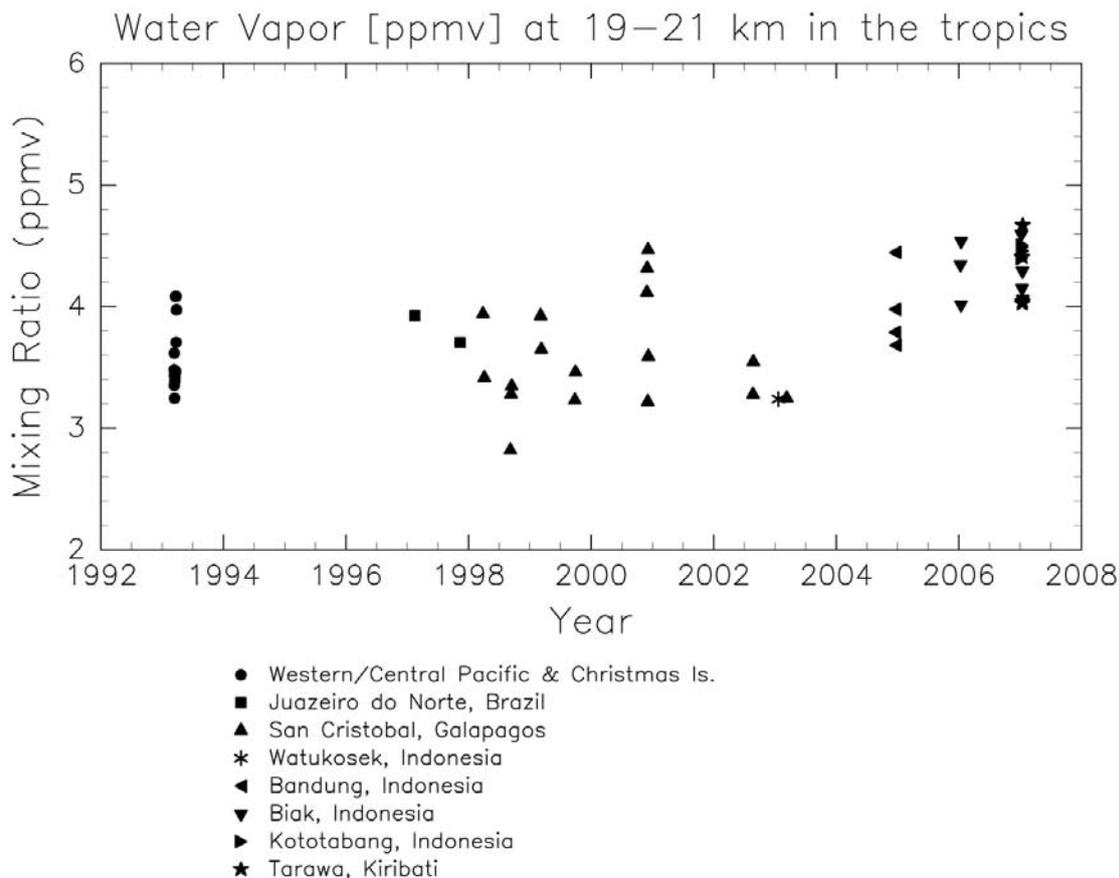


図3 NOAA水蒸気ゾンデ観測に基づく熱帯下部成層圏（19-21km）における水蒸気混合比。観測点は上に示した8地点全てを含む。

（3）中緯度における長期オゾン変動の解析と変動要因の解明に関する研究

中緯度域でのオゾン濃度の変動は様々な要因によって引き起こされている。すなわち中緯度領域の化学的なオゾン破壊のみならず、オゾン濃度の低い空気が低緯度あるいは高緯度から多量に中緯度へ流入することによっても中緯度のオゾン濃度は影響を受ける。中緯度域においてこれまでに観測されたオゾントレンドに影響を及ぼす要因を明らかにするため、中緯度での化学オゾン破壊に重要な成層圏エアロゾルの長期変動および臭素の影響、熱帯域からのオゾン濃度の低い空気の移流に影響を与える赤道大気の準2年振動(Quasi Biannual Oscillation, QBO), そして、北極域でオゾン破壊が進んだ空気の中緯度オゾン濃度へ与える影響について、衛星データ、化学輸送モデル、トラジェクトリー解析を用いて解析を行った。その結果以下のことが明らかとなった。(1)1991年6月のピナツボ火山爆発によるオゾン層への影響は1997～1999年くらいまでにはなくなった。(2)臭素によって中緯度では10～20DU程度のオゾン量が破壊されている。(3)台湾の東海上の亜熱帯西太平洋域の冬に起こる220DU以下の低オゾン域の出現にはQBOの影響が大きい。(4)QBOの周期にはオゾンによる大気加熱が関係している。(5)QBOはQBOに伴う子午面循環と成層圏の波動活動との相互作用によって中高緯度オゾン量に影響を与えている。(6)1997年のような安定した北極渦の下では極渦内でのオゾン破壊が進んだ空気が極渦外の空気と混合することによって極渦外のオゾン濃度を低下させる働きは、北極渦境界のすぐ外側の領域では大きいとその影響は極渦境界から低緯度側に等価緯度10°の範囲に限られ中緯度全体（等価緯度30-60°N平均）では小さかった。以上の、中緯度オゾンにとって重要と思われる過程を取り込んだ化学気候モデルを使った1980～2004年のオゾン変動の再現実験を行った。その結果、火山爆発によるオゾン濃度の急激な減少とその後の数年かけての回復、QBOによる低緯度および中高緯度のオゾン変動、臭素によるオゾン破壊などが再現された。

（4）オゾン層の将来予測モデルを用いた北半球トレンドの解析に関する研究

本サブテーマは2005-2006年度の2年間に行われたEFF（エコフロンティアフェロー）課題である。

