

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

(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

東京大学気候システム研究センター

高橋正明

独立行政法人国立環境研究所大気圏環境研究領域

秋吉英治・今村隆史

九州大学大学院理学研究院

廣岡俊彦

<研究協力者> 独立行政法人国立環境研究所 永島達也・吉識宗佳・坂本圭
 東京大学気候システム研究センター 山下陽介・門脇正尚・廣田渚郎

平成14～18年度合計予算額 88,472千円
 (うち、平成18年度予算額 18,520千円)

[要旨] オゾン層はオゾン層破壊物質であるフロン類の今後の減少に伴って素直に回復するのか、二酸化炭素の増加は今後のオゾン層の変化に如何なる影響を及ぼすか、の疑問に答えるため、成層圏での化学-放射-力学過程間の相互作用を考慮した成層圏化学気候モデルの開発・改良を行った。開発された数値モデルを活用して、成層圏での現実のオゾン分布の再現性などを評価した後、過去および将来のオゾン層破壊物質（フロン類など）や温室効果気体（二酸化炭素など）の大気中濃度の変化シナリオを用いて、成層圏オゾン層の長期的な変化に関する数値実験を行った。その結果、特にオゾン層破壊が顕著である南極オゾンホールの変化については、これまでのオゾンホールの拡大傾向をほぼ再現できる事、2000-2010年頃のオゾンホールは最大規模で推移する事、2020年頃からオゾンホールの縮小傾向が観測されると予想される事、オゾンホールが観測されなくなる時期は今世紀半ば過ぎになると予想される事、が示された。本課題で開発された成層圏化学気候モデルはオゾン層を取り巻くプロセスの理解にも応用された。オゾンホールの生成から消滅に至る時系列変動に対して、オゾンホール発達時期では光化学過程が、オゾンホール縮小時期では放射と力学過程の結合が支配的である事が分った。また太陽活動の変化の影響や上部成層圏のオゾン場に見られる大気潮汐の解析にも数値モデルを活用した。

[キーワード] 化学気候モデル、オゾン分布、オゾンホール、将来予測、温室効果気体

1. はじめに

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）がピークに達し、緩やかな減少ステージに入った事を示す観測事実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・ハロン規制が順調に機能している事が分かる。しかしながら現在の成層圏では、フロン・ハロンなどのハロゲン化合物以外の物質の濃度（大気組成）がオゾンホール出現以前とは大きく異なっている。例えば、温室効果気体である二酸化炭素（CO₂）は、対流圏では1980年から2000年の間に約30ppmv程度（年平均0.4-0.5%程度）増加しており、成層圏でもそれに対応する増加が認められている。同様にメタンや亜酸化窒素などの温室効果気体濃度も増加傾向にある。またサブテーマ（2）で述べる様に、成

層圏での水蒸気の変動も報告されている。よって、他の微量気体濃度の変動が、ハロゲンの規制効果を打ち消す事で、オゾン層の回復を遅らすなどの影響が現れる可能性がある。

主要な温室効果気体であるCO₂は成層圏においては長波を宇宙に向けて放射する冷却効果気体として働くので、成層圏におけるCO₂の増大は成層圏の寒冷化をもたらす事になる。CO₂の増加が成層圏オゾンに与える影響に関して化学的な立場からは2つの仮説を立てることが出来る。一つは、成層圏での温度低下は、オゾン分解反応を抑制し逆にオゾンの生成反応を加速する効果があるので、オゾン層の回復を加速すると言う仮説である。もう一つは、CO₂の増加は極域などの一層の寒冷化をもたらし、極成層圏雲（PSC）の増大、極渦の強化、不均一反応確率の増加などを招く事でオゾン層破壊を深刻化する方向に働く、と言う仮説である。成層圏の領域（極域か中緯度か、成層圏下部か上部か）の違いによってオゾン分解を引き起こす化学過程が異なる上に、化学過程は成層圏での力学過程や放射過程と相互作用しているので、実際にはCO₂の増加の影響を上記の様に単純に考える事はできない。

成層圏ではオゾンによる太陽短波の吸収による光→熱変換が重要な熱源である。そのためオゾンの増減は放射を通して温度場に影響を及ぼす。逆に温度場の変化がオゾン場や輸送場にも影響を及ぼす。この様に成層圏では、化学－放射－力学過程間の相互作用が存在しているため、オゾン層の長期変動を予測するためには、存在する相互作用を十分に考慮する必要がある。

CO₂の増加が今後の成層圏オゾン変動に与える影響については、Shindellら¹⁾が簡略化した化学気候モデルを用いて数値実験を行い、南極オゾンホールが2010年ごろまで継続する事、ならびに北極オゾンホールが起こる可能性がある事、を示唆した。しかしながら、彼らのモデルは様々な過程を非常に簡略化したものであり、CO₂増加が成層圏オゾンに与える影響を評価するには不十分であると言わざるを得ない。CO₂増加が成層圏オゾンに与える影響など今後のオゾン層の長期的な変動を予測するためには、化学－放射－力学過程の結合を十分に考慮した成層圏結合化学気候モデル（以下、化学気候モデルと略す）を用いた数値実験が必要である。

2. 研究目的

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(CCSR)/国立環境研究所(NIES)の共同開発による大気大循環モデル(AGCM)²⁾をベースとした化学気候モデル(CCSR/NIES CCM)の開発を行ってきた。³⁾本研究では化学気候モデルを用いた数値実験の結果から温室効果気体の増加が成層圏オゾン層に与える影響を「定量的」に評価する事を目標としている。そのために、CCSR/NIES AGCMをベースとした化学気候モデルの基本的な性能の確認と欠点の修正を行う。またオゾン層の中長期的な変動をもたらす要因に焦点を絞り、その影響を定量的に調べる。特にフロンなどのオゾン層破壊物質の減少化にあって温室効果気体の増加が成層圏オゾン層の将来にどのような影響を及ぼすかを明らかにするのが本研究の目的である。

3. 研究方法

化学気候モデルとは、いわゆる大気大循環モデルに大気中の各種化学成分（オゾン、窒素化合

物、塩素化合物等)の三次元分布を計算するモジュールを組み込んだものである。図1に化学気候モデルの概念図を示す。モデルの中では、オゾンなどの各化学成分の分布は、大気大循環モデルが計算する風速によって移流され、同じくモデルの計算する気温に依存した化学反応速度で反応を行なう事によって計算される。一方、オゾンなどの化学成分の濃度や分布の変化が太陽短波吸収や宇宙に向けての赤外放射を通して加熱率や冷却率の変化による気温分布の変化も計算される。

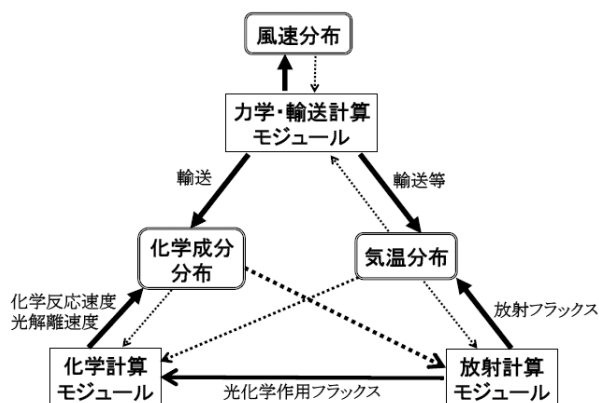


図1 化学気候モデルの概念図

本サブテーマではCCSR/NIES AGCMをベースに成層圏化学過程の計算モジュールを組み込んだ化学気候モデル (CCSR/NIES CCM) を作成、その後様々な改良を加えていった。

当初のCCMでは表1にある33種類の化学成分の3次元分布を計算した。長期積分実験では、水平分解能をT21 (経度×緯度≒5.6°×5.6°)、鉛直方向は地表面から約80 kmの領域を34層に分割して計算を行なった。

表1 CCSR/NIES化学気候モデルで計算される化学成分。括弧内の化学成分は一つの化学ファミリーとして扱われ、ファミリー内の各成分量は化学平衡を仮定して計算される。

O系	$O_x (= O + O(^1D) + O_3)$		HCl, ClONO ₂ , HOCl, Cl ₂ , ClNO ₂ , CCl ₄ , CFC11, CFC12, CFC113, HCFC22, CH ₃ CCl ₃ , CH ₃ Cl, ClO _x (= Cl + ClO + ClOO + Cl ₂ O ₂)
N系	N ₂ O, HNO ₃ , HNO ₄ , N ₂ O ₅ , NO _x (= N + NO + NO ₂ + NO ₃)	Cl系	
H系	H ₂ O, H ₂ O ₂ , HO _x (= H + OH + HO ₂)	HC系	CH ₄

4. 結果・考察

(1) 成層圏オゾン分布の再現性

開発したCCSR/NIES CCMを用いて計算される成層圏の各種化学成分、特にオゾン分布の再現性を調べるため、アンサンブル数値実験を行った。この数値実験では、異なる8つの初期状態からそれぞれ1モデル年にわたる8ケースの数値積分を行った。その際、地表面におけるCH₄、N₂O、フロン類の混合比を全てのケースで同一の値(1990年代初期を反映した値)に設定し、それら8ケースの結果の平均値(アンサンブル平均値)を同時期に人工衛星で観測された値と比較した。

図2に、東西平均したオゾン全量の時間-緯度断面図を示す。図2の(a)はNimbus-7及びMeteor-3に搭載されたTOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) によって観測されたオゾン全量の1990年から1994年までの5年間の平均値であり、(b)はアンサンブル実験の平均値である。両図の比較から、北半球及び熱帯域においては、オゾン全量の季節進行が振幅・位相ともによく再現されていることが分かる。北半球の高緯度地域では、4月の中旬に420DUを超える極大値を示し、その後9月から10月に向って減少し約280DUの極小値を取るといった季節進行の特徴が良く再現されており、また北緯60度付近に年間を通じて見られるオゾン全量の大きな緯度帯も良く表現されている。南北30度までの熱帯域に関しては、極小値の南北移動の様子(冬半球で極小)が良く表現されており、オ

ゾン全量値自体もTOMS観測に近い値を示している。北半球及び熱帯における今回のモデル計算値とTOMS観測の差は、経度平均値で見た場合にはほぼ±8%の範囲に収まっている。一方、南半球の高緯度においては、9月下旬から12月下旬にかけて大規模なオゾン減少が計算されている。モデルの内部でオゾンの減少する要因を解析したところ、活性なCl系物質（ClO_x）による化学的な破壊によるものである事が確認された。よって、この大規模オゾン減少はいわゆる南極オゾンホールとの再現と見なす事が出来る。この時期において、計算されたオゾン全量は10月下旬から11月上旬にかけて最低値を取り、その値は140DU程度に達する。この値はTOMS観測において示される最低値（150DU）と良く一致しているが、TOMS観測において該当緯度帯でのオゾン全量最低値は9月下旬から10月上旬に起こっているのに対し、モデルが再現した南極オゾンホールの季節進行は、観測に比べると約1ヵ月遅れている。南半球の中緯度域においては、2,3月に極小値を取り、9,10月に極大値を取るという基本的な季節進行の様子は良く再現されているものの、オゾン全量の絶対値がTOMS観測に比べて最大20%程度の過大評価になっている。

次に南半球中・高緯度における観測との不整合のうち、南極オゾンホールの季節進行の問題について述べる。南極オゾンホールの季節進行の問題とは、南極上空におけるオゾン全量の最小値を記録する時期が、観測に比べて1ヵ月程度遅れるけれども、最小値の値自体は観測と比べて妥当な範囲に収まっている、という問題であり（図3）、次の2つの原因による複合的な問題と考えられる。

