

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 11 日現在

機関番号：12501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2015

課題番号：24740318

研究課題名(和文)複数の地球観測センサーを利用した北極の極成層圏雲と成層圏オゾン層の化学過程の解明

研究課題名(英文)Chlorine activation in the Arctic winter

研究代表者

齋藤 尚子(Saitoh, Naoko)

千葉大学・環境リモートセンシング研究センター・助教

研究者番号：50391107

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：ISS/JEM/SMILESとSCISAT-1/ACE-FTSデータをもとに、2009/2010年の北極の冬春季の気温とオゾン化学関連物質の相関関係を調べた。1月中旬から2月初旬に、ClOデータが0.5 ppbvよりも高濃度であった地点は、気温が200 Kより十分低く、等価緯度が70°以上、太陽天頂角が96°以下であった。1月中旬にはHClとClONO₂が減少、ClOが増加し、1月下旬にはClOが減少、HClとClONO₂が増加した。1月の等価緯度70°以北で、観測値に基づく総塩素量がN₂Oから計算した総塩素量よりも大幅に低い値を示したことから、ClOダイマーの存在が示唆された。

研究成果の概要(英文)：We have analyzed ISS/JEM/SMILES and SCISAT-1/ACE-FTS data to discuss the relationship between temperature and stratospheric minor gases related to ozone depletion in the Arctic winter of 2009/2010. From mid-January to early February, SMILES ClO concentrations were higher than 0.5 ppbv at equivalent latitudes higher than 70° and solar zenith angles lower than 96°, where the temperatures were well lower than 200 K. HCl and ClONO₂ decreased and ClO increased in mid-January. In the end of January, ClO started to decrease and HCl and ClONO₂ increased at the same time. We have compared Cly values calculated based on N₂O concentration from ACE-FTS (Cly-calc.) with Cly values derived by the sum of ClO, HCl, HOCl, and ClONO₂ (Cly-obs.). The Cly-obs. values drastically decreased lower than the Cly-calc. at equivalent latitudes higher than 70° in January. This suggests the occurrence of ClO dimmer there that could not be observed by ACE-FTS and SMILES.

研究分野：大気科学

キーワード：成層圏オゾン 塩素化合物 極成層圏雲(PSCs) 国際宇宙ステーション 人工衛星 国際情報交換

1. 研究開始当初の背景

成層圏オゾン層は成層圏の主要な熱源であり、成層圏の大気運動の駆動源になっているため、成層圏オゾン層の回復と気候変動とは密接なリンクがある。このため、気候変動の将来予測のためにも成層圏オゾン層の気温場に対する応答を正しく評価することが極めて重要である。南極では「オゾンホール」と呼ばれる大規模なオゾン減少がほぼ毎年起こっているが、北極の成層圏においても春季に大幅にオゾンが減少する年がある。極域でオゾンが極端に減少する原因は、オゾン破壊を促進する極成層圏雲 (Polar Stratospheric Clouds; PSCs) が極域でのみ出現することにある (図1)。北極は南極と比べて大陸の面積比が大きく、極渦の状態が不安定なため、気温場の年々変動や年内変動が大きい。このため、北極では PSCs の出現頻度の年変動が大きく、オゾン減少量を左右する PSCs の化学組成も複雑であると予想され、結果としてオゾン減少量の年変動も大きく、減少に至るメカニズムも複雑である。

本研究では、北極の PSCs 出現とオゾン破壊物質 (ClO, BrO) とそのリザボア (不活性) 物質 (HCl, ClONO₂) の濃度およびオゾン濃度との関係性を、複数の地球観測センサーのデータをもとに明らかにすることを目的としている。気温場と PSCs 出現頻度とオゾン濃度減少との量的な関係を、メカニズムも含めて明らかにすることで、成層圏オゾン層回復に関する将来予測の精度向上に貢献する。

