

A-10 衛星観測データを利用した極域オゾン層破壊の機構解明に関する研究

(4) 化学輸送モデルを用いた極域オゾン破壊に関する研究

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

秋吉英治

大気圏環境研究領域 大気物理研究室

杉田考史

アジア自然共生研究グループ 広域大気モデリング研究室

菅田誠治

名古屋大学大学院環境学研究科

神沢博

<研究協力者>

独立行政法人国立環境研究所

成層圏オゾン層変動研究プロジェクト オゾン層モデリング研究チーム

吉識宗佳

平成16～18年度合計予算額 21,200千円

(うち、平成18年度予算額 6,200千円)

[要旨] オゾン破壊を起こす極渦大気が、周囲の大気からどの程度孤立した状態にあるのかを調べるため、化学輸送モデルを用いた数値実験と時間閾値解析法によって、極渦大気の水平方向と鉛直方向の輸送量の解析を、ILASの観測データが存在する1997年について行った。時間閾値解析法によって、1997年1月1日～4月30日の期間中、極渦内からその外側への空気塊の4回にわたる大流出イベントがあったことがわかった。同じ年の南極渦では時間解析閾値法によってこのような流出イベントは見つからなかったことから、非常に安定していた1997年の北極渦でさえも、南極に比べると水平方向の極渦内外の空気の交換は大きいことがわかった。極渦内外空気の水平方向の混合によって、極渦の境界のすぐ外側の 55° ～ 65° Nの等価緯度帯では、450 Kの高度で20～25%、365～525 Kの下部成層圏の範囲では、15 DU程度オゾン濃度が低下することがわかった。次に鉛直方向の輸送に関しては、時間閾値解析法によって極渦空気の鉛直フラックスを計算した。その結果、1月～4月の期間の下降流速の平均値として約1.6 km/monthの値が得られた。極渦空気の孤立性は、このような冬の間の極渦内外の空気の水平方向の混合と、鉛直方向の輸送によって決定されるが、1997年の北極渦の場合、水平方向の極渦空気の入れ替わりは鉛直方向に比べて一桁小さいことがわかった。また、上述の極渦内鉛直速度では北極渦が成立している4～5ヶ月の間に極渦内の空気がすべて入れ替わってしまうことはないことが示唆される。つまり、北極渦は極渦の周りの大気に対してオゾン濃度減少のFlowing Processorとして完全に働いているわけではないことがわかった。しかしながら、極渦周辺の限られた等価緯度帯では極渦成立中にオゾン濃度低下の影響を起こしており、この部分はFlowing Processorとしての働きをしている。一方、1997年5月上旬の北極渦崩壊時には極渦内のオゾン濃度が低下した空気を周囲にばらまくのでContainment Vesselとしての特性も持ち合わせている。以上の結果はAkiyoshi et al. (2006, JGR)に発表された。

[キーワード] 極渦、孤立性、オゾン破壊、化学輸送モデル、時間閾値解析

1. はじめに

極域成層圏では、冬季に極渦と呼ばれる低気圧性の大規模な渦が形成される。この極渦の形成によって、極域の大気は中緯度の大気との混合が妨げられ、一種の孤立状態になる。この孤立した大気中で極域特有の化学反応が起こり、大規模なオゾン破壊が起こる（オゾンホール）。極域でのオゾン破壊のメカニズムについては、これまでに多くの大気化学方面からの研究がなされ、その結果、極成層圏雲と呼ばれる粒子が低温の環境下で形成され、その表面で不均一化学反応が起こり、HClやClONO₂などの反応性の低い分子に蓄えられている塩素原子をCl₂やHOClなどのより反応性の高い分子に変換し、塩素原子によるオゾン破壊触媒サイクルが働き、オゾンが破壊されるということが明らかとなった。（例えば、Solomon et al., 1986¹；Solomon, 1999²；WMO, 1994³, 1998⁴, 2002⁵など多数）。サブテーマ3でも、ILAS IIによる極域周辺での高い時間分解能の観測を行い、その結果を解析し、極成層圏雲の生成と、その重力落下による脱室過程を通じた極渦大気の特異な環境下での化学反応によるオゾン破壊の実態とそのメカニズムを明らかにされている。一方で、観測された大きな化学的オゾン破壊を可能にする空気の器としての極渦に関する大気力学的な研究も進んでおり、特に下部成層圏で、化学反応のタイムスケールが非常に長いメタンや亜酸化窒素に着目して、極渦の中の空気の下降速度を見積もる研究(Schoeberl et al., 1995⁶；Kawamoto and Shiotani, 2000⁷) や、極渦空気、その周りの大気との混合に関する研究（例えば、Waugh et al., 1997⁸）も行われている。このような極渦の力学・物質輸送の研究は、化学過程によって引き起こされる極域のオゾン濃度低下が、極渦の外からの空気の進入によってどの程度緩和されるかという疑問に対して答えるものであるし、また一方、極渦内の特有な化学反応によってオゾン濃度の低下した空気、あるいは、オゾン破壊を起こし得る微量成分を多く含んだ空気が、極渦の外側の大気とどの程度混合し、極渦の外に運ばれた空気はそのオゾン濃度に対してどの程度の影響を及ぼすのか、という問いに対する答えも提供するものとして期待されている。結局、観測されるオゾン濃度は、先に述べた化学過程によるオゾン破壊と他の場所からのオゾンの輸送過程との両方の過程によって説明されるべきものなので、その意味からも、極渦の力学と物質輸送の観点からのアプローチは必要である。

そこでこのサブテーマでは、空気分子の軌跡を解析して極渦大気の移流・混合を見積もる手法と、3次元化学輸送モデルのアウトプットであるオゾンなどの大気微量成分の空間分布の解析とを組み合わせ、極域特有の化学反応によってオゾン濃度の低下した極渦内の空気が、極渦外のオゾン濃度に与える影響を定量的に把握する。

2. 研究目的

オゾン破壊を起こす極渦大気が、周囲の大気からどの程度孤立した状態にあるのかを調べるため、時間閾値解析法と化学輸送モデルを用いた数値実験によって、極渦大気鉛直方向と水平方向の輸送量を定量的に把握する。計算された鉛直方向と水平方向の輸送量から、極渦が形成されている間の極渦空気の周りの空気との交換（混合）のタイムスケールを見積もる。この極渦空気交換のタイムスケールが、極渦の形成期間（通常北半球では3～4ヶ月、南半球では5～6ヶ月）に比べて長ければ、極渦空気は周囲の大気から遮断された状態にあると言え、極渦はContainment Vesselである（まわりから遮断された器の中でオゾン破壊が起こる）という概念が成り立つ。一