1. 8月から9月におけるオゾンの化学的な破壊率の過小評価

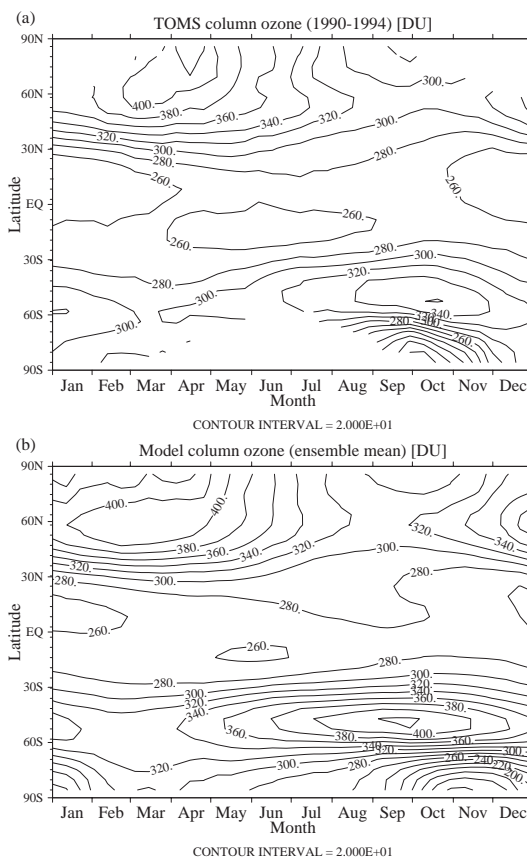


図2 経度平均したオゾン全量の時系列。(a) TOMSによる観測の1990年-1994年の5年間の平均値。(b) アンサンブル実験の平均値。TOMSの極夜域は空白になっている。コンター間隔は20DU

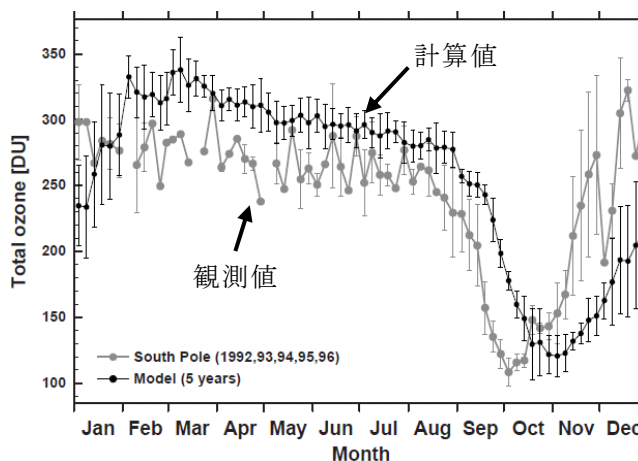


図3 オゾン全量の時系列。灰色：南極点でのゾンデ観測。黒：モデル最南点（86S）での計算結果。鉛直線は径年変動の1σ

2. 冬季の成層圏で卓越する西風ジェット（極夜ジェット：極渦）が長続きし過ぎる

この2点が組み合わさって、モデル中の南極オゾンホールに、“最小値を記録する時期は遅れるけれど（季節進行は遅れるけれど）、最小値の値自体は観測と比べて妥当である”という特徴が現れたと考えている。すなわち、8,9月における破壊率は過小評価されているが、原因2により、初春（9月）を過ぎても南極上空ではオゾンを化学的に破壊する条件（南極域の孤立、極低温の維持）が整うことでオゾン破壊が長引くため、実際に破壊されるオゾン量としては観測に近い量になっている、ということである。8,9月におけるオゾン破壊率の過小評価に関しては、モデル中の光解離率の計算過程において、地球大気が球面である事と、太陽天頂角が大きな場合には太陽からの直達光が気層の下からも入射されてくる事、の2点に関して考慮されていなかったためと考えられる。

上記二つの問題点を克服するため、（1）非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションのモデルへの導入、（2）大気の球面形状を考慮した光解離率計算の導入、という2点に関してモデルの改良を行なった。

（2）低温バイアスの改善を目指した努力

1）高分解能AGCMを活用した解析

（1）で指摘した南半球の極夜ジェットが長続きする問題は、現在世界中の多くのAGCMが抱える問題⁴⁾である。この問題に付

随して、冬季から春季にかけての南極域中下部成層圏における気温が観測に比べて低く計算される「低温バイアス問題」も多くのAGCMが抱える問題である。その解決のためには、非地形性起源の重力波による成層圏・中間圏への運動量輸送の効果を考慮する必要があると思われる。一般にこのような重力波の空間スケールは、長期積分を行うためのAGCMの空間スケール（～500km）に比べると格段に小さく、陽に扱う事は現実的には不可能である。従って、これらの効果をAGCMに導入するためには、AGCMの格子サイズにおける各種物理量を用いて、より空間スケールの小さい現象の効果を表現する手法、いわゆるパラメタリゼーションが必要である。パラメタリゼーションを行うに際しては、重力波の観測データの利用が望ましいのであるが、そうした観測データは数が限られている。それ故、高分解能AGCMの出力データを利用したパラメータの調整を行うのが一つの方法である。そこで本サブテーマでは、

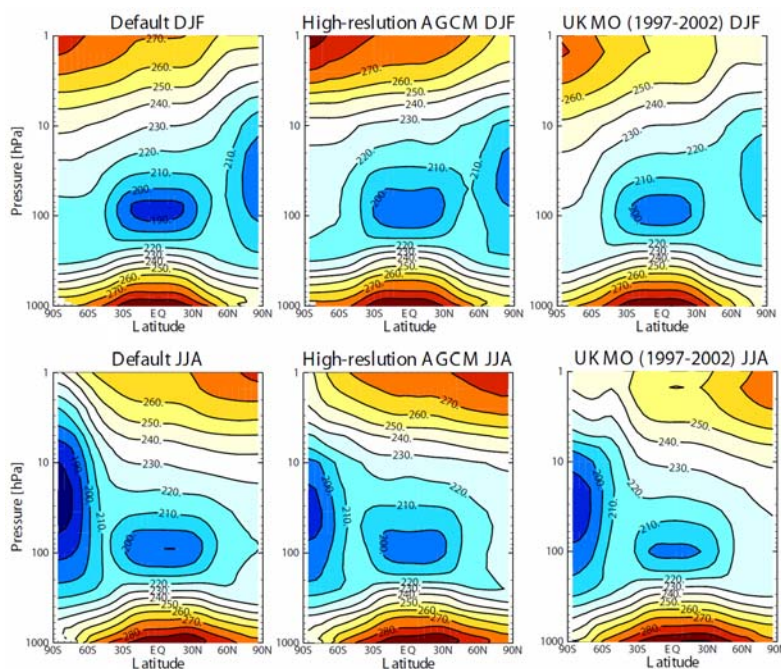


図4 東西平均、季節平均した気温の緯度－高度断面図。上段：北半球の冬季(12月、1月、2月)の平均。左から、水平分解能T21の標準実験、T106で鉛直分解能500mの実験、英国気象局の再解析データ（1997年－2002年平均）。下段：南半球の冬季（6月、7月、8月）。

パラメタリゼーションが必要である。パラメタリゼーションを行うに際しては、重力波の観測データの利用が望ましいのであるが、そうした観測データは数が限られている。それ故、高分解能AGCMの出力データを利用したパラメータの調整を行うのが一つの方法である。そこで本サブテーマでは、

化学過程を簡略化する事でAGCMの水平・鉛直分解能を高分解能化し、今までは陽に扱えなかった非地形性起源の重力波をモデル中で陽に表現し、その役割について考察する実験を行っている。

図4は、北半球と南半球の冬季で平均した気温の緯度－高度断面図を、2つのモデル実験及び英国気象局の再解析データ（1997年から2002年）を示したものである。ここで、英国気象局のデータは観測値と見なせるものであり、モデル計算結果のレファレンスとして示してある。ここに示したのは、次の2つの実験の結果である。

- ① 水平分解能T21（格子間隔～500km）、鉛直分解能が圏界面付近で1kmであるCCSR/NIES AGCM
 - ② 水平分解能T106（同～100km）、鉛直分解能が圏界面付近で500mであるCCSR/NIES AGCM
- ①では、両極域冬季及び熱帯圏界面における低温バイアスが顕著であるが、②では特に南半球の冬季における低温バイアスの改善が顕著であり、10－100hPaの範囲で大まかに10K程度のバイアス低減を達成している。なおこの実験では、極夜ジェットの季節進行も①に比べて観測に近いものになっていることを確認した。

2) 非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションの導入

1) で述べた高分解能AGCMによる解析や重力波の観測データを参考にしながら、非地形性の重力波抵抗パラメタリゼーションを化学気候モデルに導入した。非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションとしては、C. O. Hinesにより提唱された方法を用いた^{5,6)}。このパラメタリゼーションは、国内外の多くの中層大気AGCMで利用されている業界標準的なものであり、それらに使われている計算コードの入手が比較的容易な点が利点である。まず計算コードを入手し、CCSR/NIESモデルに導入するために大幅な書き換え作業を行った。次に、水平格子の大きさが約600km（T21）、鉛直方向には上空80kmまでを34層（L34）で表現したモデルに非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションを組み込んで、1ヵ月程度の短期間計算、次いで1モデル年の実行テストを行って、途中で計算が破綻・停止せずに走る事を確認した。これを用いて、非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションの各種パラメータの調整実験を行った。設定すべきパラメータは4種類あり（重力波の打上高度、打上高度に於ける風速摂動の二乗平均速度、重力波の水平波数、重力波の鉛直波数最小値）、1つのパラメータセットに対して5モデル年の実験を行い、そのアンサンブル平均を英国気象局（UKMO）の再解析データ（観測データと見なせるもの）と比較した。まず、他グループのモデルで使用されている値を参考に各パラメータの値を設定し、それらを用いた実験を行ったが、極渦の季節進行や冬期の低温バイアスに顕著な改善が見られなかった（モデル構成の差が影響したものと思われる）。そこで、各パラメータの値を色々に振って同様の実験を多数行った。これらの実験から、①打上高度を成層圏中にとると重力波抵抗が非常に小さくなる事、②東西風にかかる重力波抵抗の大きさは、水平波数、風速摂動の二乗平均速度に比例する事、③鉛直波数の最小値を小さくすると、重力波抵抗が大きくなる事、といった非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションの特性を知ることが出来た。この結果を踏まえて、極渦の季節進行の改善や両極域の冬期に於ける低温バイアスの改善を比較的良く達成できるパラメータセットを、T21L34の分解能について設定することが出来た（重力波の打上高度＝地表、打上高度に於ける風速摂動の二乗平均速度＝1.5 [m/s]、重力波の水平波数＝0.01 [km⁻¹]、重力波の鉛直波数最小値＝0.1 [km⁻¹]）。このパラメータセットを使った実験で計算された東西平均東西風と気温の各季節平均値を、UKMO再解析データ、および非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションを含まない実験の結果と比較したのが、

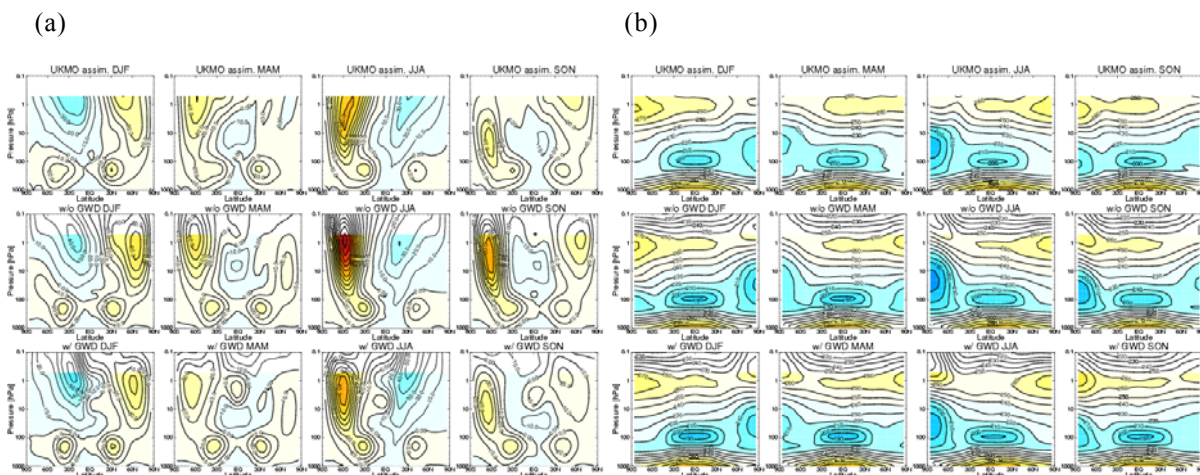


図5 東西平均した(a)東西風、(b)気温の季節平均。上段：UKMO再解析データ（1992–1996平均）、中段：非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションを考慮しない場合、下段：非地形性重力波抵抗