本サブテーマでは、下部成層圏における亜酸化窒素濃度の年々変動を、サブテーマ（3）で開発・改良した化学輸送モデルを用いて計算し、その結果をProbability Distribution Function (PDF)解析した。NCEP/NCAR再解析データを化学輸送モデルにu-v-Tナッジングによって同化した計算に加えて、データの上限高度がより高いECMWF-ERA40を利用して温度同化を行わないu-vナッジングによって同化した計算も行った。1978年から2002年までの高度600K、45°N以北のN₂O濃度の計算結果を解析したところ、極渦崩壊の早い年は、極渦崩壊時期にN₂O濃度の急激な低下が起っていることがわかった。そして、夏までにはその最大面積を占める濃度がまた冬の時期の値まで増加・回復するという結果が得られた。極渦崩壊の遅い年には、極渦崩壊に伴うこのような急激な下部成層圏N₂O濃度の低下は起こらず、最大面積を占める濃度は冬から夏までほぼ一定値を示す。そして、この極渦崩壊時期の早い年の45°N以北の領域のN₂O濃度の低下の原因は、これらの年のより強い下降流の影響であることがわかった。ただし、極渦内だけを見た場合、極渦崩壊時期の早い年のN₂O濃度は増加し、それには水平方向の輸送の影響が大きいことがわかった。

また、サブテーマ（1）の中で行われた、化学気候モデルを用いたオゾン層の将来予測実験（1980～2050年）の結果を活用して、オゾンとN₂O濃度の相関を調べた。高度600Kのオゾン濃度とN₂O濃度の相関は極渦境界付近で大きく、その相関は年代によって変化していた。このことは、年代によってフロンによるオゾン化学の影響が異なることを示唆している。

4. 考察

ここでは、個々のサブテーマの成果の意義とサブテーマ間の連携について考察する。

アメリカのグループが1998年に、CO₂の増加がオゾンホール拡大の継続と北極オゾンホールの出現を引き起こす可能性がある、とする報告を行って以来、CO₂の増加がオゾン層破壊にどの程度の影響を及ぼすかが問題となってきた。本課題では、アメリカのグループが用いた簡易版のモデルに比べ、遥かに正當に成層圏での化学-放射-力学過程を接合させた化学気候モデル（CCSR/NIES CCM）を開発した。開発した化学気候モデルを用いて、CO₂漸増条件下での成層圏オゾンの変動を長期積分実験で調べた。更に精度の高い長期変動実験を行うため、大気球面効果の導入や重力波のパラメタリゼーションの導入、更にはサブテーマ（3）での化学輸送モデルの改良の成果をサブテーマ（1）に応用して、臭素系の化学反応の導入や不均一反応の取り扱い方の改良も行われた。その結果、成層圏オゾンの分布やオゾンホールの生成時期について、観測結果と整合性が増した（サブテーマ（1）、（3）の連携）。改良版の化学気候モデル（T42バージョン）を用いたオゾン層の将来予測の数値実験ではオゾンホールが観測されなくなる時期について、塩素化学まで考慮したT21バージョンの化学気候モデルでの実験結果に比べてやや遅れが見られ、2060年頃にずれ込む可能性が示された（サブテーマ（1）の成果）。