方、極渦空気交換のタイムスケールが、極渦の形成期間に比べて短い場合は、極渦の中でのオゾン破壊によりオゾン濃度の薄まった空気は極渦の外へ排出され、その一方で外からは高濃度オゾンの供給があるという状況の下でのオゾン破壊 (Flowing Processor) ということになる。このように化学的オゾン破壊反応を起こす器としての極渦空気の動態の描像を確立することによって、ILAS、ILASIIなどによって観測された極渦内空気やその周りの空気のオゾン濃度の変動のメカニズムを理解することを目的とする。

3. 研究方法

3.1 時間閾値解析法

この方法は、空気粒子のトラジェクトリーを解析し、トラジェクトリーが境界 (本研究では北極渦の境界) を横切る粒子の数を勘定する。ただし、すべての時間スケールの粒子の境界超えを数えることはせず、ある閾値以上の時間スケールの粒子の境界超えのみを勘定する。本研究では閾値を1日、3日、7日、15日に設定し、計算を行った。例えば、閾値7日の場合は、極渦の内側に7日以上滞在した粒子が極渦の境界を越え、極渦の外側に7日以上滞在したとき、極渦の内側から外側へ粒子が通過したとみなす (Sugata, 2000⁹⁾)。

空気粒子のトラジェクトリーの計算は、ECMWF_operational気象データ ($2.5^\circ \times 2.5^\circ$ 、1000 hPa ~ 10 hPaの14層、6時間毎) の東西風速、南北風速、鉛直等圧面速度を直接使って計算したものと、ECMWF気象データを用いた化学輸送モデルのこれらの量のアウトプットを使って計算したものと、2種類行った。化学輸送モデルの気象データのアウトプットは、もともとのECMWFデータそのものの値と若干異なる場合があるが、本研究の範囲内では、時間閾値計算法による計算結果にはほとんど差がないことを確認した。よって、以後では、化学輸送モデルの気象データのアウトプットを用いた時間閾値解析の結果を示す。化学輸送モデルのアウトプットを用いることで、後で行う、極渦内光化学の極渦外への影響に関する化学輸送モデルによる数値実験の結果の考察との一貫性を保つことができる。時間閾値解析は1996年12月~1997年5月の期間について行った。まず、Nash et al. (1996)¹⁰⁾の等価緯度上での渦位の緯度勾配を利用する極渦境界決定法に従って、400 K~700 Kの各温位面上での極渦境界を6時間おきのデータに関して定めた。次に、多数のトレーサー粒子 (空気粒子) のトラジェクトリー計算を行った。粒子の初期位置は $20^\circ \sim 89^\circ$ で 1° おき、経度方向には赤道で 1° おきでそれ以外の緯度では $\cos(\text{緯度})$ に比例して高緯度では間引いた。鉛直方向には、100 hPaから5 hPaまで、5 hPaおきに20層配置した。トレーサー粒子の個数は、1層あたり13743個である。トラジェクトリーの計算は、1ヶ月毎初期値をずらしながら、各々の初期値に関して2ヶ月間行った。すなわち、1月の計算結果は、12月16日から2月15日までの2ヶ月間の計算により得られる。トレーサー粒子の6時間毎の位置、温位、渦位を記録し、それを基に時間閾値計算を行った。

3.2 CCSR/NIESナッジング化学輸送モデル

CCSR/NIESナッジング化学輸送モデル (ナッジングCTM) は、CCSR/NIES 大気大循環モデル (AGCM) に光化学計算ルーチンを搭載した化学気候モデル (Takigawa et al., 1999¹¹⁾) を、水平方向に分解能を上げ ($T42$ 、 $2.8^\circ \times 2.8^\circ$)、臭素化合物と硫黄化合物に関する光化学反応を導入し (Akiyoshi, 2000¹²⁾; Takigawa et al., 2002¹³⁾)、さらにナッジング (データ同化の簡便法) 計算のルーチン

を加えたものである (Akiyoshi et al, 2002¹⁴⁾, 2004¹⁵⁾)。ナッジングに使うデータとして、ECMWF_Operationalデータの東西風速、南北風速、気温を使った。1996年11月21日から1997年6月1日までの期間について、北極渦の境界の位置を判定しそのデータを使って次の3つの数値実験を行った。

実験1：化学輸送モデルの全領域で化学過程を働かせる。

実験2：上部対流圏から下部成層圏にあたる高度220 hPa～8.6 hPaの間の極渦の内側でのみ化学過程を働かせ、外側では、オゾンを化学反応を起こさないトレーサーとして計算する。

実験3：高度220 hPa～8.6 hPaの間の化学輸送モデルの全領域で、オゾン化学反応を起こさないトレーサーとして計算する。

これらの実験の設定について、下表に簡単にまとめて示す。

表1：3つの数値実験のためのオゾン化学項の設定。○はON、×はOFFを表す。

| | 極渦内 | 極渦外 |
|--------------|-----|-----|
| (1) コントロール実験 | ○ | ○ |
| (2) トレーサー | × | × |
| (3) 極渦内化学ON | ○ | × |

これらの3つの実験ではすべて同一の初期値を用いるが、その初期値は、あらかじめ分解能の粗いT21 (5.6°×5.6°) モデルで微量成分分布の計算を1993年から10年間行った結果の、1996年11月21日のアウトプットを基に作成した。実際の計算はこの初期値を使って1996年11月21日から始め、11月30日までの10日間はすべて実験1の設定でモデルを走らせ(助走期間)、12月1日以降、それぞれの実験に応じた設定が働くようにした。