図5である。南半球の冬季（JJA）に注目すると、非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションを考慮した実験では、極夜ジェット中心の風速が顕著に減少し、観測とほぼ同程度になっていることがわかる。また、それに付随して、南極域中部・下部成層圏での冬季の気温も最大で20K程度上昇し、観測との不一致が大幅に改善されている。ただし、上記のパラメータセットの調整作業では、極域での再現性向上に注目したため、熱帯域の対流圏界面付近では逆に観測に比したときの低温バイアスが拡大してしまう等の問題は残っている。ここまでは、化学計算を含まないAGCMでパラメータ値の調整を行い、次いで、化学気候モデルに非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションを導入し、得られたパラメータセットを用いて、5モデル年の計算を行った。その際、次で述べる大気の球面形状を考慮した光解離率の計算は考慮されていない。計算された南極上空のオゾン全量を人工衛星データ及び標準実験の結果と比較したのが図6である。問題であった南極におけるオゾン全量の季節進行は、年間最小値を記録する時期が20日ほど早くなり、ほぼ観測されるような季節進行が計算された。更に、標準実験に見られるような、初夏の時期にまで及ぶオゾンホール影響の持続（2月中旬まで低オゾンレベルが持続）が、この実験では完全に修正されている。ただし、南極で計算されるオゾン全量の最小値は約150DUもの過大評価になっている。

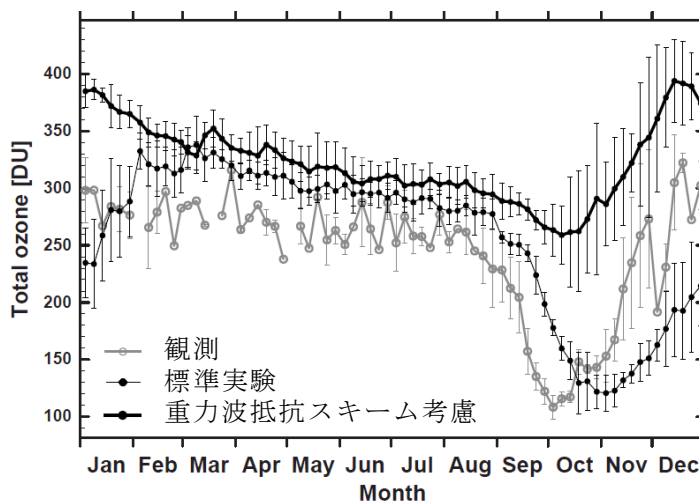


図6 非地形性重力波抵抗スキームを導入した場合のオゾン全量の時系列（灰色：観測、黒細線：標準実験、黒太線：非地形性重力波抵抗パラメタリゼーション考慮）

(3) 大気球面形状を考慮した光解離率計算の導入

これまでに使用してきた化学気候モデルで採用されている大気放射過程の計算手法では、大気を平行平板と仮定した幾つかの層に分割して、放射伝達の計算を解いていた。大気中の化学物質の光解離率の計算も、こうした平行平板大気を仮定した放射計算に組み込む形で導入されており、従って図7（左）に示すように、例えばある大気層の下方からやってくる太陽直達光とそれによる光解離に関しては全く考慮されていなかった。しかしながら、図7（右）に示すように、現実の大気に即して大気の球面形状を考慮すると、大気層の下方より進入してくる太陽直達光は存在

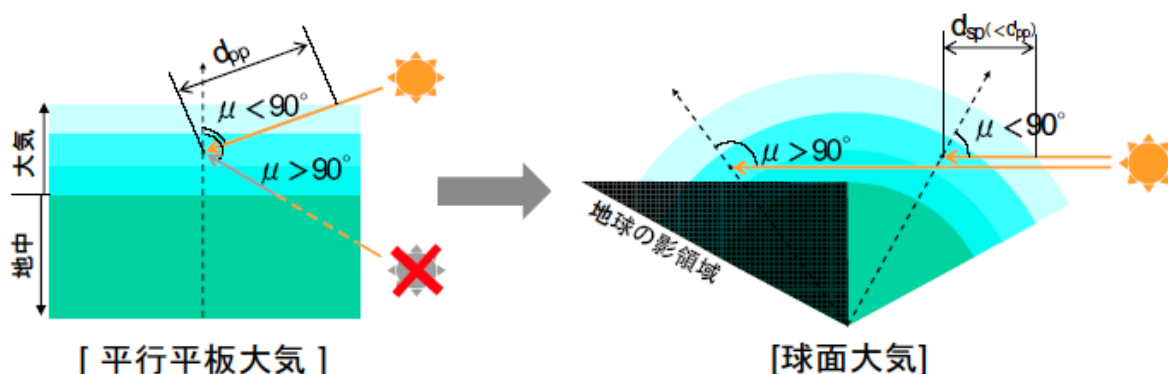


図7 大気の形状の違いによる、到達する直達太陽光の違い。（左）平行平板大気（右）大気の球面形状を考慮した場合。黄色に塗られた領域は、球面形状を考慮した場合に下層から直達光が入ってくる領域。また、同じ太陽天頂角を持つ直達光が通過する大気層の距離 (d_{pp} 、 d_{sp}) は、球面形状を考慮した場合の方が短くなる。

する事が可能で、しかもそうした太陽光の到達する領域は、丁度オゾンの破壊が最も活発と思われるながらモデル中では光解離率が過小評価されている、初春の極域成層圏領域に合致する事が分かる。また、同じ太陽天頂角を持つ直達光が通過する大気層の距離（光路長）は、大気の球面形状を考慮した場合の方が短くなる事 ($d_{pp} > d_{sp}$) が分かるが、これは平行平板大気の方が大気による直達光の減衰が大きい事を示しており、この効果によっても平行平板大気の場合の光解離率過小評価が多少は説明できると思われる。このような事から、光解離率の計算に際しては、大気の球面形状を考慮した計算

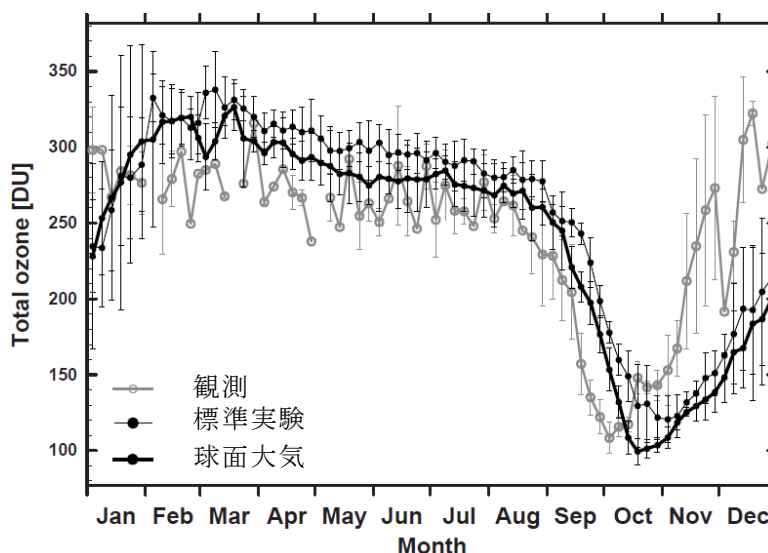


図8 大気の球面形状を考慮して光解離係数を計算した場合のオゾン全量の時系列（灰色：観測、黒細線：標準実験、黒太線：大気の球面形状考慮）

を行うことにした。具体的には、Kyllingら⁷⁾等を参考に、光路長計算の変更、及び下方より進入してくる太陽直達光の放射伝達計算を付け加えた。変更された光解離率計算コードを含む化学気候モデルを使って、5モデル年の数値実験を行なった。使用したモデルの水平分解能はT21（経度×緯度≒5.6°×5.6°）であり、鉛直方向の領域は地表面から約80 kmで、その領域を34層に分割して計算を行なった（以下同様）。その結果、極域成層圏の初春における光解離率（Cl₂O₂の光解離等）は増加し、その領域・時期におけるClO_xの量も並行平板大気の場合に比べて増加した。計算された南極上空オゾン全量の季節進行の様子を図8に示す。同時に示した並行平板大気の場合（以下、標準実験）の季節進行と比べて、明らかにオゾン全量の最小値が計算される時期に改善が見られる。人工衛星の観測と比較してほぼ1カ月の遅れがあった、オゾン全量の最小値が記録される時期に関して、大気の球面形状を考慮した計算の場合約半月遅れが減少し、10月の中旬には最小値が計算されている。更にその最小値の値自身も、より観測結果に近づく傾向を見せている事がわかる。

（４）光解離定数計算への大気球面形状効果の導入の効果

（３）で述べた通り新たな成層圏化学モデルでは、大気球面形状を考慮した光解離速度計算のためのコードが導入された。ここで導入した大気球面形状の効果とは、

- ① 太陽直達光が大気を通過する光路長に関する効果
- ② 太陽直達光が大気下方から入射する効果

である。前者は、平行平板大気で過大評価される減衰率の補正を行う事を意味する。後者は、平行平板大気では表現不可能な効果であり、特に、極夜明けオゾン破壊反応開始時期への影響が大きいと考えられる。これらの効果のモデルへの導入にあたっては、太陽直達光が放射フラックスを計算するグリッドに到達するまでの光路長計算には大気球面形状の効果を考え、太陽直達光がグリッドに到達した後の1次散乱光の計算は、基本的にこれまでの平行平板近似のスキームを生かす、という方針に従って導入した。

本研究では、大気の球面形状を考慮した光解離定数計算スキームを導入した、CCSR/NIES成層圏ナッジング化学輸送モデル（サブテーマ（３）で詳述。以後化学輸送モデルあるいはCTMと略す）及び化学気候モデル（CCM）と、対応するモデルの平行平板大気バージョンを用いて、大気球面形状の考慮が南極オゾンホールに与える影響の、化学－放射－力学相互作用について考察した。

化学輸送モデルおよび化学気候モデルを用いて行った平行平板大気（PPA）バージョンと球面大気（SA）バージョンでの数値実験結果をそれぞれ図9（CTMの結果）および図10（CCMの結果）に示す。

オゾン破壊時期においては、ClO濃度立ち上がり時期の早期化（図9(b)）に対応してオゾン破壊反応開始が早まり、総破壊量も増加する事が確認された。これは、ナッジング化学輸送モデル（図9(a)）、化学気候モデル（図10(a)）についてほぼ同様であった。

対照的に、オゾン回復時期においては、ナッジング化学輸送モデルでは、PPA、SA両バージョンでオゾン全量は即座にほぼ同値となった（図9(a)）のに対し、化学気候モデルでは、極小時の差異がオゾン回復時期においても継続されていた（図10(a)）。これは、ナッジング化学輸送モデルではPPA、SAバージョンで気象場が基本的に同一なのに対し、化学気候モデルのSAバージョンでは、オゾン破壊量の増加によるオゾン紫外線吸収量の減少によって気温が低下（図10(b)）し、そ