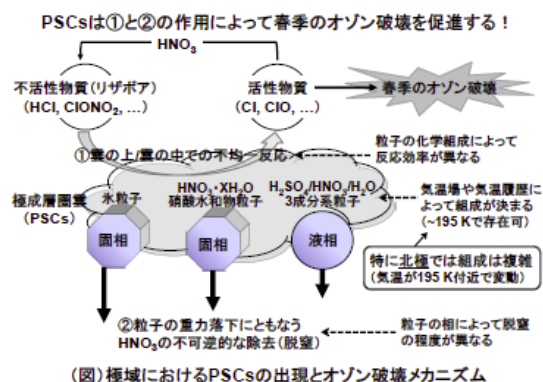


図1. PSCs と成層圏オゾン破壊

2. 研究の目的

成層圏オゾン破壊には、HCl、ClO、HOCl、ClONO₂、ClOOCl などの様々な塩素化合物が関係している。また、塩素活性が起こる時期がオゾン破壊量を決める一つの要因となっており、太陽光が強く当たり始める春に塩素活性が起こると大量のオゾンが破壊される。そのため、各塩素化合物の割合 (ここでは「Cl Partitioning」と呼ぶ) の時間変化を調べることは、塩素活性の時期や各塩素化合物の変化の関係を調べるのに有効である。しかしながら、これまでの衛星による ClO 濃度の観測は観測精度が十分ではないため、個々の観測

地点での Cl Partitioning の議論は困難であった。

国際宇宙ステーションの日本の実験棟きぼう (ISS/JEM) に搭載された超伝導サブミリ波リム放射サウンダ (Superconducting Submillimeter-Wave Limb Emission Sounder; SMILES) は、2009年10月から2010年4月まで、従来のセンサーと比べて十倍程度の高い精度で成層圏および中間圏の ClO を含む大気微量成分の観測を行った。また、SCISAT-1 衛星搭載の Atmospheric Chemistry Experiment-Fourier Transform Spectrometer (ACE-FTS) も同時期に、SMILES では観測できない ClONO₂ を含む塩素化合物の高精度観測を行った。

本研究では、例年に比べて低温であったために1月に大規模な PSCs 生成が見られた2009/2010年の北極成層圏に着目し、SMILES データと ACE-FTS データと組み合わせて、成層圏大気中の塩素活性と気温履歴の関係及び Cl Partitioning について詳細な解析を行った。

3. 研究の方法

本研究では、SMILES の3つのサブミリ波帯波長 (バンド A、B、C) で観測された、北緯 ~ 50° 以北の気温および大気微量成分のデータを用いた。太陽掩蔽法センサーである ACE-FTS は、衛星から見た日出時 (sunrise)、日没時 (sunset) に観測を行っている。ここでは、SMILES データと近い条件で観測を行っている ACE-FTS データのみを抽出して使用した。SMILES と ACE-FTS の観測空気塊の同一性を担保するために、SMILES と ACE-FTS の観測時刻差が5時間以内、観測地点距離差が600 km 以内、観測地点の等価緯度 (Equivalent Latitude; EqL) の差が10° 以内を満たすデータのみを抽出した。

SMILES が観測した空気塊が経てきた気温履歴を調べるために、流跡線解析ツール SPIRAL を用いて、SMILES の観測地点から後方流跡線を計算した。SPIRAL は、既存の流跡線解析ツールを元に、2006年に奈良女子大学にて開発された流跡線解析ツールである [川岸, 2006]。SPIRAL は、あらゆる気象場データセットに対応できるように配列の構成を柔軟な設計にするなど汎用性の高い流跡線解析ツールであり、これまでに各種の改良がなされている。本研究では、気象データとして NOAA-CIRES Climate Diagnostics Center の NCEP/NCAR データ、時間分解能は6時間、時間積分方向は後進、時間積分法は4次ルンゲクッタ法、積分期間は60分、高度決定法は等温位面法に設定し、後方流跡線の計算を行った。ここで、後方流跡線の信頼性を検証するために、SMILES の観測地点を基準点とし、基準点を中心に緯度、経度それぞれ1°離れた周囲4点と、高度が上下に温位 ± 12.5 K 離れた2点の合計7点から後方流跡線を計算した。その上で、周囲6点のそれぞれから計算した