4. 結果・考察

(1) 時間閾値解析法による極渦内空気の輸送量の解析

1) 水平方向の解析

a 時間閾値依存性

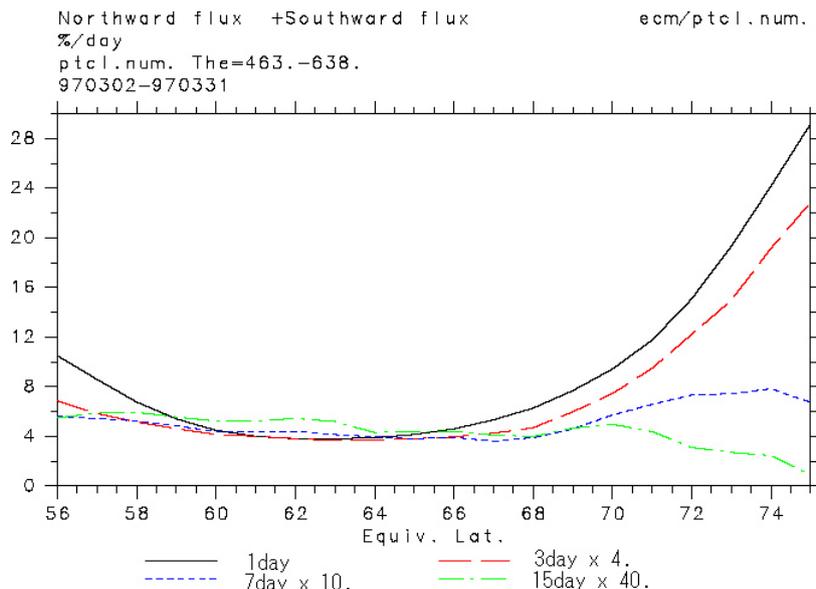


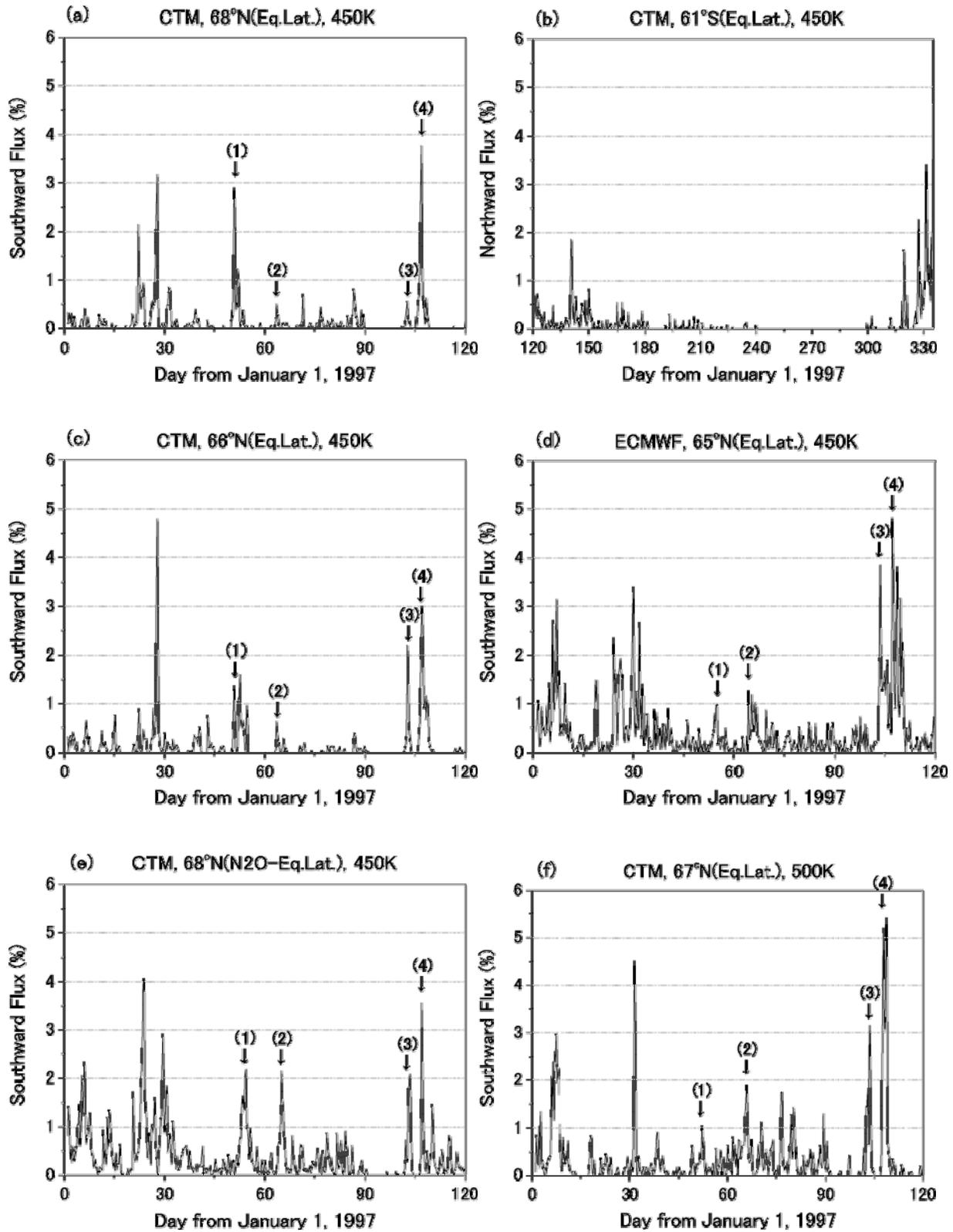
図1 時間閾値を1, 3, 7, 15日にしたときの各判定等価緯度における450-650K温位面間の大気塊の有効南北通過の1997年3月一ヶ月の合計個数をその等価緯度以北の大気塊個数で正規化し一日あたり何%の大気塊が内外で入れ替わるかを単位として示した図。(実線:1日、破線:3日、点線:7日、一点鎖線:15日) 図の縦スケールをおおよそ揃えるために閾値3日の図は値を4倍、7日は10倍、15日は40倍にしている。

時間閾値解析法では、3.1で述べたとおり時間閾値を設定する必要がある。時間閾値は一意的に決まるわけではなく、解析しようとする現象に応じて最適な値を選ぶという性質のものである。

まず、図1に1997年3月一ヶ月に温位450Kから650Kまで層を通過する有効大気塊通過数の南北両方向合計の緯度・時間閾値依存性を見たものである。時間閾値が1日のときに南北通過が極小となる等価緯度はおおよそ63度である。時間閾値が大きくなるにつれ極小を取る等価緯度は北極側にずれる。時間閾値が7日のときには66度から67度付近で極小を取る。時間閾値が15日のケースでは等価緯度70度以北で通過数は単調減少となり、他のケースと異なる性質を示している。これは時間閾値がある程度大きくなると、極域の狭い領域に長い時間連続滞在することが困難になることに対応していると考えられる。Nashら²⁾の方法で判定された極渦の縁はこの時期おおよそ等価緯度66度付近に存在しており、時間閾値7日の結果とよい対応を示していることがわかる。

b 閾値7日を用いた1997年北極渦の時間閾値解析

図2(a)-(h)に、閾値7日を用いた1997年北極渦についての時間閾値解析の結果を示す。閾値をこの値に設定した理由は、前節の結果より閾値7日とおいた場合に、通過する空気粒子の数が最小となる等価緯度が極渦の境界と一致するためである。極渦の境界で空気の水平輸送が遮られることを考えると、この閾値の選択は極渦内外の空気輸送を調べるという目的に対して妥当と考えられる。