れに伴う極渦の強化によって極渦崩壊の時期が遅れ、その結果、低緯度側の高オゾン濃度気塊の極向き輸送が遅れた事に起因している。

以上により、オゾン破壊時期では光化学過程が、オゾン回復時期では放射・力学過程が南極オゾンホール時系列変動に対して支配的となっている事が分かった。また、本研究で使用した化学気候モデルでは、対流圏からの波動フラックスがオゾン回復開始のタイミングに不確実性を与えている事も分かった。

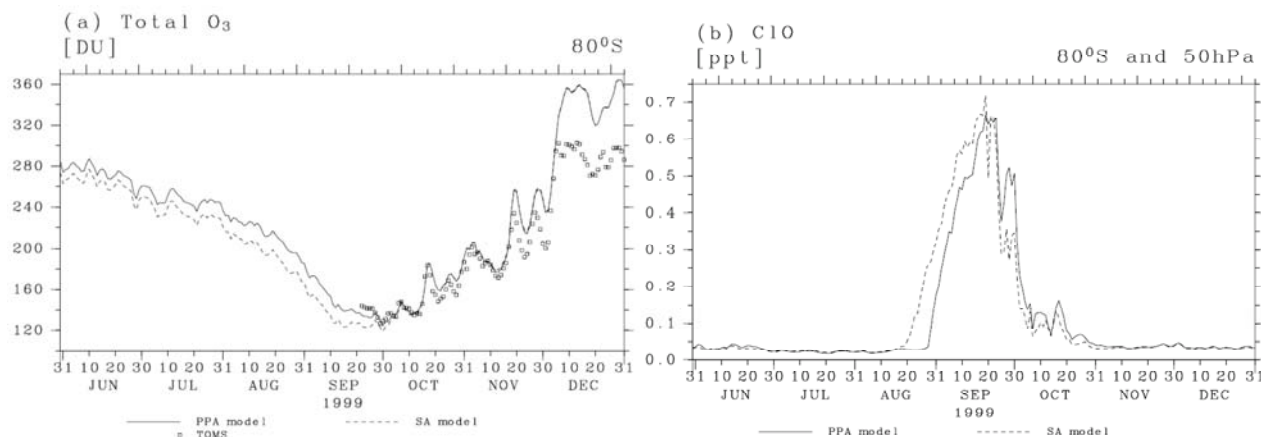


図9 大気球面形状がオゾンホールに与える影響。1999年の気象条件の下でのナッジング化学輸送モデルによる結果。(a) 80°Sで平均したオゾン全量の時系列。(b) 同緯度で平均した50hPaのClO濃度の時系列。直線は並行平板大気を仮定したモデルの、破線は球面大気を仮定したモデルの計算結果。(a)の□はTOMS観測値。

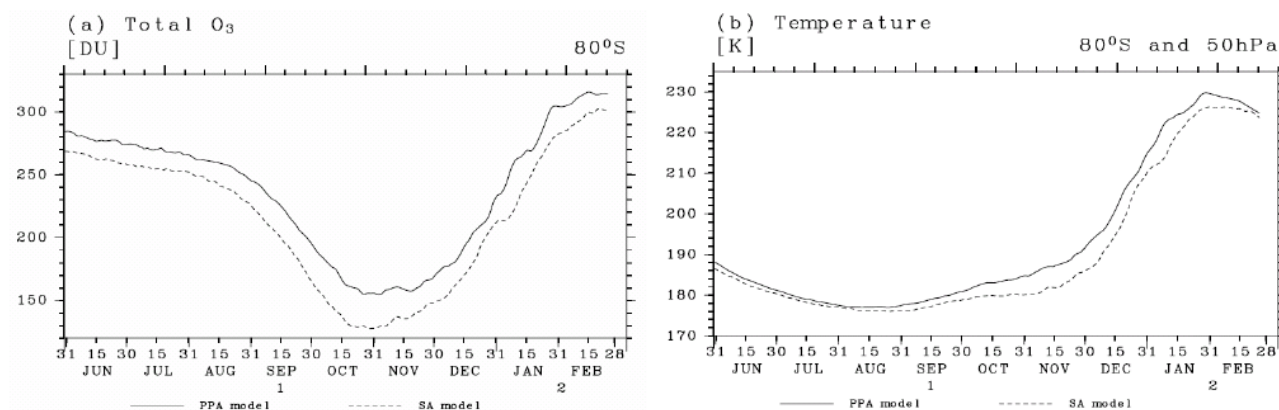


図10 大気球面形状がオゾンホールに与える影響。化学気候モデルによる結果。(a) 80°Sで平均したオゾン全量の時系列。(b) 同緯度で平均した50hPaの気温の時系列。直線は並行平板大気を仮定したモデルの、破線は球面大気を仮定したモデルの計算結果。

(5) 新バージョン化学気候モデル

新バージョンモデルでは、水平解像度がT21からT42 (2.8°×2.8°)へと上げられ、高分解能化が図られた。また、化学スキームの改良としては、臭素によるオゾン分解反応系(BrOx)の導入を図った。BrOx系の導入に当たっては、同じ大循環モデルをベースとしてサブテーマ(3)で開発

とその検証を進めた3次元化学輸送モデル（CTM）での成果を、CCMに導入する際に活用した。更に不均一反応の取り扱いとして、NAT、ICE上での不均一反応に加えてSTS（成層圏の硫酸-硝酸-水3成分系の液滴）上での不均一反応も含めた。⁸⁾ NATとICEについては、T21バージョンでは粒径を仮定して取り扱っていたが、T42バージョンでは粒径分布はモデル内で計算する事とし、粒径分布に応じて重力落下速度が計算できるように改良した。またCCSR/NIES AGCM5.4g には、200 nm以下の太陽放射伝達過程が入っていないので、微量成分のSchuman-Runge帯光解離過程も導入した。⁹⁾ 加えて、T21バージョンのCCMでは平行平面大気を仮定していたが、T42バージョンでは（3）で述べた通り球面大気として光化学反応を取り扱えるようにした。これにより、オゾンホール形成初期の様に天頂角が90度より大きくなる条件下での光分解速度も正當に扱えるようになった。また力学過程の調整では、（2）

で述べた重力波のパラメタリゼーションとして、非地形性重力波抵抗スキーム⁶⁾に加え、地形性の重力波抵抗スキーム¹⁰⁾も導入した。

（6）新たな化学気候モデルと観測値との比較

1990年代のオゾン全量の緯度・季節断面に関して、T21バージョンによる計算結果と実測（TOMS）との比較を行った（図11中段と上段）。（1）で詳しく述べた通り、数値モデルによるオゾンの分布は実測の分布を定性的には再現しているものの、オゾンホール内のオゾン全量の最低値を与えるのは11月と、実測に比べて遅れが認められた。またオゾンホール持続期間も実測に比べ長いほか、南半球中緯度でのオゾン全量の過大評価も認められる。

一方、改良後のT42バージョンのモデルでは、図11の下段に示す通り、TOMS観測と同様、10月にオゾン全量の最低値が起こるようになった。また、以前のモデルでは、南極渦の崩壊が12

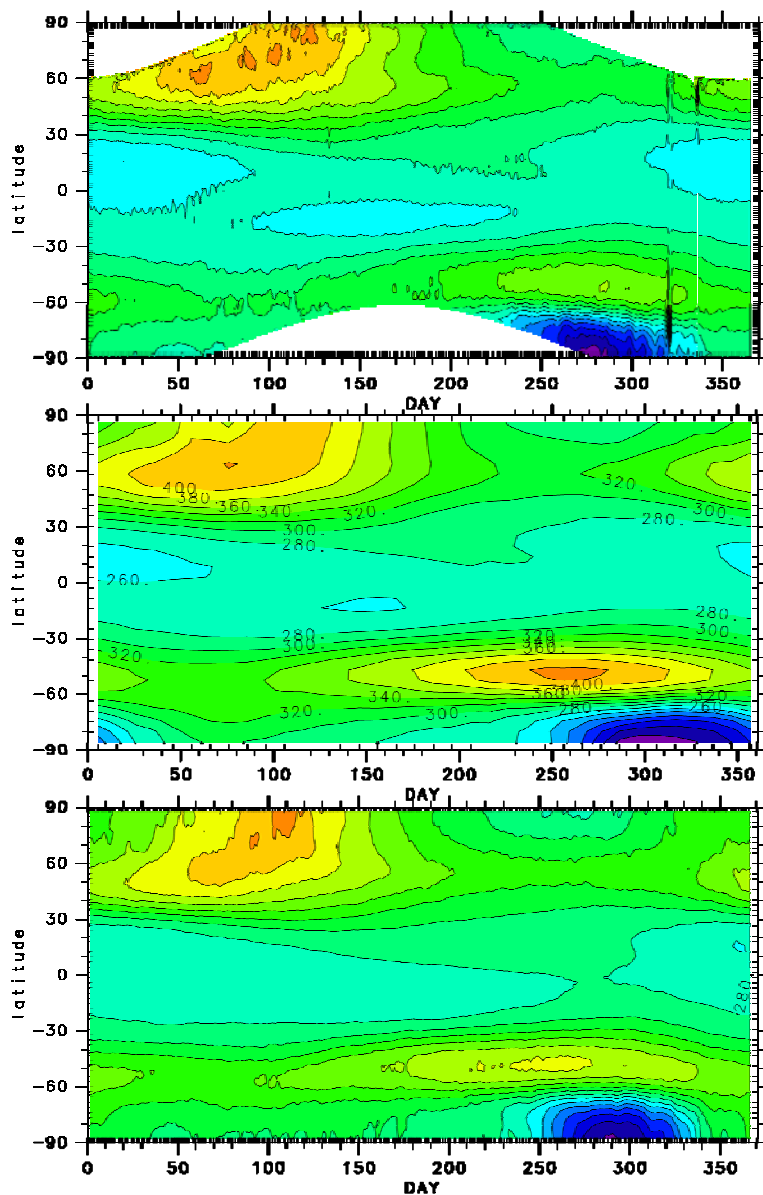


図11 緯度平均したオゾン全量の緯度別の季節進行。上段の図はTOMSによる1990-1992および1997-1999年の観測データを平均して作成したオゾン全量の季節進行。中段の図はT21バージョンの化学気候モデルでの1990-1999年の計算結果をもとに描いたオゾン全量の季節変化。下段の図は改良を施したT42バージョンの化学気候モデルを用いた計算結果を基に作成した緯度別のオゾン全量の季節進行。

月～翌年の1月に起こっていたが、改良後のモデルでは、1980年頃のオゾンホールが出現する前の状態で、極渦崩壊時期が11月下旬に起こるようになり、ECMWFデータなどによる観測事実をよく再現できるようになった。さらに、2000年頃のモデル大気中の塩素負荷を調べてみると、以前のT21モデルでは、10月の80°S、50 hPaのCl_y濃度は1.9～2 ppbvであったが、今回のモデルでは2.6～2.7 ppbvに上昇し、より観測値（2.5～3.5ppbv）に近くなった。

（7）極域成層圏オゾンの将来見通し実験

1) T21バージョン化学気候モデルによる数値実験

UNEP/WMO「オゾンの破壊に係わるの科学アセスメント2002」に対応するため、（1）で紹介したT21バージョンの化学気候モデルを用いた数値実験を行った。T21バージョンではオゾン層破壊物質としては、フロン等の有機塩素化合物のみを考慮しているものの、ハロンや臭化メチルなどの臭素化合物は考慮されていない。

数値実験としては、異なる境界条件（標準実験：温室効果ガスと有機塩素化合物の境界条件を外部強制として与えるとともに、温室効果ガス増加に伴う海面水温変化の予測値¹⁾も与えた。CO₂固定実験：有機塩素化合物及びCH₄、N₂Oは標準実験と同様の値を与えるが、CO₂及び海面水温については1986年レベルの値を実験期間中使用し続ける。）の下で65年間積分（1986年から2050年を想定）を行った。

