

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－

The effects of bromine species on stratospheric ozone layer through PSCs and sulfuric aerosols – A request for a long-term lidar observation

秋吉英治¹、Libo Zhou²、黒川純一³、菅田誠治¹、今村隆史¹、滝川雅之⁴、川平浩二⁵、
中根英昭¹

Hideharu Akiyoshi¹, Libo Zhou², Jun-ichi Kurokawa³, Seiji, Sugata¹, Takashi Imamura¹,
Masayuki Takigawa⁴, Koji, Kawahira⁵, and Hideaki Nakane¹

¹国立環境研究所、²中国科学院大気物理研究所、³富士通 FIP、⁴地球環境フロンティア研究センター、
⁵富山県立大学

¹National Institute for Environmental Studies, ²Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences
³Fujitsu FIP Corporation, ⁴Frontier Research Center for Global Change, and ⁵Fukui Prefectural University

Abstract

The effects of bromine species on the stratospheric ozone through the heterogeneous reactions on PSCs and sulfuric aerosols are discussed. Three topics are presented. (1) The contributions of BrO-ClO ozone destruction catalytic cycle and Arctic polar vortex dynamics to the year-to-year variation of Arctic ozone. (2) The interaction between aerosol infrared heating and ozone destruction cooling for the lower stratospheric temperature perturbation after the Pinatubo eruption. (3) A possibility of heterogeneous ozone destruction in the subtropical western Pacific region. Observations of PSCs and sulfuric aerosols by lidars, balloons, and satellites on a decadal time-scale are needed to understand the long-term variations in ozone layer in the high, mid, and low latitudes.

1. はじめに

極成層圏雲 (PSC) や硫酸エアロゾルは、成層圏において不均一反応の場を提供してオゾン層へ多大な影響を及ぼすことが知られている (例えば, Solomon et al., 1986)。地上からのライダー観測、衛星観測、航空機搭載のパーティクルカウンターなどによって、これらの成層圏粒子の鉛直分布、水平分布、季節変動、年々変動が明らかになってきた (Fahey et al. 2001; Deshler et al. 2003 など)。1991年6月のピナツボ火山爆発によって急増した硫酸エアロゾルの気温や化学微量成分への影響は、そのグローバルな影響を最も顕著に示す一つの例で、これまでに多くの観測や解析、あるいは数値モデルによる研究が行われた (Treppe et al., 1993; Uchino et al., 1995; Hayashida and Horikawa, 2001; Rozanov et al., 2002 など)。本研究では、硫酸エアロゾルや PSC を介してオゾン層に影響を及ぼす臭素に着目し、極域 (高緯度)、中緯度、亜熱帯 (低緯度) それぞれの領域での、比較的長期間 (数年以上) の成層圏大気の変動との関連について考察する。成層圏の活性塩素濃度 (Cly) は現在ほぼピークに達したと考えられるが、活性臭素濃度は、もうしばらくの間増加する可能性があり、その場合、BrO-ClO オゾン破壊触媒サイクルがさらに働いて、オゾン層へ影響を拡大する可能性がある。

2. 臭素の北極域オゾン破壊への影響

PSCによるオゾン破壊は主に極渦の内側で起こるが、北極渦はその年々変動が大きいことが特徴である。東京大学気候システム研究センター／国立環境研究所（CCSR/NIES）化学輸送モデルとECMWFデータ（気象データ）を用いて、1993年から現在までの北極域のオゾン濃度分布の計算を行った。その結果、1997年のように北極渦が安定して存在し、その崩壊時期が遅かった年には、極渦内の高緯度で春季にBrOの急増が起こり、極渦内に残存する高濃度ClOと共に大きなオゾン破壊を起こすことがわかった。

3. ピナツボエアロゾルの中緯度下部成層圏気温への影響

フィリピンのピナツボ火山爆発によって急増した成層圏エアロゾルは、その8~9 μ m付近の赤外吸収帯により、低緯度や夏季中緯度の低温な下部成層圏では大気を加熱する。同時に、硫酸エアロゾルはオゾン破壊につながる不均一反応の場も提供するので、それによってオゾンが減少し、オゾンによる太陽光の吸収が減少し、前述の赤外放射吸収による大気加熱効果を緩和する。この不均一反応の効果を入れた場合と入れない場合の数値計算結果の比較によって、不均一反応は、下部成層圏の昇温を1年ほど早く緩和することがわかった。ゾンデ観測の解析結果も、下部成層圏の昇温の解消の方が、この高度のオゾン減少の回復より早いことを示している（Angell, 1997; Angell, 1998）。