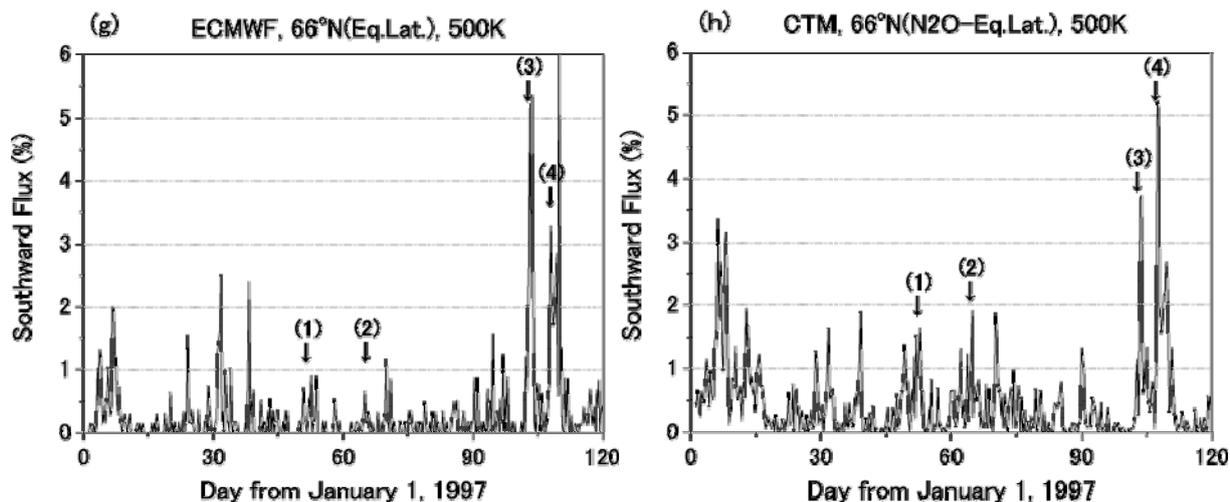


図2 閾値7日の時間閾値解析法で計算された極渦の境界を横切って極渦の内側から外側へ通過する空気塊粒子数の全粒子数に対する割合(%)。1997年1月1日～4月30日の高度450K((a)-(e))と500K((f)-(h))での結果が示されている。ただし、(b)は南極渦に関する結果で1997年4月1日～11月30日の期間を表す。図中の(1)～(4)は、この期間の顕著な極渦内から外への空気の流出イベントを表す。(a)化学輸送モデル、450K、北極渦の中間境界、(b)化学輸送モデル、450K、南極渦の中間境界、(c)化学輸送モデル、450K、北極渦の外側境界、(d)ECMWFデータ、450K、北極渦の中間境界、(e)化学輸送モデル、450K、N2O濃度の等価緯度分布で見た北極渦中間境界、(f)化学輸送モデル、500K、北極渦の中間境界、(g)ECMWFデータ、500K、北極渦の中間境界、(h)化学輸送モデル、500K、N2O濃度の等価緯度分布で見た北極渦中間境界

まず、図2(a)に、450K、等価緯度68°Nより北極側から赤道側へ南向きに流出するフラックスの、1月1日から4月30日までの時間変化を示す。フラックスは、境界内側の空気粒子の全個数に対して、内側から外側へ移動したとみなされた粒子の個数の比を%(パーセント)で表している。等価緯度68°Nは、CTMの気温と風速のアウトプットから計算された極渦中間境界の、この期間の平均等価緯度である。図には、閾値7日のフラックスの時間変化のみを示す。閾値7日より短い時間スケールのフラックスは、極渦周辺のlamina(層状構造)による短時間スケールの、境界の内側と外側間の粒子の行き来の影響を多大に受けていると考えられ、今考えている極渦の内側から外側への輸送によるオゾン濃度の変化の問題に関してはあまり重要ではない。また、7日より長い時間スケールのフラックスは、その絶対値がかなり小さくなるのでここでは示さない。図からわかるように、1997年の2月中旬から4月中旬にかけては、北極渦の内側から外側への空気の流出フラックスが比較的小さくなっており、このことは、この期間の北極渦が安定していた事実(Coy et al., 1997¹⁶)と一致する。また、1997年のこの期間の北極渦は過去に例がないくらい北極を中心にはほぼ同心円状に位置し、南極渦によく似て非常に安定していた(Nakane, 2000¹⁷)。図中の(1)～(4)の番号は、この期間中の比較的大きな極渦空気の境界内側から外側への流出イベントを時間の順に示したものである。北極渦が過去に例のないほど安定していたこの期間中でも、極渦がある程度乱され、極渦内空気の極渦外への流出イベントが存在していたことがわかる。このことは、南極渦と比較するとよくわかる。図2(b)には、南極渦の中間境界、等価緯度61°Sにおける1997年4月～11月までの極渦内から極渦外への北向きフラックスを、図2(a)と同様に示す。図から明らかなように、南極渦が安定する6月から10月にかけてフラックスの値は図2(a)に示した北極渦の値に比べるとかなり小さく、また、この期間に流出イベントらしきものは見あたらない。

い。このことは、南極渦の安定性が安定と言われた1997年の北極渦よりさらに高いことを表している。

また、これらの450Kでの北極渦内大気の流れイベントの同定の信頼性を上げるため、他の境界についても時間閾値解析を行った。図2(c)は、等価緯度66°Nでのフラックスである。この等価緯度は、CTMの気温と風速のアウトプットから計算された北極渦の外側境界（渦位の等価緯度に関する二次微分がゼロの点、変曲点）、に対応する等価緯度である。図2(a)の中間境界での値と比べると、全般的にフラックスの値が若干小さくまた、4つの流出イベントのフラックスの値の間の大小関係も異なるが、この4つのイベントに関しては明らかに他の期間のフラックスより値が大きく、中間境界と同様に同定できた。図2(d)には、ECMWFデータの気温と風速データそのものを使って計算した、450Kの極渦中間境界における極渦の内側から外側へのフラックスを示す。この場合の中間境界の等価緯度は65°Nである。図2(a)のCTMのアウトプットから計算した中間境界でのフラックスに比べると、全体的に値が大きくなっている。この両者の間のフラックスの値の違いは、1つには極渦の境界の等価緯度の違いによるが、もう一つには、鉛直風速の違いによるものと思われる。図2(a)の計算に使われた鉛直風速は、ECMWFの水平風速と気温を同化したCTMのアウトプットである。鉛直風速の違いは連続の式を通して水平風速の分布・大きさに影響を与える。ECMWFデータそのものの鉛直風速データの信頼性は、必ずしも高いわけではなく、どちらがより現実の大気を表しているかは今のところはっきりと言えない。このECMWFデータを直接使った時間閾値解析でも、4つの大きな流出イベントは明らかであり、同定できた。さらに、N₂O濃度でみた極渦の中間境界（N₂O濃度の等価緯度に関する勾配が最大となる等価緯度、(e)）についても、4つのイベントを同定できた。