成層圏水蒸気の増加の問題は、成層圏における水蒸気の役割の重要性から、オゾン層の将来予測を行う上で避けて通る事の出来ない問題である。対流圏から成層圏への水蒸気の流入経路に当たる熱帯対流圏界面領域は、対流圏界面といった「面」的な取扱から、熱帯対流圏界層（TTL）なる「厚みを持った層」として捉える、とした理解に移ってきている。本課題では、対流圏から成層圏への水蒸気の流入経路に当たる熱帯域上空の対流圏界面領域に着目して、太平洋熱帯域上空での水蒸気観測と脱水機構の解明を行った。その結果、太平洋熱帯域の下部成層圏の水蒸気量における長期的な変化の存在を示している可能性が始めて示された（サブテーマ（2）の成果）。脱水機構の解明では、サブテーマ（1）の協力を得て、化学気候モデルのベースである大気大循環モデルを高分解能にしたモデルの活用や既存の衛星データの利用、更にはサブテーマ（3）におけるトラジェクトリー解析を応用した解析から、赤道域での大規模・小規模な波動活動が脱水過程に影響を及ぼしている事を明らかに出来た（サブテーマ（1）、（2）、（3）の連携）。

水蒸気の変動と関連してHO_xオゾン分解サイクルに関する化学反応データの見直しや充実が行われたが、新たなデータは数値モデルの化学モジュールの開発・改良の際に組み込まれた（サブテーマ（1）、（2）、（3）の連携）。

中緯度のオゾントレンドの解析においてQBOの影響の理解は不可欠である。中・低緯度オゾン量の空間的分布やオゾン量の変動に対するQBOの影響を、化学-放射-力学の相互作用をモデルに取り込んだモデルを活用して評価した。（サブテーマ（2）、（3）の連携と成果）。

物質輸送のトレーサーとしての亜酸化窒素濃度の分布に着目した解析から、特に北極域のオゾン層変動を化学的および力学的要因に分離して解析する事が可能である事を示した。この手法をサブテーマ（1）で行ったオゾン層の将来変動実験に応用、サブテーマ（3）とも連携して、フロンによるオゾン化学の年々変動を指摘した（サブテーマ（1）、（3）、（4）の連携と成果）。北極域の将来のオゾン層変動がフロンなどのオゾン層破壊物質濃度の減少に呼応する部分と力学的な

プロセスに影響される部分とに分離して議論する道を開いたと考えている。

課題全体としては、オゾン層の将来変動に関する数値実験の実施と実験結果に基づいた変動解析、成層圏水蒸気に関しては成層圏への流入口である熱帯の成層圏下部での水蒸気の変化の可能性を指摘、また中緯度のオゾン変動に係わるプロセスの特定とその寄与の定量化、に関して研究目標を十分に達成し、次の項でも述べるように、「オゾン破壊に関する科学アセスメント」へのインプットならびに環境省の「オゾン層等の監視結果に関する年次報告書」へのインプットなど成果の活用も行われたと自己評価している。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