オゾンホールの長期変化に対する2つの条件での数値実験結果について、オゾンホールが最も発達する時期1ヶ月間の南緯75度以南で平均した値で比較すると、オゾン全量に関して2つの条件で類似した傾向が認められた。そこでオゾン減少が最も著しい高度（下部成層圏）における気温時系列の長期傾向を調べた結果、CO₂増加及び海面水温の変化が南極域の気温場の長期傾向に殆ど影響せず、南極オゾンホールの将来にも殆ど影響を及ぼさない、という結果となった。また南極域下部成層圏のCl_y及びClO_xの混合比は、外部強制として与えた有機塩素化合物の境界条件を反映して1986年から2005年位まで増加を続け、それ以降は緩やかに減少するが、下部成層圏塩素量の長期傾向は丁度オゾン全量の長期傾向と同期し、かつ逆相関している。以上の事から、南極オゾンホールの長期傾向はCO₂や海面水温の長期変動よりは下部成層圏における塩素量に強く依存している事が示された。

2) T42バージョン化学気候モデルによる数値実験

上記（5）および（6）で説明したT42バージョンの化学気候モデルを用いて、UNEP/WMOの「オゾン破壊に係わる科学アセスメント2006」に対応した数値実験を行った。オゾン科学アセスメント2006におけるオゾン層の将来変動予測に関しては、国際プログラム（CCMVal）で定められたシナリオを用いた数値実験を行う事が求められた。CCMValでは4つの計算シナリオを推奨している。このうち最も基本的な次の2つのシナリオに沿って計算を行った。

REF1シナリオ（1980年～2004年の再現実験）： 温室効果ガスとハロゲンガスの地表面濃度、火山性エアロゾル量、太陽11年周期、QBOによる経年変動を与える。海水面温度は、UK Met. Office ハドレーセンターのHadISST1データを使う。

REF2シナリオ（オゾン層の将来予測実験）： 1980年から2025年、あるいは2050年までの計算を行う。この実験では、温室効果ガス、ハロゲンガスの地表面濃度の経年変動のみを与える。他のファクターはバックグラウンド値として固定する。例えば、火山性エアロゾル量は

1999年の値に固定してすべての年にわたりこの値を使う。太陽強度は11年周期の平均値を使う。本研究では海水面温度にCCSE/NIES/FRCGCの大気海洋結合モデル¹²⁾のアウトプットを用いた。

REF1, REF2シナリオ共に、オゾン層破壊物質の経年変動についてはWMO(2003)のAbシナリオ¹³⁾を、温室効果気体の経年変動についてはIPCC(2001)のA1Bシナリオ¹⁴⁾を使った。現在、上記のシナリオに基づき、長期間の数値積分を実施している。

図12は、南極域におけるオゾン全量経年変化の特徴的な年代における、オゾン全量の水平面図である。1998年 - 2002年の平均図では、南極上空で220DUを下回るようなオゾン濃度が顕著に低い領域が計算されている。これに対し2040年 - 2044年の平均図では、220DUを下回る領域はかなり縮小されている事が分かる。南極上空のオゾンホールが消滅するのは、T21バージョンでは2040年ごろとの結果であったが、最新のバージョンの化学気候モデルでは2060年ごろと20年前後遅くなる結果となった。なお回復の遅れが温室効果気体の増加によるものかは今後の詳細な解析を待つ必要がある。

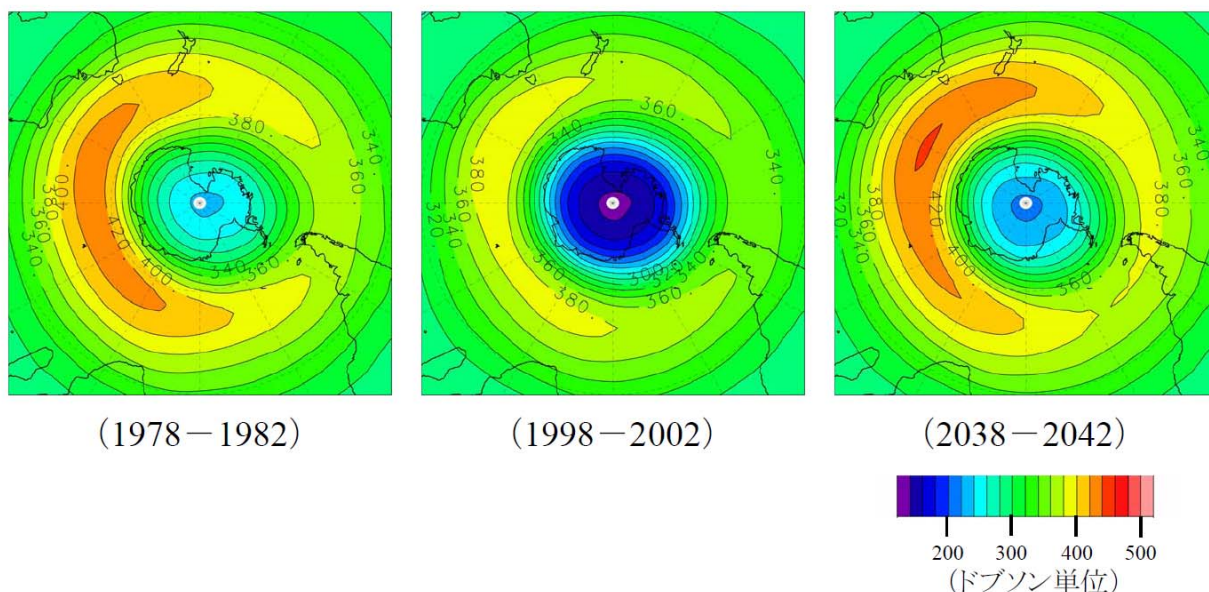


図12 新バージョンの化学輸送モデルを用いて行われた時間発展実験結果の該当する5年間についてそれぞれ年の10月の平均した南半球オゾン全量水平面図。

(8) 成層圏プロセス研究への成層圏化学気候モデルの応用

1) 太陽活動がオゾン層に与える影響

(1) で述べたようにCCSR/NIES化学気候モデルには幾つかの改善すべき問題点があるものの、化学気候モデルは化学—力学—放射過程の結合を考慮しており、様々な中長期的な変動要因が実際にオゾン層の変動にどの程度影響を及ぼし得るかについてのプロセス間の相互作用も含めた議論が可能である。オゾン層の中長期的な変動要因の一つとして太陽活動(11年周期)がある。そこでモデル内の太陽放射コードの一部を変更し、その強いときと弱い時の状況を固定して長期の積分(ここではそれぞれ20年間)をおこない、その差をみることで、成層圏のオゾン分布や温

度にどの程度の差が現れるかを明らかにするため、T21バージョンの化学気候モデルを用いた数値実験を行った。数値実験結果のうち、特に冬期のオゾンの構造の場所性に注目して解析をおこなった。その結果を以下に述べる。

8月の南半球冬について： 図13は全オゾンのモデル20年積分の8月における太陽放射の最大 (Solar maximum)—最小 (Solar Minimum)の偏差値を示す。ここでは惑星波動の卓越する南半球の冬に着目した。南極大陸周辺に於いて、太陽最大の際に全オゾンが増加している様子が見られる。その差は統計的に95%以上の有意性をもち、信頼性が高いと思われる。一方10hPaのオゾン偏差は図14に示されており、やはり南極（冬期）近傍においてオゾンの増大が見られる。

図14のオゾン場に対応した力学場として、図15に10hPaにおける温度偏差を示す。温度偏差からは温度場に有意性は認められないものの、図14に示したオゾンの構造とよく対応している。また図16にはそれぞれの緯度帯で、各圧力に対応する高度がどの様に変化したかを知るために、高度場の東西平均の図を示す。南極成層圏では高い高度偏差（圧力偏差）をもっており、それが対流圏の中緯度に伸びるようになってつながっている特長が読み取れる。図15や16から、太陽放射は成層圏の温度構造や高度場に大きな影響を与える事に加えて、その影響が対流圏にも及んでいる事が理解できる。

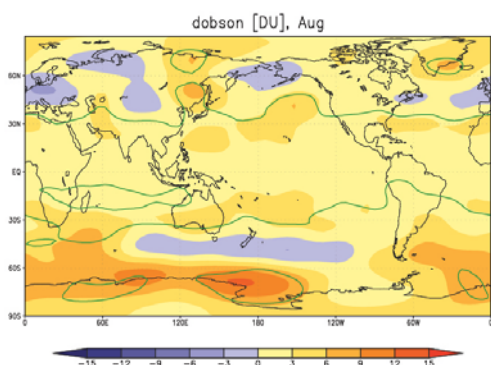


図13 8月におけるモデルオゾン全量の偏差。

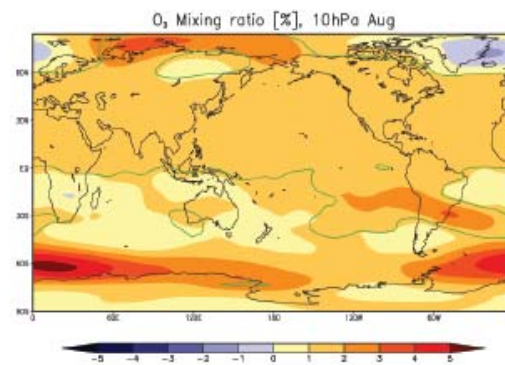


図14 8月における10hPaでのオゾン偏差

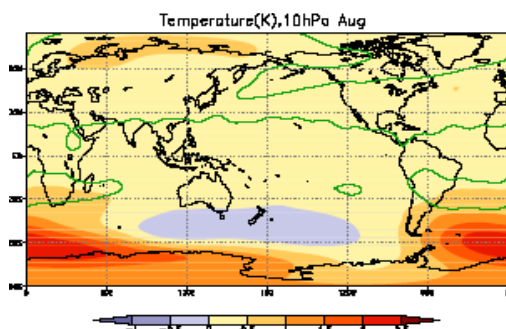


図15 8月における10hPaの温度偏差

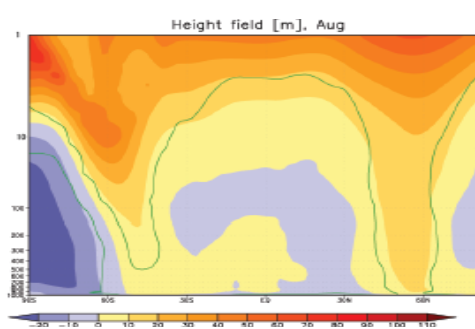


図16 8月における高度偏差の緯度高さ断面図

1月の北半球冬について： 図17は北半球が冬の1月のオゾン偏差を示している。冬期の応答に興味があるので、北半球に注目してみる。カナダあたりにオゾン偏差の大きい場所があり、それが統計的に有意な偏差となっている。対応した10hPaにおけるオゾンの増加も同様に見られる

(図18)。対応した温度場および高度場の緯度高さ断面図を、図19と図20に示す。温度構造は高温のところでおゾンが多く、オゾン分布とよく対応している。また8月の南半球冬と同様に、成層圏の影響が中緯度をとおして対流圏の中にまで及ぼしている事を示唆している。

