

## P-5-28

### 北極オゾン層破壊に効果的な硝酸を含む大粒子をライダーで検出か

#### Lidar detection of large solid NAT particles efficient in causing Arctic ozone depletion

永井 智広<sup>\*1</sup>, 内野 修<sup>\*2</sup>, 中里 真久<sup>\*1</sup>, 板部 敏和<sup>\*3</sup>, 水谷 耕平<sup>\*3</sup>, 安井 元昭<sup>\*3</sup>,  
石井 昌憲<sup>\*3</sup>, 柴田 隆<sup>\*4</sup>, 林 政彦<sup>\*5</sup>, 藤原 玄夫<sup>\*5</sup>, 酒井 哲<sup>\*6</sup>, Hans Fast<sup>\*7</sup>  
Tomohiro Nagai<sup>\*1</sup>, Osamu Uchino<sup>\*2</sup>, Masahisa Nakazato<sup>\*1</sup>, Toshikazu Itabe<sup>\*3</sup>,  
Kohei Mizutani<sup>\*3</sup>, Motoaki Yasui<sup>\*3</sup>, Shoken Ishii<sup>\*3</sup>, Takashi Shibata<sup>\*4</sup>,  
Masahiko Hayashi<sup>\*5</sup>, Motowo Fujiwara<sup>\*5</sup>, Tetsu Sakai<sup>\*6</sup> and Hans Fast<sup>\*7</sup>

<sup>\*1</sup>気象研究所, <sup>\*2</sup>気象庁, <sup>\*3</sup>通信総合研究所, <sup>\*4</sup>名古屋大学, <sup>\*5</sup>福岡大学, <sup>\*6</sup>日本学術振興会/気象研究所, <sup>\*7</sup>カナダ環境庁

<sup>\*1</sup>Meteorological Research Institute, <sup>\*2</sup>Japan Meteorological Agency, <sup>\*3</sup>Communications Research Laboratory, <sup>\*4</sup>Nagoya University, <sup>\*5</sup>Fukuoka University, <sup>\*6</sup>Japan Society for the Promotion of Science/Meteorological Research Institute, <sup>\*7</sup>Meteorological Service of Canada

**Abstract:** Stratospheric aerosols and polar stratospheric clouds (PSCs) had been observed by a two-wavelength (1064 nm and 532 nm) and polarization-lidar at the Canadian Arctic station of Eureka (80N) in winter and early spring seasons from 1993 through 2002. Sighting of PSCs was observed in the 94/95, 95/96, 96/97, and 99/00 winter seasons. In this paper we report characteristics of PSCs observed in the 1999-2000 Arctic winter stratosphere. Most interesting feature is the lowering of the nitric acid trihydrate (NAT) particle layer with a speed of 1~2 km/day. The diameter of NAT particles is estimated to be 5-20  $\mu\text{m}$ . These large NAT particles are efficient in causing denitrification and ozone depletion. Large ozone depletion occurred in February and March 1993 in the Canadian Arctic Region.

北極圏ユーレカ（北緯 80 度）にエーロゾルと極域成層圏 PSCs(Polar Stratospheric Clouds)の観測を目的としてライダーを設置したのは 1993 年 1 月である（開発したライダーは 2 波長 1064nm と 532nm におけるエーロゾルの後方散乱比 R、後方散乱係数  $\beta_a$  およびその 2 波長の比から求められる波長依存指数  $\alpha$ 、532nm における偏光解消度 D を対流圏下層から下部成層圏まで連続的に観測できる。これらの測定値から PSCs のタイプが推定できる）。以来 2002 年 3 月まで 10 年間、冬から春先（12 月から 2 月または 3 月）にかけてライダー観測を継続した。この 10 年間のうち 1994/1995 年、1995/1996 年、1996/1997 年、1999/2000 年の 4 回、冬季ユーレカ上空で PSCs の出現をライダーで確認できた。対流圏エーロゾルや北極ヘイズ、それに 1994/1995 年と 1995/1996 年の PSCs の観測結果についてはすでに発表されている(Nagai et al., 1997)。今回は 1999/2000 年の PSCs の観測結果について報告する。

この冬の北極渦は安定で下部成層圏気温は例年になく低かった。このため PSCs が数多く出現し、これまでユーレカで観測されていた固体粒子の NAT= $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (Type 1a)や SAT= $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 、過冷却の硝酸、硫酸、水の 3 成分からなる液滴の STS(Super Cooled Ternary Solution, Type 1b)の他に、STS 層を上下から NAT 層で包むいわゆるサンドイッチ構造の PSCs(Shibata et al., 1999)や氷粒子 ICE(Type 2)が観測された。