さらに、500Kにおける境界についても時間閾値解析を行った。化学輸送モデルの北極渦の中間境界(f)、500KにおけるECMWFデータの中間境界(g)、500KにおけるN₂O濃度でみた極渦の中間境界(h)における流出量を調べて決定した。化学輸送モデルのアウトプットからの流出量の計算値と、ECMWFデータから計算した流出量の計算値との間に多少違いは見られるものの（(a)と(d)、(f)と(g)）、大流出イベントを特定するためにはその違いの影響がほとんど無いことがわかる。また、450Kと500Kとの間にも差はあるが、大流出イベントはどちらの高度にも共通してほとんど同じ日に起こっていることがわかる（(a)と(f)、(d)と(g)、(e)と(h)）

以上より、1997年の北極渦は非常に安定していたと言われているが（例えばCoy et al. (1997)）、時間閾値解析法による解析結果を見る限り、その存在期間中に大きな流出イベントが4回ほど起こり、その期間中は極渦が一時的に不安定な状態になったことがわかる。

ECMWFデータから計算した1997年1月～4月の北極渦境界（内側、中間、外側）の時間変動を図3に示す。図(a)および(b)から、1997年の北極渦は450Kおよび500Kの両高度で、1月から4月の間に大きくその大きさが変化することはなかったことがわかる。1997年の北極渦中間境界は、1月から4月まで等価緯度65°N付近にあったことがわかる。このように冬から春にかけての約4ヶ月の間中、極渦境界が一定の等価緯度付近に存在することは、北極域では極めて希で、例えば、Nakane(2000)の北極渦マップが示すように、通常は冬の初めまたは終わりに極渦が大きく変動し、そのときに極渦境界の等価緯度が大きく変化するような変動を示す。従って、1997年北極渦は南極渦に近い状態であったことがわかる。450 Kの図から、北極渦は2月中旬から4月中旬にかけて特に安定していたことがわかる。これは、この年のこの時期に北極域で低温域が現れオゾン破壊が進んだこと

と一致している (Terao et al., 2002¹⁸⁾)。500 Kでも同様な傾向が見られるが、全般的に450Kより安定していて、この期間中ほぼ一定の大きさを保っていたと言える。また、内側、外側境界も中間境界とほぼ同様な変動を示している。時間閾値解析法では、考える極渦体積を一定にする必要があるため、図の直線で示されるこの期間の境界の時間平均値を使って解析を行った。図2で示した時間解析閾値解析は、図3中の水平線で示したこの期間中の平均等価緯度で表される境界に対して行ったものである。図(c)および(d)は、化学輸送モデルの N_2O の等価緯度分布に対して定義した北極渦の中間境界の時間変化とその平均値である。それぞれ、図(a)および(b)と比較すると、渦位に関して定義した北極渦中間境界平均値とあまり変わらない結果となった。ただしその時間変動は渦位に関して定義した境界よりも大きい。また、等価緯度に関する二次微分より求める内側境界と外側境界は、 N_2O 濃度を使ったものと渦位を使ったものとは大きく異なるのでここでは示さない。

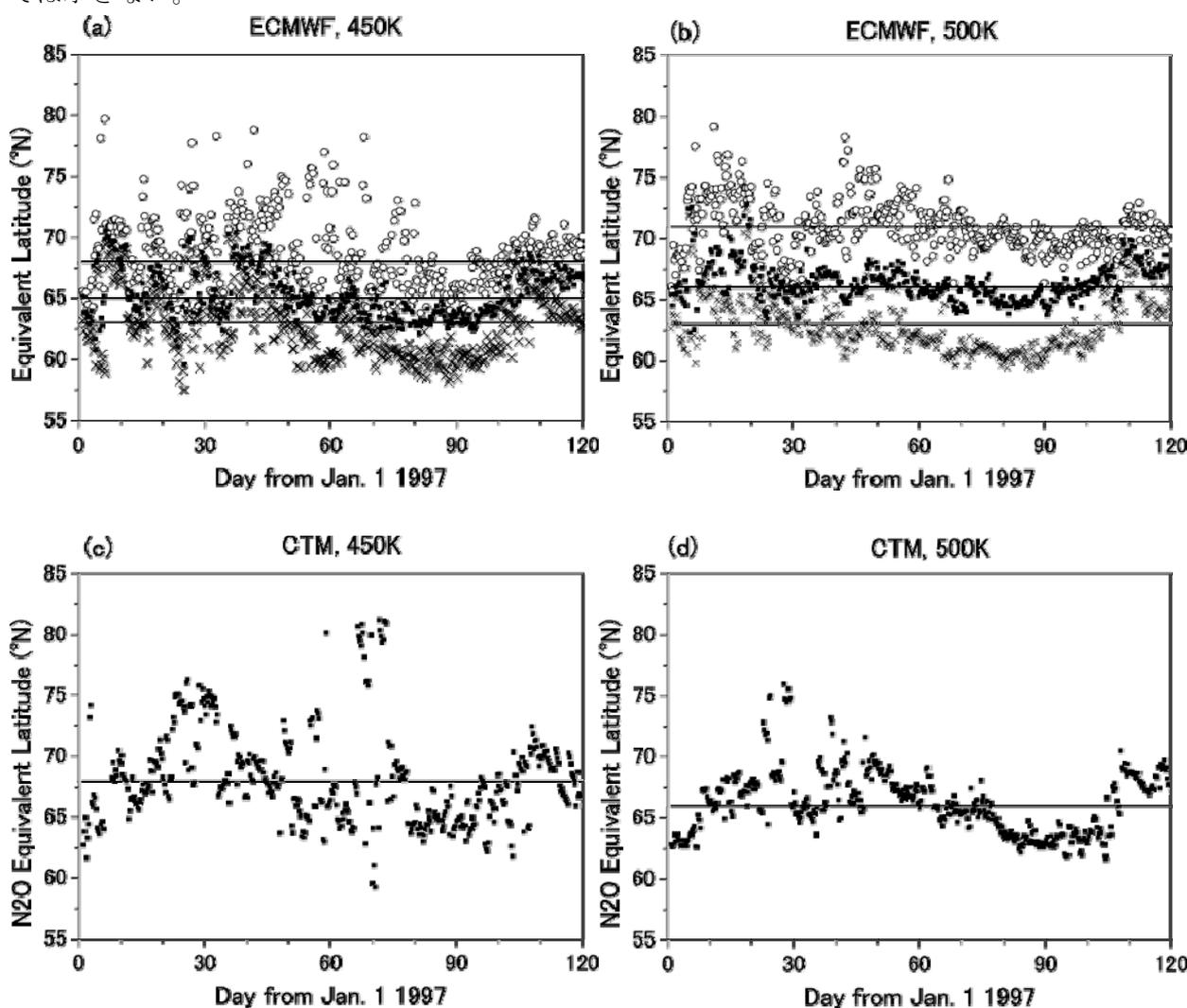


図3 北極渦境界の等価緯度の時間変動。1997年1月1日～4月30日までの変動を表す。(a)高度450KにおけるECMWFデータから計算された北極渦の内側境界 (○)、中間境界 (■)、外側境界 (×) とその平均値 (水平線)。(b)同じく500Kでの変動。(c) N_2O 分布から計算された北極渦の中間境界とその平均値。(d)同じく500Kでの変動。