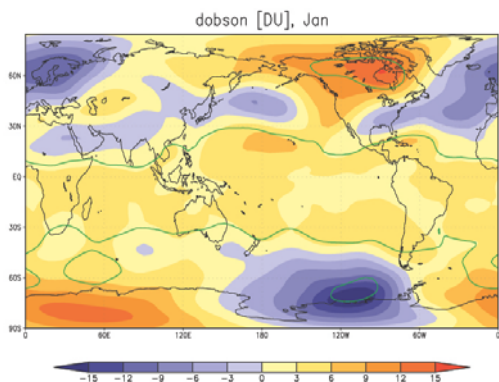


図17 1月の全オゾンの偏差

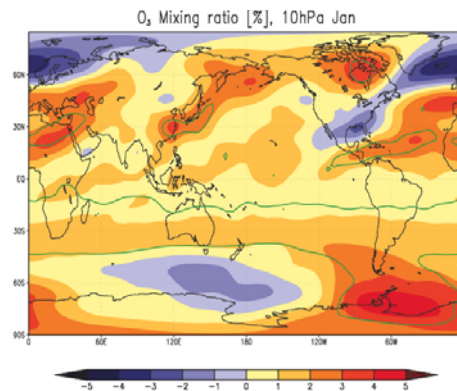


図18 1月の10hPaにおけるオゾン偏差

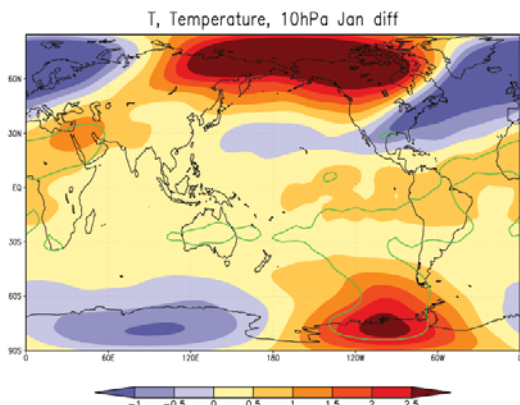


図19 1月の温度偏差

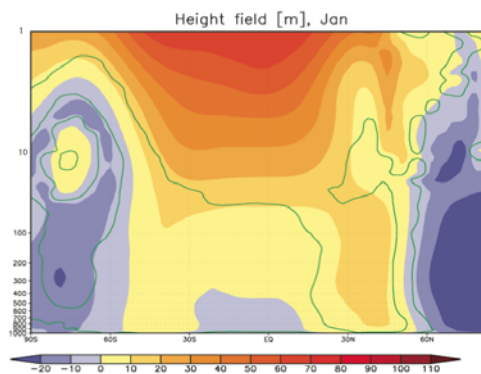


図20 1月の高度場の緯度高度断面図

2) オゾン場に見られる大気潮汐の解析

中層大気領域における大気潮汐は、主に大気中の水蒸気やオゾンによる太陽紫外線の吸収がもたらす加熱の1日変化により生じる。上部中間圏、下部熱圏領域においては、大気潮汐が大きな振幅を持ち、平均場に大きな影響を与えることが、これまでの多くの研究により明らかとなっている。しかしながら、下部中間圏以下の領域においては、適当な観測手段がないこともあり、実態がほとんど知られていない。そこで、本研究では、本推進費課題に関連して独立に開発された東京大学気候システム研究センターと国立環境研究所の共同開発によるCCSR/NIES CCM T42バージョン、ならびに気象研究所の開発によるMRI CCM¹⁵⁾を用いた数値実験結果を解析した。モデルの水平解像度はいずれもT42(緯度経度約2.8度)であり、鉛直層数は、1000~0.01hPaの高度領域に、前者が34層、後者が45層である。数値シミュレーションはそれぞれのCCMを用いて一年間行い、潮汐波の成分をフーリエ変換とバンドパスフィルターを用いて取り出した。

まず、等圧面高度場を解析したところ、いずれのシミュレーションにおいても、上部成層圏から下部中間圏にかけての領域に、赤道に関して南北対称で北緯40度付近に最大値をとる構造を持ち、太陽より6

時間程度遅れて1日周期で西進している波動が卓越していることがわかった。図21はCCSR/NIES CCMの6月1日、1hPaにおける北半球投影図である。この波動は古典潮汐理論により知られている外部波型の1日潮基底モードと同定することができ、この高度域のオゾンによる太陽紫外線の吸収により励起されたものと考えられる。

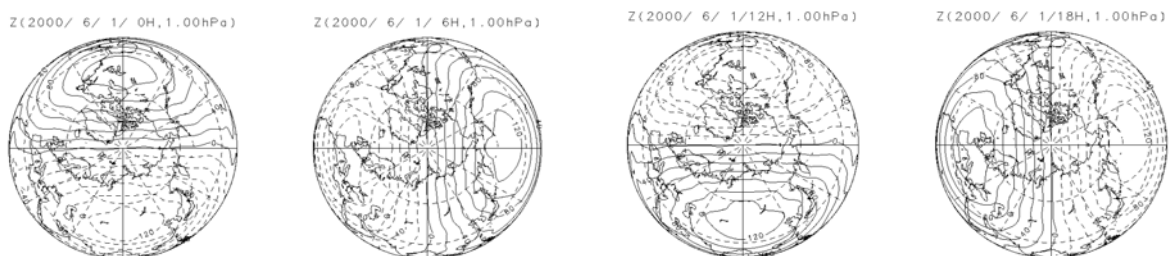


図21 CCSR/NIES CCMによる、6月1日の1hPa面高度場に現れる1日潮の北半球投影図。実線は正の偏差、破線は負の偏差、等値線間隔は20m。左から00、06、12、18 UTC。

一方、図22はCCSR/NIES CCMのオゾン混合比に現れる1日潮対応成分の水平構造について示したもので、6月1日における1hPa面(図22上段)と5hPa(図22下段)の北半球投影図である。この図より、いずれも北緯70度付近で最大値をとり、その領域が、1hPaでは太陽よりも約13時間、5hPaでは太陽よりも約5時間それぞれ遅れて1日周期で西進している様子が見られる。この構造は、基本的に夏半球のみに限られており、MRI CCMのシミュレーションでも基本的に同じ特徴が得られた。このように、わずかな高度の違いで、位相構造に大きな違いが見られるのは、非常に興味深い。

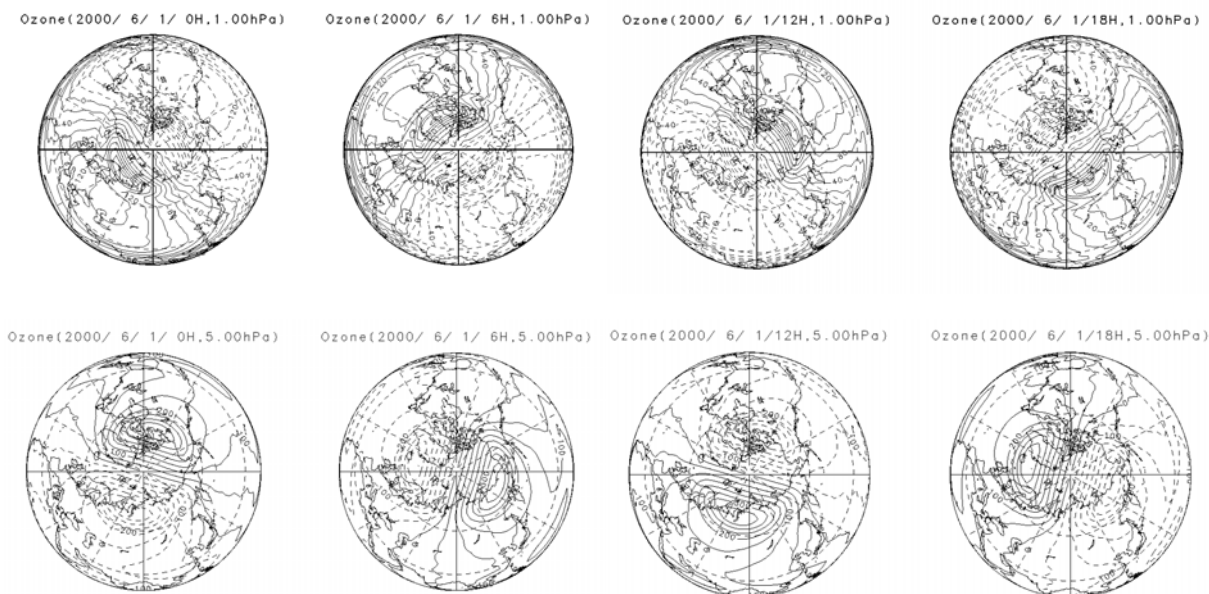


図22 CCSR/NIES CCMのオゾン混合比に現れる6月1日における1日潮対応成分の北半球投影図。実線が正の偏差、破線が負の偏差。左から00、06、12、18 UTC。上段は1hPa、等値線間隔は20ppbv。下段は5hPa、等値線間隔は50ppbv。

また、図23(a)は、同じくCCSR/NIES CCMのオゾン混合比に現れる1日潮対応成分の、6月平均振幅の緯

度高度断面図である。中間圏の緯度60度付近より低緯度側に見られる、高度が高くなるほど振幅が大きくなっている特徴は、既によく知られているオゾンの光化学反応による顕著な一日周期変動によるものであり、夜側で極大、昼側で極小となる大きな日変化を示す。一方で、昼夜が存在しない夏半球、冬半球の高緯度域には一日周期変動は現れない。それに対し成層圏では、夏半球に相当する北緯70度付近の1hPaと5hPa付近で、それとは独立した極大が出現する。図22に示した水平構造は、それぞれの極大に対応するものである。1hPa面では、最大値が現れる時刻は中間圏域とほぼ同じだが、水平構造が大きく異なり、さらに5hPa面では最大値が現れる時刻も全く異なっている。図23(b)は、それとは半年ずれた12月の結果であるが、やはり夏半球に相当する南緯80度付近に同様の極大が見られる。これらの特徴は、MRI CCMのシミュレーションでも基本的に同じであった。

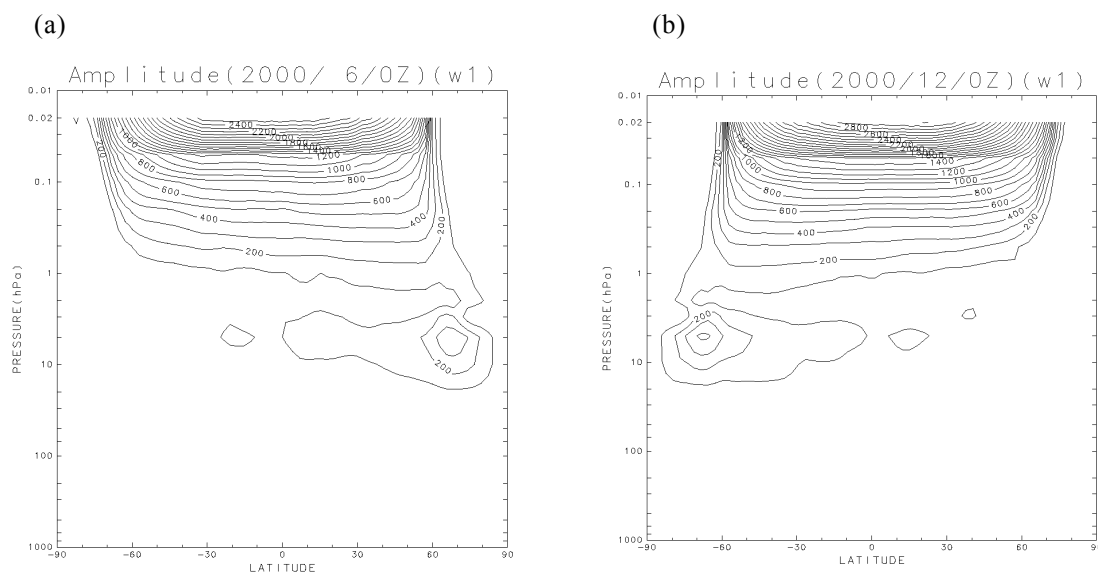


図23 オゾン混合比に現れる1日潮対応成分の振幅の緯度高度断面図。等値線間隔100ppbv。(a)は6月、(b)は12月の月平均。各図の左端が南緯90度、右端が北緯90度にそれぞれ対応する。