特に興味深い現象としては 2000 年 1 月のライダーの連続観測から NAT 層が 1~2km/day の速さで下降していく様子が捉えられたことである。この層の下降が NAT 粒子の落下によるものとするれば、その粒子の直径は約 5~20  $\mu\text{m}$  と見積もられる。この値は同じ 2000 年冬の北極域成層圏における航空機による NAT の直接観測結果(直径 10~20  $\mu\text{m}$ )と矛盾しない(Fahey et al., 2001)。

一方、我々は2000年1月14日にライダーでNAT層を高度17~22kmに検出しているときにOPC(Optical Particle Counter)を気球で飛揚したところほぼ同じ高度に直径 $3.6\mu\text{m}$ 以上の粒子を検出した。その粒子濃度の最大値は21km付近で $3\times 10^3/\text{cm}^3$ であった。同じ硝酸・硫酸・水蒸気圧のもとで、気温がゆっくりと下がり選択的にNAT粒子が生成・成長するときは、気温が急激に下がり多くのNATが同時に生成・成長するときの粒子に比べて、その粒径はかなり大きくなりやすいと考えられる。その直径が $5\sim 20\mu\text{m}$ 程度まで成長すると、重力により $1\sim 2\text{km/day}$ の速さで落下する。このときNAT粒子に蒸着した硝酸が上層から下層へ運ばれる所謂脱窒化(denitrification)が起こる。いったん脱窒化が起こると上層には硝酸の気体は少なくなり、そこでは気温がNATの凝固点(高度20km付近で196K)以下になってもPSCsは発生しにくい。事実、NAT層の下降が見られた後の1月20、23~29日には20km付近でNATが出現してもおかしくない低温でもPSCsは観測されなかった。このことから脱窒化が20km付近で起こったものと推定される。

2000年1月4日観測されたSTSはNATに比べると後方散乱比Rが大きく532nmでRの最大値は高度21km付近で5.0であった。このRの大きさは1991年6月のピナトゥボ火山噴火後成層圏エアロゾルが増加した約1年後の値に相当する(Uchino et al., 1995)。またSTSの $\alpha$ は約1.3とバックグラウンドの値に近いことから同じ変換係数を用いると、その表面積は $\sim 4\times 10^7\text{cm}^2/\text{cm}^3$ となり、これもまたピナトゥボ火山噴火後成層圏エアロゾル層の表面積の最大値(Jäger et al., 1995)に匹敵することがわかった。

エアロゾルの表面積が大きくCFCsなどを起源とするハロゲン化合物の濃度が高いと不均一化学反応が進みオゾン破壊が起こる。ピナトゥボ火山噴火後北半球中緯度(35N~60N)下部成層圏オゾンは1992~1993年に最も減少したことがわかっている(WMO,2003)。この例から1994/2000年の冬季北極域下部成層圏はPSCsの出現が頻繁で脱窒化が起こり、またPSCsの表面積が大きかったことにより化学反応過程が有効に進みハロゲン化合物が活性化されオゾン破壊が進んでもおかしくない状況にあったと考えられる。事実ユーレカでのオゾンゾンデの観測の解析結果から、2000年2月初めから3月終わりにかけて20km付近で約70%のオゾン破壊が起きたことが確かめられている(Hirota et al., 2003)。また2000年3月のカナダ北部のクイーンエリザベス諸島付近で気柱オゾン全量は1997-1992年の平均値に比べて25%以上減少している(気象庁オゾン層観測報告:2000)。

#### 参考文献

- Fahey et al., The detection of large  $\text{HNO}_3$ -containing particles in the winter Arctic stratosphere, *Science*, 291, 1026-1031, 2001.
- Hirota et al., Stratospheric ozone loss over Eureka in 1999/2000 observed with ECC ozonesondes, *J. Meteor. Soc. Japan*, 81, No.2, 2003.
- Jäger et al., Ground-based remote sensing of the decay of the Pinatubo eruption cloud at three northern hemispheric sites, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 607-60, 1995.
- Nagai et al., Lidar observations of the PSCs and stratospheric aerosols over Eureka in Canadian Arctic, *Advances in Atmospheric Sensing with Lidar*, A. Ansmann, R. Neuber, P. Rairoux, and U. Wandinger (eds.), Springer-Verlag, New York, 505-508, 1997.
- Shibata et al., On the lidar-observed sandwich structure of polar stratospheric clouds (PSCs) 1. Implications for the mixing state of the PSC particles, *J. Geophys. Res.*, 104, 21603-21611, 1999.
- Uchino et al., Extensive lidar observations of the Pinatubo aerosol layers at Tsukuba (36.1N), Naha (26.2N), Japan and Lauder (45.0S), New Zealand, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 57-60, 1995.