- 成層圏における化学、放射、力学過程を組み込んだ2つの成層圏数値モデル（化学気候モデル、化学輸送モデル）を構築した。オゾン分布の再現精度などから見ても、国際的に遜色のない研究ツール（数値モデル）になっている。
- 化学-放射-力学過程間の相互作用を取り込んだ化学気候モデルを用いて、オゾン層の将来変動予測を実施、相互作用の存在の重要性を指摘する事が出来た。
- 臭素系のオゾン分解反応を取り込んだ数値モデルを開発したことにより、臭素系の反応がオゾン層破壊ならびにオゾン層の回復時期（例えばオゾンホール消滅時期）に影響を及ぼす事が明らかになった。
- 成層圏水蒸気の変動の問題に関して、熱帯域上空での水蒸気測定から、特に熱帯成層圏下部での水蒸気の変動および長期的な変化の存在の可能性を始めて指摘できた。
- オゾンの光分解過程による励起酸素原子の生成量や励起酸素原子の反応について、既存の反応データベースの書き換えや信頼性の向上に貢献した。
- 化学輸送モデルを用いた感度解析実験から、極域オゾン層破壊が中緯度オゾン変動に及ぼす影響の評価を可能にした。
- 西太平洋亜熱帯域に存在するオゾンホール並みの低オゾン濃度領域について、化学輸送モデルやトラジェクトリー解析から、低濃度領域の存在理由とその変動原因を始めて明らかに出来た。
- 化学輸送モデルに確率分布関数(Probability Distribution Function)解析を併用した、オゾンの年々変動に対する化学及び力学過程の寄与を分離する手法を確立できた。

(2) 地球環境政策への貢献

- 成層圏オゾン層の長期変動予測実験などの研究成果が、UNEP/WMOの「オゾン破壊に関する科学アセスメント2002」および「オゾン破壊に関する科学アセスメント2006」の中で引用された。
- 環境省のオゾン層等の監視結果に関する年次報告書（平成14年度～17年度）において、オゾン科学アセスメント2002を引用する形で、CCSR/NIES化学気候モデルを用いた将来予測実験結果が掲載。平成17年度報告書では、T42バージョンの化学気候モデルでの数値実験結果も掲載された。
- オゾン層保護のためのウィーン条約締約国のオゾン層研究管理者会合（2002,2005）の国別報告の中で、オゾン層の将来予測実験などの成果が示された。
- 研究成果のアウトリーチ活動として、一般向けの講演会を開催し、研究成果の普及に努めた。
- 研究成果を交えて、地方自治体の担当者やフロンなどの回収に携わる方々に、オゾン層保護における保護対策（フロンなどの回収・処理）の意義を示した。

6. 研究者略歴

課題代表者：今村隆史

1957年生まれ、東京工業大学理学部卒業、理学博士、現在、独立行政法人国立環境研究所大気圏環境研究領域長

主要参画研究者

(1)：高橋正明

1950年生まれ、九州大学理学部卒業、理学博士、現在、東京大学気候システム研究センター教授

(2)：今村隆史（課題代表者と同じ）

(3) : 秋吉英治

1961年生まれ、九州大学理学部卒業、現在、独立行政法人国立環境研究所大気圏環境研究領域大気物理研究室主任研究員

(4) : 秋吉英治 (サブテーマ (3) と同じ)

7. 成果発表状況 (本研究課題に係る論文発表状況。)