2) 鉛直方向の解析—極渦内空気の鉛直下降速度

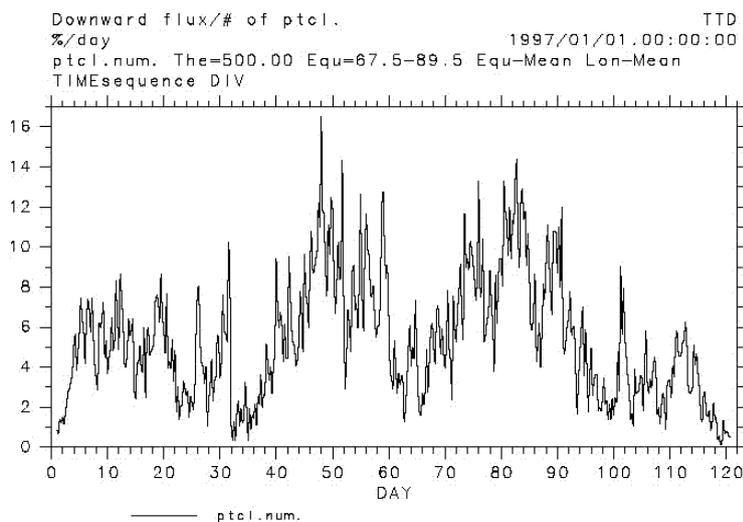


図4 時間閾値解析法で計算された等価緯度67度以北で500K面を通過した下向きフラックスの時間変化を示す。横軸は1997年1月1日から4ヶ月。500K～525K間の粒子数で正規化して一日あたり何パーセントの粒子が下方に抜けていくかで表している。

図4に閾値を7日に設定した時間閾値解析法によって解析された

1997年1月～4月の高度500Kにおいて等価緯度67度以北を下降した粒子のフラックスを示す。フラックスは500Kから525Kまでの25K間の粒子数で正規化して示している。図は、この25Kの高度範囲を1日あたり通過する粒子数のすべての粒子数に対する%で示しているの、すべての粒子がこの範囲を通過するには、その逆数で表される日数だけ要する（10%だと10日）。さらに、下部成層圏のこの季節では、25Kは約0.9 kmに相当する。これらのことを考慮すれば、下降流速度は、図から0.5 km/month～3.8 km/monthの間で変動

し、1月～4月の期間の平均値として約1.6 km/monthの値となった。この値は、Kawamoto and Shiotani (2000)が、成層圏における N_2O 体積混合比の鉛直分布の変化から求めた下降流速度、1.2-1.8 km/month とよく合致している。

また、下降フラックスは、水平方向のフラックスと比較すると約一桁その値が大きいことから、極渦安定期の内外の空気の出入りは、ほぼ鉛直方向のフラックスに限定して考えて良いことがわかった。ただし、詳しい解析の結果、短期間ではあるが水平方向にエピソード的に入出りの大きい期間があることもわかったので、その場合には注意を要する。

(2) 化学輸送モデルとILASデータを用いた極域オゾン破壊の極渦外への影響の解析

図5に、ILASによって観測された北極渦のすぐ外側 10° の幅の等価緯度帯 ($55^\circ N-65^\circ N$) における450Kと500Kの高度のオゾン濃度の1997年1月1日～4月30日までの変化 (■で表される) と、3.2節の表1で示した化学輸送モデルを使った3つの実験によって計算されたオゾン濃度の変化を示す。

まず、図5 (a)で表される450Kの高度でのオゾン濃度の時間変化であるが、化学輸送モデルの通常の計算 (表1の(1) コントロール実験) で得られたこの期間中のオゾン濃度変動は、ILASのオゾン濃度変動をよく再現している。ところが、(2) トレーサー実験では、オゾン濃度は2月から3月にかけてILASで観測された濃度よりも大きくなった。実験(1)と実験(2)の差は、オゾン化学による差である。つまりこの期間中、もしもオゾンが化学反応を起こさなければ、オゾンの輸送によって点線で示されたような変化を示すところを、実際には化学過程が働いて黒実線のようになり、それが観測値となっていることがわかる。次に、この化学反応はどの場所の化学反応が効いているかを調べるために、極渦の内側だけで化学反応を働かせた実験(3)の結果を見

ると、これは、実験（1）の変化にほぼ近く、結局極渦内の化学反応によるオゾン破壊が効いて、極渦のすぐ外側の緯度帯のオゾン濃度の低下を起こしていることがわかった。

同様に500Kでも、ILASの観測値と3つの化学輸送モデルを用いた結果とを比較する。（1）コントロール実験はやはり観測値を再現している。ただし、1月中旬から2月中旬にかけての再現性が少し落ちる。（2）トレーサー実験は、500Kの場合、特に4月に入ってからコントロール実験よりも濃度が低くなった。これはこの高度では、この時期オゾン化学によってオゾン濃度が増加していることを表している。（3）の極渦内で化学過程を働かせた実験では、オゾン濃度はさらに低くなった。実験1（濃い実線）と実験3（淡い実線）の差は化学による差であり、そのうち実験2（点線）と実験3（淡い実線）の差で表される部分が極渦内化学による差であり、残りが極渦の外の化学によるものである。450Kの結果と比較すると、極渦内化学の影響が弱くなり、極渦外の影響が大きくなっていることがわかる。