後方流跡線と基準点から計算した後方流跡線との距離差がすべて 600 km 以内の場合は後方流跡線の信頼性が高いと判断して解析に使用し、周囲 6 点から計算した後方流跡線のうち 1 つでも基準点から計算した後方流跡線から 600 km 以上離れた場合は信頼性が低いと判断して、それよりも過去の流跡線計算結果は解析に使用しないこととした。

4. 研究成果

図 2 に、温位 475 K 面における SMILES の C10 データと観測地点での気温の散布図を示す。図から、気温が約 200 K 以下で太陽天頂角 (Solar Zenith Angle; SZA) が 96° 未満の太陽光が当たっていると考えられる観測地点においては C10 濃度が最大 2.5 ppbv まで増加しており、気温が低温になると C10 濃度が増加するという明瞭な相関関係が見られた。これは、低温下で発生した PSCs 粒子上で不均一反応が進んだことを示している。

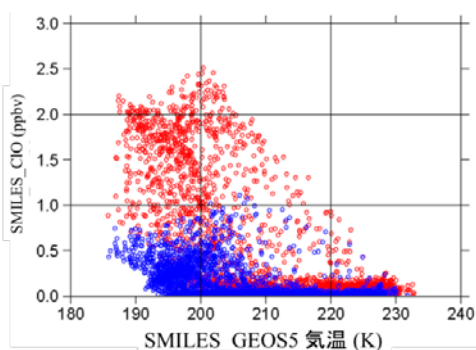


図 2. 2010 年 1 月の北緯 50° 以北、温位 475 K 面の SMILES の C10 データと気温の散布図。赤は観測地点の SZA が 96° 未満のデータ、青は SZA が 96° 以上のデータを示す。

図 3 は、SZA が 96° 以下のデータ (昼データ) のみに対して、SMILES の観測地点の SZA と EqL で分類した、C10 データと気温の散布図である。気温が約 200 K 以下のデータに着目すると、C10 が高濃度の空気塊では SZA は低く、C10 が低濃度の空気塊では SZA が高い値を示していることがわかる (図 3a)。また、C10 が高濃度のデータは EqL が高い、すなわちより極渦の中心に近い空気塊であり、C10 が低濃度のデータは EqL が低い、すなわち極渦の縁に近い空気塊であることを示している (図 3b)。このことから、気温が 200 K 以下で C10 が低濃度であったデータは、十分に太陽光が当たっていないために塩素が不活性であったか、もしくは、極渦の縁付近で極渦内の大気と塩素活性が起こっていない極渦外の大気が混ざった空気塊を観測していたためであると推察される。

一方、観測時の気温が 210 K 以上で通常は PSCs が存在していないと考えられる条件下であっても、C10 濃度が比較的高濃度になっている

空気塊が存在していた。図 4 に、SZA が 90° 以下で十分に太陽光が当たっており、かつ EqL が 75° 以上の極渦の中心付近のデータのみを使用した、SMILES の C10 データと気温の散布図を示す。

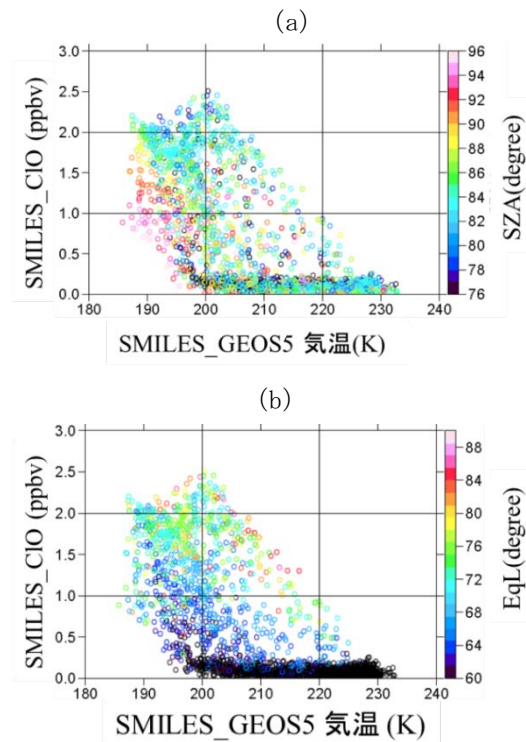


図 3. 図 2 と同様、ただし SMILES の観測地点の SZA が 96° 以下のデータのみを使用。(a) 観測地点の SZA でデータを分類、(b) 観測地点の EqL でデータを分類。