(1) 査読付き論文

- 1) Nagashima, T., M. Takahashi, M. Takigawa, and H. Akiyoshi: *Geophys. Res. Lett.*, 29, 8, 10.1029/2001GL014026 (2002). "Future development of the ozone layer calculated by a general circulation model with fully interactive chemistry"
- 2) 永島達也, 高橋正明: *天気*, 49, 67-74 (2002). 「成層圏オゾン層の将来見通しー化学気候モデルを用いた評価」
- 3) H. Akiyoshi: *J. Meteorol. Soc. Japan*, 80, 361-385 (2002). "Chemistry and temperature perturbations calculated by a chemical-radiative coupled 1-D model due to Pinatubo aerosols"
- 4) Takigawa, M., M. Takahashi and H. Akiyoshi: *J. Geophys. Res.*, 107, D22, 4610, doi:10.1029/2001JD001007 (2002). "Simulation of stratospheric sulfate aerosols using a Center for Climate System Research / National Institute for Environmental Studies atmospheric GCM with coupled chemistry, Part I: nonvolcanic simulation"
- 5) H. Akiyoshi, S. Sugata, T. Sugita, H. Nakajima, H. Hayashi, J. Kurokawa, and M. Takahashi: *J. Meteor. Soc. Japan*, 80, 451-463 (2002). "A low-N₂O air mass simulated by the CCSR/NIES nudging CTM and observed by ILAS in 1997"
- 6) Y. Matsumi, F. J. Comes, G. Hancock, A. Hofzumahaus, A. J. Hynes, M. Kawasaki, and A. R. Ravishankara: *J. Geophys. Res.*, 107(D3) 4024, ACH1-1-12, 10.1029/2001JD000510 (2002). "Quantum yields for production of O(¹D) in the ultraviolet photolysis of ozone: Recommendation based on evaluation of laboratory data"
- 7) H. Voemel, S. J. Oltmans, B. J. Johnson, F. Hasebe, M. Shiotani, M. Fujiwara, N. Nishi, M. Agama, J. Cornejo, F. Paredes, and H. Enriquez: *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD000707 (2002). "Balloon-borne observations of water vapor and ozone in the tropical upper troposphere and lower stratosphere"
- 8) M. Shiotani, M. Fujiwara, F. Hasebe, H. Hashizume, H. Voemel, S. J. Oltmans, and T. Watanabe: *J. Meteor. Soc. Japan*, 80, 897- 909 (2002). "Ozonesonde observations in the equatorial eastern Pacific - the Shoyo-maru survey"
- 9) Austin, J., D. Shindell, S. R. Beagley, C. Brühl, M. Dameris, E. Manzini, T. Nagashima, P. Newman, S. Pawson, G. Pitari, E. Rozanov, C. Schnadt, and T. G. Shepherd: *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 1-27 (2003). "Uncertainties and assessments of chemistry-climate models of the stratosphere"
- 10) Kawatani, Y., S. K. Dhaka, M. Takahashi, and T. Tsuda: *Geophys. Res. Lett.*, 30, 8, 10.1029/2003GL016960 (2003). "Large gravity wave energy fluxes over a smooth region with little convection: Simulation and observation"
- 11) Kawatani, Y., and M. Takahashi: *J. Meteor. Soc. Japan*, 81, 113-126 (2003). "Simulation of the Baiu front in a high resolution AGCM"
- 12) Sato N., and M. Takahashi: *Theor. Appli. Mech. Japan*, 52, 109-115 (2003). "Formation mechanism of vorticity anomalies on the subtropical jet in the midsummer northern hemisphere"
- 13) Sudo, K., M. Takahashi and H. Akimoto: *Geophys. Res. Letters*, 30, 24, 2256, doi:10.1029/2003GL018526 (2003). "Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations"
- 14) Chen, W., M. Takahashi and H.-F. Graf: *J. Geophys. Res.*, 108, No. D24, 4797, doi:10.1029/2003JD003834 (2003). "Interannual variations of stationary planetary wave activity in the northern winter troposphere and stratosphere and their relations to NAM and SST"
- 15) M. Fujiwara, M. K. Yamamoto, H. Hashiguchi, T. Horinouchi, and S. Fukao: *Geophys. Res. Lett.*, 30, 10.1029/2002GL016278 (2003). "Turbulence at the tropopause due to breaking Kelvin waves observed by the Equatorial Atmosphere Radar"
- 16) T. Imamura, H. Chono, K. Shibuya, and N. Washida: *Int. J. Chem. Kinet.*, 35, 310-316 (2003). "Rate coefficient for the reaction of CCl₃ radicals with ozone"
- 17) K. Takahashi, T. Nakayama, and Y. Matsumi: *J. Phys. Chem. A*, 107, 9368-9373 (2003). "Vacuum ultraviolet laser-induced fluorescence detection of O(¹S) atom produced in the 193 nm photolysis of ozone"
- 18) M. Fujiwara, M. Shiotani, F. Hasebe, H. Voemel, S. J. Oltmans, P. W. Ruppert, T. Horinouchi, and T. Tsuda: *J. Atmos. Oceanic Tech.*, 20, 1534-1542 (2003). "Performance of the Meteorolabor "Snow White" chilled-mirror hygrometer in the tropical troposphere: Comparisons with the Vaisala RS80 A/H-Humicap sensors"