以上述べてきたような、上部成層圏のオゾン場に見られる構造は本研究で初めて示されたものであり、独立に開発された2つのCCMで同様の結果が得られたことから、これらは単にモデル固有の原因で形成される構造とは考えにくい。高度領域や、極大が現れるのが夏極付近であることを考えると、基本的にこの構造は光化学反応により形成されていると考えられる。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

- ・ 成層圏での化学-放射-力学過程間の相互作用を考慮した化学気候モデルを開発・改良した。モデルによるオゾン分布の再現性の点からもモデルの性能は世界的に見て遜色のないレベルにある。
- ・ 化学気候モデルとサブテーマ(3)で開発した化学輸送モデルを用いた数値実験から、成層圏でのプロセス間の相互作用の役割を明らかに出来た。
- ・ 化学気候モデルを用いてこれまでのオゾン層変動の再現と、将来のオゾン層変動に関する予測実験を実施、UNEP/WMOの「オゾン破壊に係わる科学的アセスメント」(2002, 2006)

に数値実験結果が反映された。

(2) 地球環境政策への貢献

- ・ UNEP/WMOの「オゾン破壊に関する科学アセスメント2002」第3章、第4章でCCSR/NIES化学気候モデル (T21バージョン) の成果が引用された。
- ・ UNEP/WMOの「オゾン破壊に関する科学アセスメント2006」第5章、第6章でCCSR/NIES化学気候モデル (T21およびT42バージョン) の成果が引用された。
- ・ 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についても掲載された。
- ・ 環境省環境調査研修所での地球環境保全研修でオゾン層の将来変動予測に関する成果の一部を紹介した。
- ・ 本課題に関係するアウトリーチ活動の一環として2006年10月に名古屋において開催した一般向けの講演会において、オゾンホール の現状と将来変動予測に関する講演を行い、研究成果を紹介した。

6. 引用文献

- 1) Shindell, D.T., D. Rind and P. Lonergan, Increased polar stratospheric ozone losses and delayed eventual recovery owing to increasing greenhouse-gas concentrations, *Nature*, 392, 589-592 (1998).
- 2) Numaguti, A., M. Takahashi, T. Nagajima and A. Sumi, “Development of an atmospheric general circulation model, in Climate system dynamics and modeling”, edited by T. Matsuno, Report of A New Program for Creative Basic Research Studies: Studies of Global Environmental Change with special reference to Asia and Pacific Regions, vol I-3, pp 1-27, Center for Climate System Research, University of Tokyo, (1995).
- 3) Takigawa, M., M. Takahashi and H. Akiyoshi, Simulation of ozone and other chemical species using a Center for Climate System Research/ National Institute for Environmental Studies atmospheric GCM with coupled stratospheric chemistry, *J. Geophys. Res.*, 104, 14003-14018 (1999).
- 4) Pawson, S., et al., “The GCM-reality intercomparison project for SPARC (GRIPS): Scientific issues and initial results”, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 81, 781-796 (2000).
- 5) Hines, C. O., Doppler-spread parameterization of gravity-wave momentum deposition in the middle atmosphere. Part2: Basic formulation, *J. Atmos. Solar-Terres. Phys.*, 59, 371-386 (1997)
- 6) Hines, C. O., Doppler-spread parameterization of gravity-wave momentum deposition in the middle atmosphere. Part2: Broad and quasi monochromatic spectra, and implementation, *J. Atmos. Solar-Terres. Phys.*, 59, 387-400 (1997)
- 7) Kylling, A., K. Stamnes, and S.-C. Tsay, A reliable and efficient two-stream algorithm for spherical radiative transfer: Documentation of accuracy in realistic layered media, *J. Atmos. Chem.*, 21, 115-150 (1995)
- 8) Akiyoshi, H., T. Sugita, H. Kanzawa, and N. Kawamoto (2004) Ozone perturbations in the Arctic

- summer lower stratosphere as a reflection of NO_x chemistry and planetary scale wave activity, *J. Geophys. Res.*, 109, D03304, doi:10.1029/2003JD003632.
- 9) Akiyoshi, H., S. Sugata, T. Sugita, H. Nakajima, H. Hayashi, J. Kurokawa, and M. Takahashi (2002) Low-N₂O air masses after the breakdown of the Arctic polar vortex in 1997 simulated by the CCSR/NIES nudging CTM, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 80, 451-463.
- 10) McFarlane, N. A. (1987), The effect of orographically excited gravity wave drag on the general circulation of the lower stratosphere and troposphere, *J. Atmos. Sci.*, 44, 1775-1800.
- 11) 阿部彩子: 大気海洋結合モデルによる温暖化等の気候変動研究, 第9章, 気候研究の最前線, 気候システム研究叢書 No.2, 東京大学気候システム研究センター, 117-130 (1997).
- 12) Shiogama, H., M. Watanabe, M. Kimoto, and T. Nozawa (2005) Anthropogenic and natural forcing impacts on ENSO-like decadal variability during the second half of the 20th century, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L21714, doi:10.1029/2005GL023871.
- 13) WMO (World Meteorological Organization), *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002*, Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No.47, 498pp., Geneva, 2003
- 14) IPCC (2001) *Climate Change 2001: The Science of Climate Change*, edited by J. T. Houghton et al., 944 pp., Cambridge Univ. Press, New York.
- 15) Shibata, K., M. Deushi, T. Sekiyama, and H. Yoshimura (2005) Development of an MRI chemical transport model for the study of stratospheric chemistry, *Papers in Geophysics and Meteorology*, 55, 75-119.

7. 国際共同研究等の状況

- WCRP (国際気候研究プログラム) 傘下の国際共同プログラムであるSPARC (成層圏プロセスとその気候に対する役割) のプロジェクトの一つであるCCMVal (化学気候モデルの検証プロジェクト) に参画、化学気候モデルの国際比較に貢献している。
- UNEP/WMOの「オゾン破壊に関する科学アセスメント2002」の第3章、4章の共著者として参画。
- UNEP/WMOの「オゾン破壊に関する科学アセスメント2006」の第5章、6章の共著者として参画。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文 (査読あり) >

- 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) 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”
- 4) 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".
- 5) 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".
 - 6) Kawatani, Y., and M. Takahashi: *J. Meteor. Soc. Japan*, 81, 113-126 (2003). "Simulation of the Baiu front in a high resolution AGCM".
 - 7) Sato N., and M. Takahashi: *Theor. Appl. Mech. Japan*, 52, 109-115 (2003). "Formation mechanism of vorticity anomalies on the subtropical jet in the midsummer northern hemisphere".
 - 8) 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".
 - 9) 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".
 - 10) 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".
 - 11) 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".
 - 12) 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".
 - 13) 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 Arctic oscillation index".
 - 14) 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 specificity on stratospheric chemistry and dynamics over Antarctica".
 - 15) 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".
 - 16) 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”.

- 17) 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”.
- 18) 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.”
- 19) 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.”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 高橋正明：「化学天気予報」、パリティ、2003年1月号、57-59.
- 2) 高橋正明：天気、50, 641-643 (2003)
「『気候-化学相互作用に関する SPARC-IGAC 合同ワークショップ』報告」
- 3) 河本望, 廣岡俊彦, 秋吉英治, 渡辺真吾：第 14 回大気化学シンポジウム研究集会講演集, 名古屋大学太陽地球環境研究所, 106-109 (2004). 「大気大循環モデル中のオゾン場に見られる北半球夏季の波動成分について」
- 4) M. Takahashi and T. Nagashima, 2005, Reports of CAWSES meeting, Effects on middle atmosphere by the 11-year solar cycle –Chemical climate model studies-, p5-6.
- 5) Kawamoto, N., T. Hirooka, and S. Watanabe, 2004: Proceedings of the XX Quadrennial Ozone Symposium, 768-769, “Ozone variability and normal mode Rossby waves in Northern Hemisphere”.
- 6) 河本望, 廣岡俊彦, 渡辺真吾, 岩尾航希：第 15 回大気化学シンポジウム研究集会講演集, 名古屋大学太陽地球環境研究所, 89-92 (2005) 「北半球夏季のオゾン場に見られる西進波について」
- 7) 永島達也 (2005): 数値モデルにおける気候と大気化学の相互作用、2005、平成 16 年度 第 15 回大気化学シンポジウム（名古屋大学太陽地球環境研究所、豊橋、2005 年 1 月 5-7 日）講演集、24-27
- 8) 向川均, 廣岡俊彦：科学, 岩波書店, 75, 1172-1176 (2005). “成層圏の変動を利用した中長期予報は可能となるか? –新たな視点の必要性.”
- 9) 黒川純一、秋吉英治、永島達也、中根英昭、増永浩彦、中島映至、高橋正明、大気球面形状の考慮がオゾンホールに与える影響の化学–放射–力学相互作用、第 15 回大気化学シンポジウム研究集会講演集、97-100 (2005) 吉識宗佳・秋吉英治：第 15 回大気化学シンポジウム (2005) 「北極域夏期におけるオゾン波状構造年々変動の解析」
- 10) Akiyoshi, H., L. B. Zhou, and M. Takahashi, Northern hemisphere lower stratospheric N₂O distributions in the early and late polar vortex breakup years, CGER's Supercomputer Activity Report, 13, 3-13 (2006).
- 11) 秋吉英治、吉識宗佳、永島達也、今村隆史、L. B. Zhou、高橋正明、黒川純一、滝川雅之、化学気候モデルバリデーション(CCMVal)シナリオに基づいたオゾン層変動の数値実験、第 16 回大気化学シンポジウム研究集会講演集、64-67 (2006)

- 12) 秋吉英治、坂本圭、永島達也、今村隆史、2100年までのオゾン層将来予測実験、第17回大気化学シンポジウム研究集会講演要旨集、30-31 (2007)
- 13) 坂本圭、秋吉英治、永島達也、L. B. Zhou、高橋正明、太陽11年周期変動に対応する熱帯下部成層圏オゾンの変動に関する解析、第17回大気化学シンポジウム研究集会講演要旨集、33-34 (2007).

(2) 口頭発表 (学会)

- 1) M. Takahashi, K. Sudo and M. Takaigawa: Swiss-Japan Ozone workshop, Interlaken, Switzerland, 2002. "Tropospheric chemistry and its changing processes in a global chemical model"
- 2) M. Takahashi and K. Sudo, M. Takigawa, T. Nagashima and H. Akiyoshi: Climate-chemistry initiative discussions, Zurich, Switzerland, 2002. "Climate-chemistry in chemical AGCMs"
- 3) 黒川純一・秋吉英治・永島達也・中根英昭・増永浩彦・中島映至・高橋正明：日本気象学会、大宮、2002年。「CCSR/NIES 成層圏ナッジング化学輸送モデル及び光化学結合モデルへの大気球面効果の導入」
- 4) T. Nagashima: The 2002 GRIPS workshop, Tsukuba, Japan, 2002. "Future ozone development calculated by a chemical GCM"
- 5) 永島達也.; SMILES シンポジウム, 晴海アイランドトリトンスクエア, 東京, 2002年。「成層圏オゾン層の将来予測実験と、その今後の課題」
- 6) T. Nagashima: The first Japan-UK workshop on climate models, Tokyo, Japan, 2002. "Stratospheric chemistry model"
- 7) T. Nagashima, M. Takahashi, M. Takigawa, and H. Akiyoshi: International symposium on stratospheric variations and climate, Fukuoka, Japan, 2002. "An estimation of the future development of the ozone layer by a coupled chemistry-climate model".
- 8) M. Takigawa, M. Takahashi, and H. Akiyoshi: Internatinal Symposium on Stratospheric Variations and Climate, Fukuoka, Japan, 2002. "Simulation of stratospheric sulfuric acid aerosol using CCSR/NIES AGCM with coupled chemistry: The impact of Pinatubo aerosol on climate"
- 9) K. Iwao and T. Hirooka: XXIII General Assembly of IUGG, Sapporo, Japan, 2003. "Dynamical investigation of ozone mini-holes during winter of Northern Hemisphere"
- 10) T. Nagashima: XXIII General Assembly of IUGG, Sapporo, Japan, 30 June-11 July 2003. "Solar effects in the stratospheric ozone estimated by a chemistry-climate model"
- 11) Hirooka, T., S. Watanabe and K. Iwao: Workshop on process-orientated validation of coupled chemistry-climate models, Grainau, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 2003. "Interannual variations of polar ozone losses and the general circulation"
- 12) 岩尾航希, 廣岡俊彦: 2003年度日本気象学会秋季大会 (2003)。「等温位面上の渦位を用いたオゾンのマッピング」
- 13) 河本望, 廣岡俊彦, 渡辺真吾: 2003年度日本気象学会秋季大会 (2003)。「大気大循環モデル中のオゾン場に見られる北半球夏季の波動成分について」
- 14) 梶山絵理, 廣岡俊彦, 三好勉信: 第18回大気圏シンポジウム, 宇宙科学研究所 (2004)「近年の赤道域準2年振動(QBO)と半年周期振動(SAO)について」