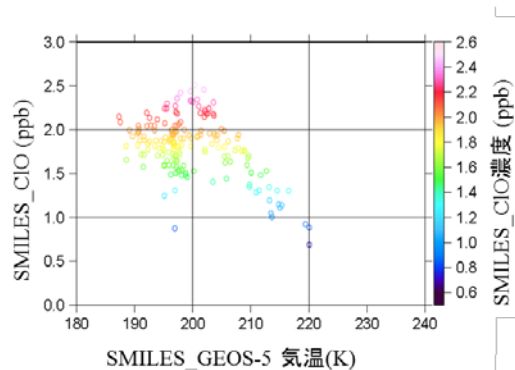


図 4. 図 2 と同様、ただし SMILES の観測地点の SZA が 90° 以下のデータのみを使用。

図 5 は、図 2 に示した SMILES データの観測地点から 7 日間の後方流跡線を計算し、流跡線上の空気塊の気温履歴を示したものである。観測時の気温が 210 K 以上でかつ C10 が比較的高濃度のデータ (青線) は、観測される 2~3 日前に 190 K 程度の低温を経験し、観測日の 1 日前から急激に気温が上昇していることが分かった。このことより、SMILES によって観測される 2~3 日前の低温時に発生した PSCs 粒子上での不均一反応で塩素活性が引

き起こされて C10 濃度が増加し、観測日の 1 日前に気温が上昇してもその高濃度の C10 が維持されていたと解釈することができる。また、C10 が最も高濃度となったデータ (赤線) は、SMILES によって観測される 3 日前から気温が約 197 K 以下の低温を継続して経験していることが分かった。C10 濃度が 1.5 ppbv 程度のデータ (緑線) は、観測時には比較的低温であったが観測日の 2 日前には比較的高温を経験したために PSCs が蒸発し、SMILES 観測時には気温が 200 K 以下の低温であっても、PSCs が十分に形成されなかったため 1.5 ppbv 程度の濃度上昇にとどまると推測される。

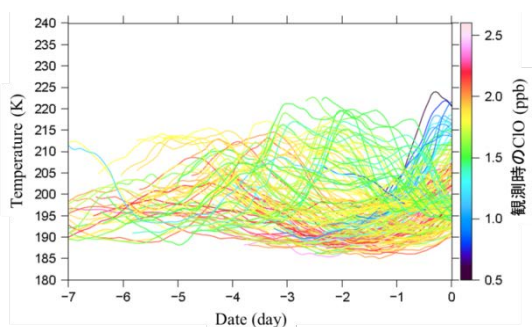


図 5. 図 2 の SMILES データの観測地点から計算した 7 日間の後方流跡線上の空気塊の気温履歴。

図 6 に、極渦内の SMILES データと ACE-FTS データの塩素化合物の濃度の温位 475 K 面での時系列を示す。2009 年 11 月の気温が高く PSCs が発生していないと考えられる時期は、C10 はほぼ 0、HCl は約 1~2 ppbv、C10NO₂ は 0.5 ppbv、HOCl は 0.1 ppbv であった。気温が低くなり PSCs が発生していると考えられる 1 月下旬には、不活性物質である HCl 濃度と C10NO₂ 濃度は急激に減少し、活性物質である C10 濃度は最大 2.4 ppbv まで増加している。気温が上昇し PSCs が蒸発し始めたと考えられる 2 月初旬には、HCl 濃度と C10NO₂ 濃度は増加し始め、C10 濃度は減少し始める。3 月には C10 濃度は 0.1 ppbv であり、HCl は 1.5 ppbv 程度、C10NO₂ は 0.2~1.5 ppbv となっている。