- 19) M. K. Yamamoto, M. Fujiwara, T. Horinouchi, H. Hashiguchi, and S. Fukao: *Geophys. Res. Lett.*, 30(9), 1476, doi:10.1029/2002GL016685 (2003). "Kelvin-Helmholtz instability around the tropical tropopause observed with the Equatorial Atmosphere Radar"
- 20) Yoshiki, M., N. Kizu, and K. Sato, *J. Geophys. Res.*, 109, D23104, doi:10.1029/2004JD004870 (2004). "Energy enhancements of gravity waves in the Antarctic lower stratosphere associated with variations in the polar vortex and tropospheric disturbances".
- 21) N. Saitoh, S. Hayashida, Y. Sasano, and L. L. Pan: *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD000595, 2002. "Characteristics of Arctic polar stratospheric clouds in the winter of 1996/1997 inferred from ILAS measurements" L. B. Zhou, H. Akiyoshi, and K. Kawahira: *J. Geophys. Res.*, 108, D20, 4627, doi:10.1029/2003JD003412 (2003). "Analysis of year-to-year ozone variation over the subtropical western Pacific region using EP_TOMS data and CCSR/NIES nudging CTM"
- 22) A. Kagawa and S. Hayashida: *J. Geophys. Res.*, 108, D22, 1-20, doi:10.1029/2002JD002824 (2003). "Analysis of ozone loss in the Arctic stratosphere during the late winter and spring of 1997, using the Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT) technique"
- 23) N. Taniguchi, N., S. Hayashida, K. Takahashi, and Y. Matsumi: *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1293-1300 (2003). "Sensitivity studies of the recent new data on O(1D) quantum yields in O₃ Hartley band photolysis in the stratosphere".
- 24) T. Nakayama, K. Takahashi, Y. Matsumi, N. Taniguchi, and S. Hayashida: *J. Geophys. Res.*, 108, 1-7, doi:10.1029/2003JD003709 (2003). "Quantum yield for N(4S) production in the ultraviolet photolysis of N₂O".
- 25) H. Hatsushika and K. Yamazaki: *J. Geophys. Res.*, 108, D19, 4610, doi:10.1029/2002JD002986 (2003). "Stratospheric drain over Indonesia and dehydration within the tropical tropopause layer diagnosed by air parcel trajectories"
- 26) M. Ogi, Y. Tachibana, and K. Yamazaki: *Geophys. Res. Lett.*, 30, 13, 1704, doi:10.1029/2003GL017280 (2003). "Impact of the North Atlantic Oscillation (NAO) on the Summertime Atmospheric Circulation"
- 27) M. Niwano, K. Yamazaki, and M. Shiotani: *J. Geophys. Res.*, 108, D24, 4794, doi:10.1029/2003JD003871 (2003). "Seasonal and QBO variations of ascent rate in the tropical lower stratosphere as inferred from UARS HALOE trace gas data"
- 28) Kawatani, Y., M. Takahashi and T. Tokioka, *Geophys. Res. Letters*, 31, doi:10.1029/2004GL020794 (2004). "Gravity waves around the subtropical jet of the southern winter in an atmospheric general circulation model".
- 29) Mukougawa, H. and T. Hirooka, *Mon. Wea. Rev.*, 132, 1764-1776 (2004). "Predictability of stratospheric sudden warming: A case study of for 1998/99 winter".