- 15) 北村美沙子, 廣岡俊彦: 2003 年度日本気象学会九州支部発表会 (2004) 「オゾンホールの変動について」
- 16) 永島達也: 日本気象学会 2003 年秋季大会 (2003) 「太陽活動 11 年周期変動の成層圏への影響～化学気候モデルを用いた考察～」
- 17) 永島達也: 第 4 回宇宙天気/気候シンポジウム (2003) 「太陽活動 11 年周期変動が中層大気に及ぼす影響 - 化学気候モデルを用いたアプローチ」
- 18) S. Watanabe and T. Nagashima.: Chapman conference on gravity waves processes and parameterization, Hawaii, USA, 2004. "Seasonally and Geographically Varying Wave Source for a Doppler-spread Parameterization Derived from a High-resolution General Circulation Model Experiment; (I) Propagation Direction, Amplitude Distribution, and Saturation of Gravity Wave Spectrum".
- 19) 永島達也: 第 7 回 SELIS 横断セミナー (2004) 「太陽の変動が大気に及ぼす影響: 数値モデルを用いた研究」
- 20) N. Kawamoto, T. Hirooka and S. Watanabe, 2004: XX Quadrennial ozone symposium, 1-8 June 2004, Kos, Greece. "Ozone variability and normal mode Rossby waves in Northern Hemisphere".
- 21) N. Kawamoto, T. Hirooka K. Iwao and S. Watanabe, 2004: 35th COSPAR Scientific Assembly, 18 - 25 July 2004, Paris, France. "Traveling Rossby waves observed in ozone and dynamical fields in northern hemisphere summer".
- 22) 河本望, 廣岡俊彦, 渡辺真吾, 岩尾航希: 2004 年度気象学会秋季大会 (2004) 「北半球夏季のオゾン場に見られる西進波について」
- 23) T. Hirooka, A. Mori, H Mukougawa and Y. Kuroda: 3rd SPARC General Assembly, 1-6 August 2004, Victoria, Canada. "A plausible mechanism of the major stratospheric warming in the Southern Hemisphere of 2002 as inferred from numerical prediction model simulation".
- 24) T. Hirooka, M. Kitamura and Y. Kuroda: AGU Fall Meeting, 13 - 17 December 2004, San Francisco, USA. "Plausible Solar Influences on Wave Activities in the Middle and Lower Atmosphere".
- 25) 北村美沙子, 廣岡俊彦: 第 19 回大気圏シンポジウム (2005) 「成層圏における大気潮汐波について」
- 26) 一丸知子, 廣岡俊彦, 向川均: 第 19 回大気圏シンポジウム (2005) 「成層圏突然昇温の予測可能性について」
- 27) T. Hirooka, T. Ichimaru and H. Mukougawa, 2005: 13th Conference on Middle Atmosphere, American Meteorological Society, 13-17 June 2005, Cambridge MA, USA. "Predictability of stratospheric sudden warming events in the Northern Hemisphere".
- 28) T. Hirooka, T. Ichimaru and H Mukougawa: IAGA 2005 Scientific Assembly, 18-29 July 2005, Toulouse, France. "Predictability of stratospheric sudden warmings in the Northern Hemisphere as inferred from ensemble forecast data".
- 29) K. Iwao and T. Hirooka: CCMVal 2005 Workshop, 17 - 19 October 2005, Boulder CO, USA. "Dynamics of ozone mini-hole formation in both hemispheres".
- 30) H. Akiyoshi, M. Yoshiki, T. Nagashima, J. Kurokawa, M. Takahashi, M. Takigawa, and T. Imamura, Calculation of ozone variation using CCSR/NIES CCM with T42 horizontal resolution and bromine

- chemistry, CCMVal wrokshop 2005, Boulder, USA, 2005 年 10 月 17–19 日; CCMVal 2005 - agenda and abstracts p.19.
- 31) L. B. Zhou and H. Akiyoshi, Mid- and high- latitude lower stratospheric N2O distributions related to the Arctic vortex breakup, CCMVal wrokshop 2005, Boulder, USA, 2005 年 10 月 17–19 日; CCMVal 2005 - agenda and abstracts p.16.
- 32) M. Yoshiki and H. Akiyoshi, Interannual variations in ozone perturbations in the Arctic summer lower stratosphere, CCMVal wrokshop 2005, Boulder, USA, 2005 年 10 月 17–19 日; CCMVal 2005 - agenda and abstracts p.3-4.
- 33) M. Kitamura, T. Hirooka and K. Shibata: AGU Fall Meeting, 4 - 10 December 2005, San Francisco, USA. “Tidal waves in the middle atmosphere and their modulation caused by the 11-year solar cycle”.
- 34) 一丸知子, 廣岡俊彦, 向川均: 2005 年度気象学会春季大会 (2005) 「成層圏突然昇温の予測可能性 – 2001/02 年と 2003/04 年の事例の比較」
- 35) 北村美沙子, 廣岡俊彦, 柴田清孝: CAWSES Workshop 2005 (2005) 「Tidal waves in the stratosphere and lower mesosphere and their modulation due to the 11-year solar cycle」
- 36) 北村美沙子, 廣岡俊彦, 柴田清孝: 第 20 回大気圏シンポジウム (2005) 「成層圏及び下部中間圏における大気潮汐波と太陽活動との関連について」
- 37) M. Takahashi and T. Nagashima, 2005, CAWSES meeting at Irigo, Effects on middle atmosphere by the 11-year solar cycle –Chemical climate model studies-
- 38) T. Hirooka, M. Kitamura and K. Shibata: SCOSTEP 11th Quadrennial Solar Terrestrial Physics Symposium, 5 - 10 March 2006, Rio de Janeiro, Brazil. “Solar influence on tidal wave appearance in the middle atmosphere”
- 39) 秋吉英治、吉識宗佳、永島達也、L. B. Zhou、今村隆史、高橋正明、黒川純一、滝川雅之、CCSR/NIES 化学気候モデルを用いたオゾン層の将来予測実験、日本気象学会、東京、2006 年 5 月 21-24 日 ; 2006 年度春季大会講演予稿集(89)、106
- 40) 秋吉英治、坂本圭、オゾン層将来予測実験で得られたオゾンホール小さい年についての解析、日本気象学会、名古屋、2006 年 10 月 25-27 日 ; 2006 年度秋季大会講演予稿集(90)、205
- 41) 坂本圭、秋吉英治、永島達也、L. B. Zhou、高橋正明、太陽活動に対する熱帯下部成層圏のオゾンの変動、日本気象学会、名古屋、2006 年 10 月 25-27 日 ; 2006 年度秋季大会講演予稿集(90)、206
- 42) L. B. Zhou、秋吉英治、北半球中緯度におけるオゾン QBO の経度依存性、日本気象学会、名古屋、2006 年 10 月 25-27 日 ; 2006 年度秋季大会講演予稿集(90)、207
- 43) 秋吉英治、オゾン層の破壊と回復のメカニズム、太陽紫外線防御研究委員会第 17 回シンポジウム「生物環境としての太陽紫外線」、東京、2007 年 3 月 16 日 ; 講演要旨集、13-15
- 44) T. Hirooka, T. Ichimaru and H. Mukougawa: Aegean Conference on 20 Years of Nonlinear Dynamics in Geosciences, 11 - 16 June 2006, Rhodes, Greece. “Hindcast AGCM Experiments on the Predictability of Stratospheric Sudden Warming”.
- 45) H. Mukougawa, T. Hirooka and Y. Kuroda: Aegean Conference on 20 Years of Nonlinear Dynamics in Geosciences, 11 - 16 June 2006, Rhodes, Greece. “Predictability of stratospheric sudden warmings

as inferred from ensemble forecast data”.

- 46) T. Hirooka, M. Kitamura, K. Shibata and H. Akiyoshi: The First SOLARIS Meeting, 4-6 October 2006, Boulder CO, USA. “Solar influence on tidal wave appearance in the middle atmosphere as inferred from CCM simulations”.
- 47) 坂井亜紀子, 廣岡俊彦: 2006 年度気象学会春季大会 (2006)「南半球成層圏における東西波数 2 の東進波について」
- 48) 一丸知子, 廣岡俊彦, 向川均: 2006 年度気象学会秋季大会 (2006)「2005/06 年北半球冬季の成層圏突然昇温とその予測可能性」
- 49) 北村美沙子, 廣岡俊彦, 柴田清孝, 秋吉英治: 2006 年度気象学会秋季大会 (2006)「成層圏及び下部中間圏における大気潮汐波について(2)」
- 50) 一丸知子, 廣岡俊彦, 向川均: 2006 年度月例会「長期予報と大気大循環」(2006)「2005/06 年冬季成層圏突然昇温と予測可能性」
- 51) 廣岡俊彦, 一丸知子, 向川均: 平成 18 年度「異常気象と長期変動」研究集会 (2006)「成層圏突然昇温の生起パターンと予測可能性について」
- 52) 向川均, 廣岡俊彦, 黒田友二: 平成 18 年度「異常気象と長期変動」研究集会 (2006)「成層圏突然昇温の予測可能性に関する GCM 数値実験」
- 53) 永柄恵, 廣岡俊彦: 第 21 回大気圏シンポジウム (2007)「成層圏突然昇温に伴う子午面循環について」
- 54) 廣岡俊彦: CAUSES/IHY Workshop (2007)「Recent evolution of studies on atmospheric responses to solar variability」

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

- 1) 一般講演会「オゾン層破壊問題－今後の予測と紫外線影響－」、(2006年10月28日、ウィル あいち、観客90名)

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 日本経済新聞夕刊 (2002年5月28日、18面) に「オゾン層、40年後回復」という見出しで掲載。
- 2) 共同通信の配信記事として東京新聞夕刊 (2002年5月28日 10面)、福井新聞 (2002年5月29日 1面) 等に掲載。
- 3) 平成16年2月18日の朝日新聞朝刊科学面の特集「南極に迫る」第3回目として、成層圏オゾン将来見通し実験に関する記事が掲載。
- 4) 秋吉英治、オゾン層 2 「20年で進んだ破壊」、ふしぎを追って－研究室の扉を開く－、常陽新聞掲載コラム記事、2005年9月21日
- 5) 毎日新聞 (2006年5月20日、全国版) (オゾンホール長期変動予測について)
- 6) 読売新聞 (2006年5月20日、全国版) (オゾンホール長期変動予測について)
- 7) 日本経済新聞 (2006年5月20日、全国版) (オゾンホール長期変動予測について)

- 8) 東京新聞（2006年5月20日）（オゾンホールの長期変動予測について）
- 9) 日刊工業新聞（2006年5月22日、全国版）（オゾンホールの長期変動予測について）
- 10) 朝日新聞（2006年5月30日、全国版）（オゾンホールの長期変動予測について）
- 11) 日刊工業新聞（2006年7月31日、全国版）（オゾンホールの長期変動予測について）

（6）その他

なし