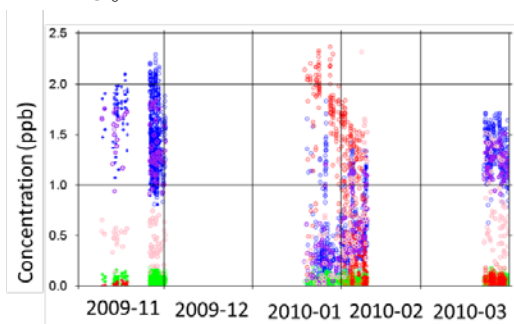


図 6. 北緯 50° 以北、温位 475 K 面における C10 濃度 (赤: SMILES)、HCl 濃度 (青: SMILES、紫: ACE-FTS)、C10NO₂ 濃度 (ピンク: ACE-FTS)、HOCl 濃度 (緑: SMILES) の時系列 (極渦内のみ)。

次に、炭素原子を含まない塩素化合物濃度の総和である総塩素量 (Cly) と SMILES と ACE-FTS で観測された塩素化合物との定量的な関係を調べるために、ACE-FTS の N₂O データから Cly の推定を行った (「Cly_N₂O」) と定義する) [Woodbridge et al., 1995; Wetzel et al., 2010]。総塩素量は本来保存量であり、C10、HCl、C10NO₂、HOCl の各濃度を Cly で割ることで各塩素化合物の総塩素量に対する割合である「Cl Partitioning」を求めることができる。Cly_N₂O に対する C10、HCl、C10NO₂、HOCl の各塩素化合物の Cl Partitioning の時系列を調べたところ、各塩素化合物の濃度変動は大気への輸送や沈降などの力学的要因によって引き起こされたのではなく、化学変化によって引き起こされたということが示唆された。

さらに、SMILES で観測された C10、HOCl と ACE-FTS で観測された HCl、C10NO₂ の時系列が互いに矛盾がないことを確認した上で、観測データに基づく総塩素量 (Cly : C10 + HCl + C10NO₂ + HOCl + C10OCl + C10₂ + Cl₂ + ...) を計算した。図 7 に、塩素化合物の観測データを足し合わせた総塩素量 (Cly_Obs : C10 + HCl + C10NO₂ + HOCl) と N₂O 濃度に基づいて計算した総塩素量 (Cly_N₂O) を比較した散布図を示す。PSCs が発生する前の時期である 11 月では (図 7a)、Cly_Obs が Cly_N₂O の値よりも若干低い値を示しているが、一対一の良い相関関係が見られる。これは、PSCs の発生が少ないバックグラウンド状態では、Cly はほとんど C10、HCl、HOCl、C10NO₂ の濃度だけで決まっているということを意味している。一方、1 月については (図 7b)、極渦外のデータについては Cly_Obs と Cly_N₂O の値はほぼ等しく一対一の相関関係が見られるが、極渦内のデータについては Cly_N₂O よりも Cly_Obs が極端に低い値を示している。極渦内で Cly_N₂O より Cly_Obs が極端に低くなるのは、C10、HCl、HOCl、C10NO₂ 以外の塩素化合物が Cly に寄与していることを示唆している。極渦内のように PSCs 上の不均一反応によって C10 が高濃度となっている特殊な状況下においては、C10 dimer (C10OCl) が生成していると考えられる。C10OCl はオゾン破壊を引き起こす C10-C10 サイクルで生成され、日が沈み太陽光が当たらなくなると高濃度となる。極渦内で C10 が比較的高濃度であることから、C10OCl の存在が強く示唆される。図 8 に、Cly_N₂O から Cly_Obs を引いた ΔCly と SMILES の観測地点の SZA の散布図を示す。2 月については、SZA が 90° 以下のデータは ΔCly が低く、SZA が 94° 以上のデータは ΔCly が高くなっている。つまり、昼間には ΔCly が低く、夜間には ΔCly が高くなっていることから、Cly_N₂O と Cly_Obs の差には C10OCl が寄与している可能性が高いことが示唆される。しかしながら、ACE-FTS データは常に SZA が約 90° の昼間のデータで夜間データは SMILES データのみに由来しているため、