- 30) H. Akiyoshi, T. Sugita, H. Kanzawa, and N. Kawamoto: *J. Geophys. Res.*, 109, D3, D03304, doi:10.1029/2003JD003632 (2004). "Ozone perturbations in the Arctic summer lower stratosphere as a reflection of NO_x chemistry and wave activity"
- 31) M. Ogi, Y. Tachibana, and K. Yamazaki, *J. Meteor. Soc. Japan*, 82, 905-913 (2004). "The connectivity of the winter North Atlantic Oscillation (NAO) and the summer Okhotsk high".
- 32) M. Ogi, K. Yamazaki, and Y. Tachibana, *J. Geophys. Res.*, 109, D20114, doi:10.1029/2004JD004514 (2004). "Summertime annular mode in the Northern Hemisphere and its linkage to the winter mode".
- 33) F. Hasebe and H. Koyata, *J. Meteor. Soc. Japan*, 82, 1129-1145 (2004). "Dynamic properties of the tropical atmosphere derived from radiosonde observations at San Cristobal and Singapore".
- 34) A. Gettelman, P. M. de F. Forster, M. Fujiwara, Q. Fu, H. Vomel, L. K. Gohar, C. Johanson, and M. Ammerman, *J. Geophys. Res.*, 109, D07103, doi:10.1029/2003JD004190, (2004). "Radiation balance of the tropical tropopause layer".
- 35) T. Imamura, W. Zhang, H. Horiuchi, H. Hiratsuka, T. Kudo, and K. Obi, *J. Chem. Phys.*, 121, 6861-6867 (2004). "Laser-induced fluorescence of cyclohexadienyl (*c*-C₆H₇) radical in the gas phase".
- 36) K. Takahashi, S. Hayashi, T. Suzuki, and Y. Matsumi, *J. Phys. Chem. A*, 108, 10497-10501 (2004). "Accurate determination of the absolute quantum yield for O(¹D) formation in the photolysis of ozone at 308 nm".
- 37) N. Eguchi and M. Shiotani, *J. Geophys. Res.*, 109, D12106, doi:10.1029/2003JD004314, (2004). "Interseasonal variations of water vapor and cirrus clouds in the troposphere".
- 38) T. Nakayama, K. Takahashi, and Y. Matsumi: *Geophys. Res. Lett.*, 32, L24803, doi:10.1029/2005GL024609, (2005). "Thermalization cross sections of suprathermal N(⁴S) atoms in collisions with atmospheric molecules"
- 39) Yamashita, Y., H. L. Tanaka and M. Takahashi: *SOLA*, 1, 53-56 (2005). "Observational analysis of the local structure of the wave activity flux associated with maintenances of the atctic oscillation index".
- 40) Kurokawa, J., H. Akiyoshi, T. Nagashima, H. Masunaga, T. Nakajima, M. Takahashi, and H. Nakane: *J. Geophys. Res.*, 110, D21305, doi: 10.1029/2005JD005798 (2005). "Effects of atmospheric spericity on stratopsheric chemistry and dynamics over Antarctica".
- 41) M. V. Ratnam, T. Tsuda, M. Shiotani, and M. Fujiwara: *SOLA*, 1, 185-188, doi:10.2151/sola.2005-048, (2005). "New characteristics of the tropical tropopause revealed by CHAMP/GPS measurements"
- 42) J. -Y. Han, K. Yamazaki, and M. Niwano, *J. Meteor. Soc. Japan*, 83, 57-67 (2005). "The winter