4. 亜熱帯西太平洋域のオゾン全量極小の年々変動への影響

台湾の東に位置する亜熱帯西太平洋域には、冬季に非常に低いオゾン全量の値（オゾンホール¹の定義値220 DU以下）がしばしば出現するが、2001年の12月の値はかなり低かった（最低値は190DU、Fig.1）。そこで、この低いオゾン全量が、季節変動として毎年起こるものなのか、あるいは、年々この領域のオゾン量が少なくなっているのか、さらに、上部対流圏～下部成層圏付近の低温域で生じる可能性のある氷などの粒子上で起こる不均一反応の影響はあるのか、を明らかにするため、EP-TOMSによって観測されたオゾン全量の時系列解析と、CCSR/NIES化学輸送モデルによる数値実験を行った。Fig.2に、EP-TOMSによって観測されたこの領域のオゾン全量の年々変動と化学輸送モデルによる計算の結果を示す。化学輸送モデルによる計算では、45N-45Sの緯度帯で不均一反応過程を除外した。不均一反応過程を除いたモデルが、12月～1月のオゾン全量の最低値の年々変動をよく再現していることから、この領域の最低値の年々変動は、主にオゾンの輸送過程によるものであることがわかる。氷粒子と硝酸3水和物（NAT）による不均一反応過程を導入した数値実験結果と、前述の45N-45Sの緯度帯でこれらの不均一反応過程を除外した数値実験結果との差から、1996年以降のこの領域の低いオゾン全量に関しては、不均一反応によるオゾン破壊の影響は多めに見積もっても2~3DU程度であることがわかった。さらに詳しい解析の結果、この不均一反応の影響の大きさは、赤道準2年振動（QBO）の影響（5~10 DU）、エルニーニョの影響（5 DU以下）、太陽活動の影響（~5 DU）に比べると小さいが、無視できるほど小さい値ではないこと、などがわかった（Zhou et al., 2003）。中緯度や低緯度のCirrus上での不均一反応を介したオゾンへの影響には、臭素が絡んだ塩素の活性化と硝酸の取り込みによる脱窒の両方の影響が関与している（Borrmann et al., 1996; Solomon et al., 1997; Meier and Hendricks, 2002; Popp et al., 2004）。

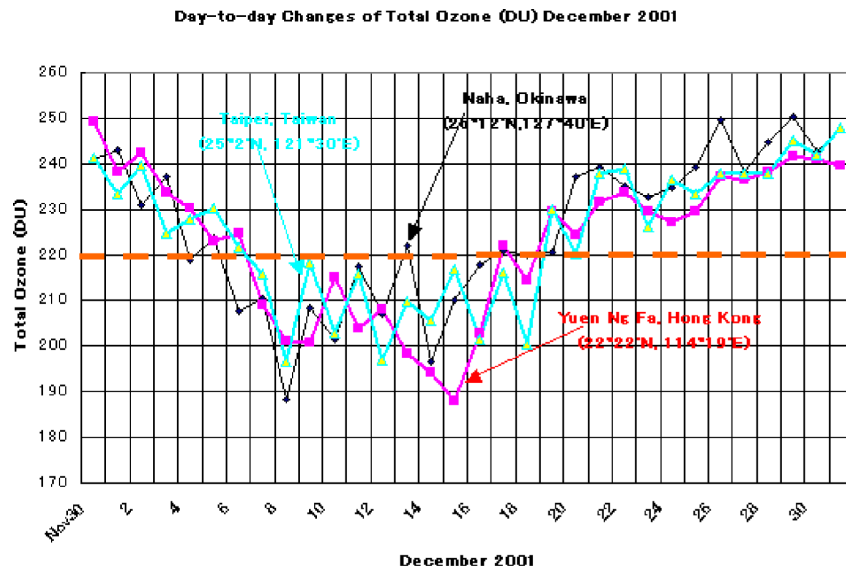


Fig.1: Time series of total ozone amount observed in December, 2001. The values at Naha ($26^{\circ}12'N$, $127^{\circ}40'E$), Taipei ($25^{\circ}2'N$, $121^{\circ}30'E$), Hong Kong ($22^{\circ}22'N$, $114^{\circ}19'E$) are indicated by diamonds, triangles, and squares, respectively.

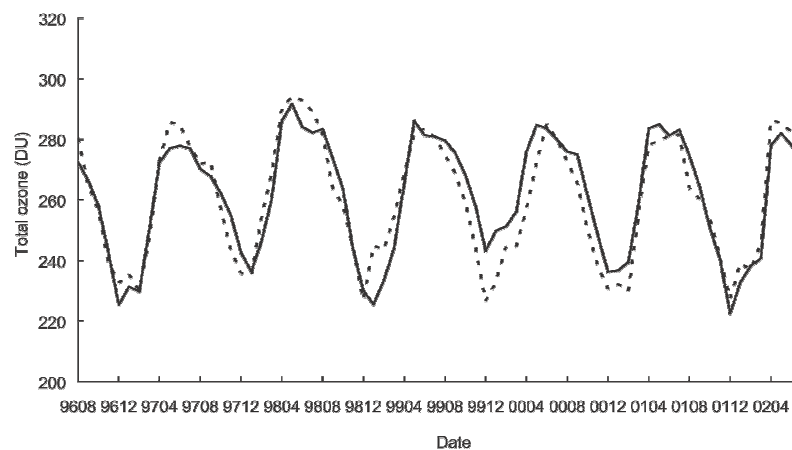


Fig.2: Year-to-year variation of total ozone over the subtropical western Pacific from EP_TOMS (solid line) and the nudging chemical transport model with ECMWF data (dashed line). An area-weighted mean of 15° - $25^{\circ}N$, 120° - $150^{\circ}E$ was shown.