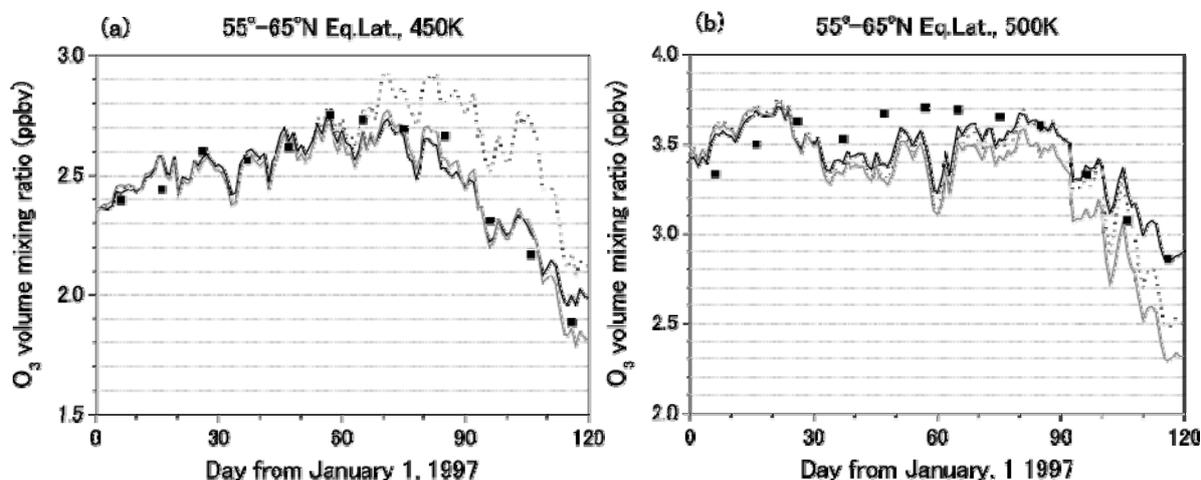


図5 等価緯度55° -65° Nのオゾン混合比の時間変動。1997年1月1日～4月30日までの変動を表す。ILAS (■)、化学輸送モデル実験1 (実線)、化学輸送モデル実験2 (点線)、化学輸送モデル実験3 (淡い実線)。(a) 450K。(b) 500K。ILASの観測値との比較を容易にするため、化学輸送モデルの値はそのアウトプット値からすべて0.5ppmv差し引いてあることに注意。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

時間閾値解析法、CCSR/NIES化学輸送モデルによる極渦内化学ON/OFF実験、およびILAS観測データの独自の3つの手法を使って1997年北極渦の孤立性と極渦内オゾン破壊のその周りの大気への影響を定量的に明らかにした。時間閾値解析法は、ラグランジュ的視点からの物質輸送の新しい解析法であり、それを極渦内外の空気塊輸送に初めて応用した。

ECMWFデータを使ったCCSR/NIES化学輸送モデルと時間閾値解析法により、ILASの観測データが存在した1997年の冬～春にかけての北極渦内外の大気の水平方向の輸送と、それに伴う極渦内オゾン破壊の極渦外オゾン濃度への影響を調べた。時間閾値解析法によって、1997年1月1日～4月30日の期間中、極渦内からその外側への空気塊の4回にわたる大流出イベントがあったことがわかつ

た。同じ年の南極渦では時間解析閾値法によってこのような流出イベントは見つからなかったことから、非常に安定していた1997年の北極渦でさえも、南極に比べると水平方向の極渦内外の空気の交換は大きいことがわかった。そして、化学輸送モデルを用いた極渦内化学ON/OFF実験により、極渦の境界のすぐ外側の55°～65° Nの等価緯度帯では、その影響は、450 Kの高度で20～25%、365-525 Kの下部成層圏の範囲では、15 DU程度の影響があることがわかった。特に、450K付近のILASのオゾンデータが示す2月中旬から3月下旬にかけてのオゾン濃度の低下はこの影響によるものであることが、明らかとなった。

次に、極渦空気の鉛直方向の輸送を調べるため、時間閾値解析法によってその鉛直フラックスを計算した。その結果、1月～4月の期間の下降流速の平均値として約1.6 km/monthの値が得られた。この値は、Kawamoto and Shiotani (2000)⁷⁾が、成層圏におけるN₂O体積混合比の鉛直分布の変化から求めた下降流速 1.2-1.8 km/month とよく合致していた。

極渦空気の孤立性は、このような冬の間の極渦空気の下降と、極渦外の空気との水平方向の混合とによって決定されるが、1997年の北極渦の場合、水平方向の極渦空気の入れ替わりは鉛直方向に比べて一桁小さいことがわかった。ただしこの割合は年によって変動するので、他の年についても解析を進める必要がある。また、上述の極渦内鉛直速度だと北極渦が成立している12月から3月または4月にかけての4～5ヶ月の間に、極渦内の空気がすべて入れ替わってしまうことはないことが示唆される。つまり、北極渦は極渦の周りの大気に対してオゾン濃度減少のFlowing Processorとして完全に働いているわけではないことがわかった。しかしながら、極渦周辺の限られた等価緯度帯では極渦成立中にオゾン濃度低下の影響を起こしており、この部分はFlowing Processorとしての働きをしている。一方、1997年5月上旬の北極渦崩壊時には極渦内のオゾン濃度が低下した空気を周囲にばらまくので(Knudsen, 1998¹⁹⁾)、Containment Vesselとしての特性も持ち合わせている。

(2) 地球環境政策への貢献

特に記載すべき事項はない。今後、一般向け科学雑誌を通じ、成果広報・普及に努める。

6. 引用文献

- 1) Kawamoto, N. and M. Shiotani (2000), Interannual variability of the vertical descent rate in the Arctic polar vortex, *J. Geophys. Res.*, 105(D9), 11,935-11,946.
- 2) Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland, and D. J. Wuebbles (1986), On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, 321, 755-758.
- 3) Solomon, S. (1999), Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Rev. Geophys.*, 37(3), 275-316.
- 4) World Meteorological Organization/United Nations Environment Programme (WMO/UNEP) (1994), *Scientific Assessment of Ozone Depletion; 1994, Global Ozone Research and Monitoring Project-Rep. 37*, Geneva.
- 5) World Meteorological Organization/United Nations Environment Programme (WMO/UNEP) (1999), *Scientific Assessment of Ozone Depletion; 1998, Global Ozone Research and Monitoring Project-Rep. 44*, Geneva.
- 6) World Meteorological Organization/United Nations Environment Programme (WMO/UNEP) (2003), *Scientific Assessment of Ozone Depletion; 2002, Global Ozone Research and Monitoring Project-Rep. 47*, Geneva.
- 7) Schoeberl, M. R., M. Luo, and J. E. Rosenfield (1995), An analysis of the Antarctic halogen occultation experiment trace gas observations, *J. Geophys. Res.*, 100(D3), 5159-5172.