- ozone minimum over the subtropical northwestern Pacific”.
- 43) K. Shibata, M. Deushi, T. Sekiyama, and H. Yoshimura, *Papers in Geophysics and Meteorology*, 55, 75-119 (2005). “Development of an MRI chemical transport model for the study of stratospheric chemistry”.
 - 44) K. Shibata and M. Deushi: *Geophys. Res. Lett.*, 32, L24802, doi:10.1029/2005GL023433 (2005). “Radiative effect of ozone on the quasi-biennial oscillation in the equatorial stratosphere”.
 - 45) K. Iwao and T. Hirooka: *J. Geophys. Res.*, 111, D02104, doi:10.1029/2005JD006333 (2006). “Dynamical quantifications of ozone mini-hole formation in both hemispheres”.
 - 46) Eyring, V., N. Butchart, D. W. Waugh, H. Akiyoshi, J. Austin, S. Bekki, G. E. Bodeker, B. A. Boville, C. Bruhl, M. P. Chipperfield, E. Cordero, M. Dameris, M. Deushi, V. E. Fioletov, S. M. Frith, R. R. Garcia, A. Gettelman, M. A. Giorgetta, V. Grewe, L. Jourdain, D. E. Kinnison, E. Mancini, E. Manzini, M. Marchand, D. R. Marsh, T. Nagashima, P. A. Newman, J. E. Nielsen, S. Pawson, G. Pitari, D. A. Plummer, E. Rozanov, M. Schraner, T. G. Shepherd, K. Shibata, R. S. Stolarski, H. Struthers, W. Tian, and M. Yoshiki: *J. Geophys. Res.*, 111, D22308, doi:10.1029/2006JD007327 (2006). “Assessment of temperature, trace species and ozone in chemistry-climate model simulations of the recent past”.
 - 47) Akiyoshi, H., S. Sugata, M. Yoshiki, and T. Sugita: *J. Geophys. Res.*, 111, D22311, doi:10.1029/2005JD006540 (2006). “Ozone decrease outside Arctic polar vortex due to polar vortex processing in 1997”.
 - 48) M. Kono, K. Takahashi, and Y. Matsumi: *Chem. Phys. Lett.*, 418, 15-18 (2006). “Kinetic study of the collisional quenching of spin-orbitally excited atomic chlorine, $\text{Cl}(^2\text{P}_{1/2})$, by H_2O , D_2O , and H_2O_2 ”.
 - 49) Hashiguchi, N. O., M. D. Yamanaka, S.-Y. Ogino, M. Shiotani, and T. Sribimawati: *Journal of Geophysical Research*, 111, D15110, doi:10.1029/2005JD006501 (2006). “Seasonal and interannual variations of temperature in the tropical tropopause layer (TTL) over Indonesia based on operational rawinsonde data during 1992-1999”
 - 50) Hasebe, F., M. Fujiwara, N. Nishi, M. Shiotani, H. Voemel, S. Oltmans, H. Takashima, S. Saraspriya, N. Komala, and Y. Inai: *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 803-813 (2007). “In situ observations of dehydrated air parcels advected horizontally in the Tropical Tropopause Layer of the western Pacific”
 - 51) T. Nakayama, K. Takahashi, Y. Matsumi, A. Toft, M. P. Sulbaek Andersen, O. J. Nielsen, R. L. Waterland, R. C. Buck, M. D. Hurley, and T. J. Wallington: *J. Phys. Chem. A*, 111, 909-915 (2007). “Atmospheric chemistry of $\text{CF}_3\text{CH}=\text{CH}_2$ and $\text{C}_4\text{F}_9\text{CH}=\text{CH}_2$: Products of the gas-phase reactions with Cl atoms and OH radicals”.
 - 52) Shibata, T., H. Voemel, S. Hamdi, S. Kaloka, F. Hasebe, M. Fujiwara, and M. Shiotani: *J. Geophys. Res.*, 112, D03210, doi:10.1029/2006JD007361, (2007). “Tropical cirrus clouds near cold point tropopause under ice supersaturated conditions observed by lidar and balloon-borne cryogenic frost point hygrometer”.
 - 53) Nishi, N., J. Suzuki, A. Hamada, and M. Shiotani: *Scientific Online Letters on the Atmosphere*, 3, 13-16, doi:10.2151/sola.2007-004 (2007). “Rapid transitions in zonal wind around the tropical tropopause and their relation to the amplified equatorial Kelvin waves”
 - 54) K. Takahashi, E. Iwasaki, Y. Matsumi, and T. J. Wallington: *J. Phys. Chem. A* 111, 1271-1276 (2007). “Pulsed laser photolysis vacuum UV laser-induced fluorescence kinetic study of the gas-phase reactions of $\text{Cl}(^2\text{P}_{3/2})$ atoms with C_3 - C_6 ketones”
 - 55) Takashima, H., and M. Shiotani: *J. Geophys. Res.*, in press (2007). “Ozone variation in the tropical tropopause layer as seen from ozonesonde data”
 - 56) E. Iwasaki, F. Taketani, T. Takahashi, Y. Matsumi, T. J. Wallington, and M. D. Hurley: *Chem. Phys. Lett.*, 439, 274-279 (2007). “Mechanism of the gas phase reaction of chlorine atoms with butanone”.
 - 57) Charlton, J. A., L. M. Polvani, J. Perlwitz, F. Sassi, E. Manzini, K. Shibata, S. Pawson, J. E. Nielsen, and D. Rind: *J. Climate*, in press (2007). “A new look at stratospheric sudden warmings. Part II. Evaluation of numerical model simulations”
 - 58) Mukougawa, H., T. Hirooka, Y. Kuroda and T. Ichimaru: *Nonlinear Dynamics in Geosciences*, Springer-Verlag, in press (2007). “Hindcast AGCM Experiments on the Predictability of Stratospheric Sudden Warming.”
 - 59) Hei, H., T. Tsuda and T. Hirooka: *J. Geophys. Res.*, 112, in press (2007). “Characteristics of atmospheric gravity wave activity in the polar regions revealed by GPS radio occultation data with CHAMP.”