5. ライダー観測に望むことー長期間データの必要性

成層圏硫酸エアロゾルと PSC を介した臭素のオゾン層への影響について考察した。長期間（少なくとも 5~10 年以上）のデータを解析することによって、短期間のデータではわからなかった大気の様々な変動・変化の側面を知ることができる。成層圏粒子の変動を、気温などの気象場やオゾンなどの大気微量成分濃度の長期間データと共に解析することによって、化学、放射、力学（輸送）過程が複雑に絡み合った大気の長期変動の様々な側面を知ることができ、それらの知見の蓄積は将来大気変動予測への礎となる。また、成層圏の光化学反応は高度に関する変化が大きいため、その理解のためには高い鉛直

分解能のデータが必要である。成層圏粒子やオゾンの長期にわたる年々変動や季節変動の、鉛直分解能の高い観測と解析を、地球上の多地点で今後も継続して行うことが望まれる。

参考文献

- Angell, J. K. (1997), Stratospheric warming due to Agung, El Chichón, and Pinatubo taking into account the quasi-biennial oscillation, *J. Geophys. Res.*, **102(D8)**, 9479-9486, 10.1029/96JD03588.
- Angell, J. K. (1998), Impact of El Chichon and Pinatubo on ozonesonde profiles in north extratropics, *Geophys. Res. Lett.*, **25(24)**, 4485-4488, 10.1029/1998GL900224.
- Bormann, S., S. Solomon, J. E. Dye, B. Luo (1996), The potential of cirrus clouds for heterogeneous chlorine activation, *Geophys. Res. Lett.*, **23(16)**, 2133-2136, 10.1029/96GL01957.
- Deshler T., M. E. Hervig, D. J. Hofmann, J. M. Rosen, and J. B. Liley (2003), Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from Laramie, Wyoming (41°N), using balloon-borne instruments, *J. Geophys. Res.*, **108 (D5)**, 4167, doi:10.1029/2002JD002514
- Fahey, D. W. et al. (2001), The Detection of Large HNO₃-Containing Particles in the Winter Arctic Stratosphere, *Science*, **291**, 1026-1031.
- Hayashida, S. and M. Horikawa (2001), Anti-correlation between stratospheric aerosol extinction and the Ångström parameter from multiple wavelength measurements with SAGE II — a characteristic of the decay period following major volcanic eruptions, *Geophys. Res. Lett.*, **28(21)**, 4063-4066, 10.1029/2000GL012826.
- Meier A., and J. Hendricks (2002), Model studies on the sensitivity of upper tropospheric chemistry to heterogeneous uptake of HNO₃ on cirrus ice particles, *J. Geophys. Res.*, **107(D23)**, 4696, doi:10.1029/2001JD000735.
- Popp P. J., et al. (2004), Nitric acid uptake on subtropical cirrus cloud particles, *J. Geophys. Res.*, **109(D6)**, D06302, doi:10.1029/2003JD004255.
- Rozanov E. V., M. E. Schlesinger, N. G. Andronova, F. Yang, S. L. Malyshev, V. A. Zubov, T. A. Egorova, and B. Li (2002), Climate/chemistry effects of the Pinatubo volcanic eruption simulated by the UIUC stratosphere/troposphere GCM with interactive photochemistry, *J. Geophys. Res.*, **107(D21)**, 4594, doi:10.1029/2001JD000974.
- Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland, and D. J. Wuebbles (1986), On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, **321**, 755-758.
- Solomon, S., S. Bormann, R. R. Garcia, R. Portmann, L. Thomason, L. R. Poole, D. Winker, M. P. McCormick (1997), Heterogeneous chlorine chemistry in the tropopause region, *J. Geophys. Res.*, **102(D17)**, 21411-21430, 10.1029/97JD01525.
- Trepte, C. R., R. E. Veiga, and M. P. McCormick (1993), The poleward dispersal of Mount Pinatubo volcanic aerosol, *J. Geophys. Res.*, **98(D10)**, 18563-18574, 10.1029/93JD01362.
- Uchino, O., T. Nagai, T. Fujimoto, W. A. Matthews, and J. Orange (1995), Extensive Lidar observations of the Pinatubo aerosol layers at Tsukuba (36.1°N), Naha (26.2°N), Japan and Lauder (45.0°S), New Zealand, *Geophys. Res. Lett.*, **22(1)**, 57-60, 10.1029/94GL02735.
- Zhou, L. B., H. Akiyoshi, and K. Kawahira (2003), Analysis of year-to-year ozone variation over the subtropical western Pacific region using EP_TOMS data and CCSR/NIES nudging CTM, *J. Geophys. Res.*, **108(D20)**, 4627, doi:10.1029/2003JD003412.