- 8) Waugh, D. W., K. K. Kelly, P. A. Newman, and L. R. Lait (1997), Mixing of polar vortex air into middle latitudes as revealed by tracer-tracer scatter plots, *J. Geophys. Res.*, *102*, 13, 119-13, 134
- 9) Sugata, S. (2000) Time threshold diagnostics: A mixed lagrangian-Eulerian method for describing global tracer transport, *J. Meteorol. Soc. Japan*, *78*(3), 259-277.
- 10) Nash, E. R., P. A. Newman, J. E. Rosenfield, and M. R. Schoeberl (1996) An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *J. Geophys. Res.*, *101*, 9471-9478.
- 11) Takigawa, M., M. Takahashi, and H. Akiyoshi (1999) 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.
- 12) Akiyoshi, H. (2000) Modeling of chemistry and chemistry-radiation coupling process for the middle atmosphere and a numerical experiment on CO₂ doubling with a 1-D coupled model, *J. Meteorol. Soc. Japan*, *78*, 563-584.
- 13) Takigawa, M., M. Takahashi, and H. Akiyoshi (2002) Simulation of stratospheric sulfuric acid aerosol using a Center for Climate System Research / National Institute for Environmental Studies atmospheric GCM with coupled chemistry: Part I, nonvolcanic simulation, *J. Geophys. Res.*, *107*(D22), 4610, doi:10.1029/2001JD001007.
- 14) Akiyoshi, H., S. Sugata, T. Sugita, H. Nakajima, H. Hayashi, J. Kurokawa, and M. Takahashi (2002) A low-N₂O air mass simulated by the CCSR/NIES nudging CTM and observed by ILAS in 1997, *J. Meteorol. Soc. Japan*, *80*, 451-463.
- 15) 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.
- 16) Coy, L., E. R. Nash, and P. A. Newman (1997) Meteorology of the polar vortex: Spring 1997, *Geophys. Res. Lett.*, *24*(22), 2693-2696.
- 17) Nakane, H. (2000) Long and short term variability in the dynamical attributes of the Arctic polar vortex and its effect on ozone, *SPARC Newsletter*, *15*, 15-17.
- 18) Terao, Y., Y. Sasano, H. Nakajima, H. L. Tanaka, and T. Yasunari (2002) Stratospheric ozone loss in the 1996/1997 winter: Evaluation based on multiple trajectory analysis for double-sounded air parcels by ILAS, *J. Geophys. Res.*, *107*(D24), 8210, doi:10.1029/2001JD000615.
- 19) Knudsen, B. M., W. A. Lahoz, A. O' Neill, and J.-J. Morcrette (1998), Evidence for a substantial role for dilution in northern mid-latitude ozone depletion, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 4501-4504.

7. 国際共同研究等の状況

WMO（世界気象機関）のプロジェクトのひとつであるSPARC（成層圏プロセスとその気候に対する役割）における活動と連携している。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) M. Yoshiki, 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”
- 2) Kurokawa, J., H. Akiyoshi, T. Nagashima, H. Nakane, H. Masunaga, T. Nakajima, M. Takahashi: *J. Geophys. Res.*, *110*, D21305, doi:10.1029/2005JD005798 (2005)

“Effects of atmospheric sphericity on the stratospheric chemistry and dynamics over Antarctica”

- 3) 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”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 秋吉英治、今村隆史、菅田誠治、中根英昭、黒川純一、滝川雅之
「臭素化合物のオゾン破壊に及ぼす影響と北極渦の状態、第14回大気化学シンポジウム研究集会講演集、116-119 (2004)
 - 2) 秋吉英治
「オゾンホールを予測する手立て」、152-159, 第18回「大学と科学」公開シンポジウム公演収録集—オゾンのゆくえ—気候変動とのかかわりをさぐる、宮原三郎編集、クバプロ、ISBN4-87805-049-7 (2004)
- (2) 口頭発表（学会）
- 1) H. Akiyoshi, T. Imamura, J. Kurokawa, M. Takigawa, S. Sugata, and H. Nakane, 3rd SPARC General Assembly, Victoria, Canada, 2004年8月1日—6日；Programme and Abstract Volume, 93.
“A CTM study of lower stratospheric ozone destruction due to bromine species inside/outside the Arctic polar vortex”
 - 2) 秋吉英治、L. B. Zhou、黒川純一、菅田誠治、今村隆史、滝川雅之、川平浩二、中根英昭、第23回レーザセンシングシンポジウム、筑波山、2004年9月16-17日；（第23回レーザセンシングシンポジウム予稿集、57-60）
「極成層圏雲と硫酸エアロゾルを介した臭素のオゾン層への影響—ライダー観測に望むこと—」
 - 3) 秋吉英治、菅田誠治、吉識宗佳、杉田考史、日本気象学会、福岡、2004年10月6-8日；2004年度秋季大会講演予稿集（86）
「北極渦内オゾン破壊の極渦外への影響について」
 - 4) 秋吉英治、菅田誠治、吉識宗佳、杉田考史、第15回大気化学シンポジウム、豊川、2005年1月5日—7日
「化学輸送モデルと時間閾値解析法を用いた北極渦内オゾン破壊の極渦外への影響の解析」
 - 5) 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、大気化学シンポジウム、豊川、2005年1月5日—7日；（第15回大気化学シンポジウム研究集会講演集、97-100）
「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」
 - 6) 秋吉英治、分子化学研究所研究会、大気科学における不均質系の分子化学、岡崎、2005年1月20日—22日；（研究集会要旨集、27-28）
「3次元モデルを用いたオゾン層破壊のシミュレーションと不均一反応」
 - 7) 秋吉英治、菅田誠治、黒川純一、滝川雅之、今村隆史、中根英昭、日本気象学会、東京、2005年5月15-18日；2005年度春季大会講演予稿集(87), 106

「化学輸送モデルを用いた94/95 95/96 96/97年冬の北半球中高緯度域オゾン破壊の緯度別解析」

- 8) 秋吉英治、菅田誠治、吉識宗佳、杉田考史、日本気象学会、神戸、2005年11月20-22日；2005年度秋季大会講演予稿集(88)、213

「1997年北極渦のPolar Processor効果」

- 9) 菅田誠治、秋吉英治、神沢博、神戸、2005年11月20-22日；2005年度秋季大会講演予稿集(88)、212

「Time threshold diagnostics (TTD)を用いた成層圏極渦内の下降流の解析」

- 10) 秋吉英治、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

「オゾン層の破壊と回復のメカニズム」

(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）

なし。

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 常陽新聞掲載コラム記事（オゾン層2「20年で進んだ破壊」、常陽新聞掲載コラム記事、ふしぎを追ってー研究室の扉を開くー）、2005年9月21日