Cly_N₂O と Cly_Obs の差の解釈には注意が必要である。

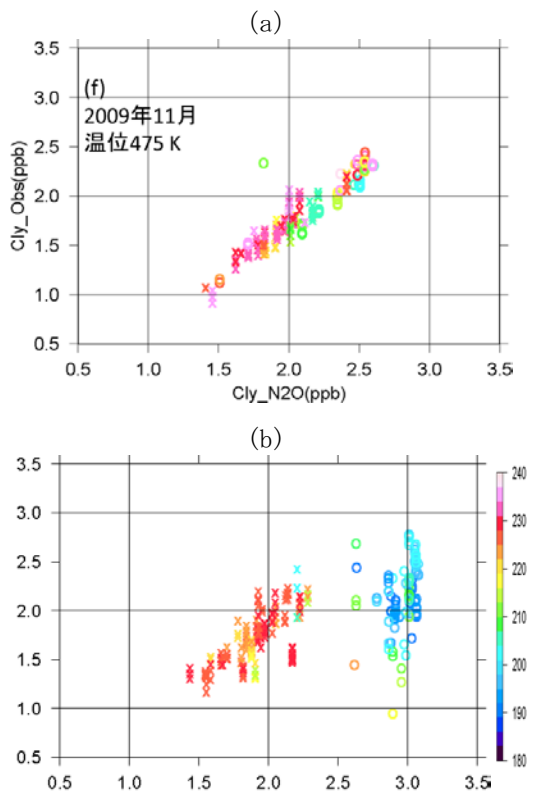


図7. 北緯50°以北、温位475 K面におけるCly_N₂OとCly_Obs(ClO+HCl+ClONO₂+HOCl)の散布図。○はSMILES、ACE-FTSともに極渦内の観測データ、×はSMILES、ACE-FTSともに極渦外の観測データ。(a)2009年11月、(b)2010年1月。カラーは観測地点での気温を示す。

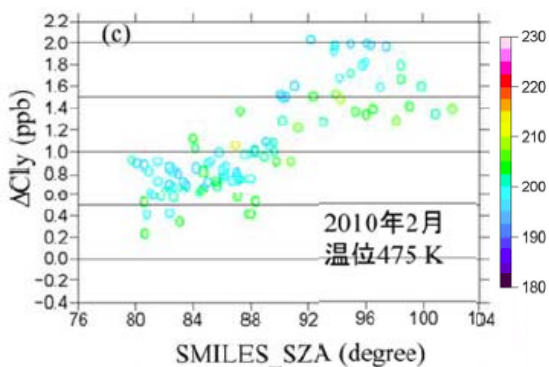


図8. 北緯50°以北、温位475 K面におけるCly_N₂OとCly_Obsの差分(ΔCly)とSMILES観測点におけるSZAの散布図(2010年2月)。カラーは観測地点での気温を示す。

<引用文献>

- ①川岸諒子、流跡線解析ツール SPIRAL の開発と大気環境研究への応用、2006年、奈良女子大学
- ② Woodbridge. E.L., J.W. Elkins, D.W. Fahey, L.E. Heidt, Estimates of total

organic and inorganic chlorine in the lower stratosphere from in situ and flask measurements during AASE II, J. Geophys. Res., 100, 3057-3064, 1995.

- ③Wetzel, G., H. Oelhaf, O. Kirner, R. Ruhnke, F. Friedl-Vallon, First remote sensing measurements of ClOOCl along with ClO and ClONO₂ in activated and deactivated Arctic vortex conditions using new ClOOCl IR absorption cross sections, Atmos. Chem. Phys., 10, 931-945, 2010.

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 6件)

- ①Yuji Tachibana, Naoko Saitoh, Takafumi Sugita, and Yasuko Kasai, Chlorine activation in the Arctic winter of 2009/2010 analyzed by combined use of JEM/SMILES and ACE-FTS, 2013年12月9~13日、米国、サンフランシスコ
- ②橘友仁、齋藤尚子、笠井康子、杉田考史、JEM/SMILESとACE-FTSによる2009/2010年冬季北極成層圏の塩素活性について、第19回大気化学討論会、2013年11月6~8日、ホテルのと楽、石川県、七尾市
- ③Yuji Tachibana, Naoko Saitoh, Takafumi Sugita, and Yasuko Kasai, Analysis of Arctic stratospheric minor gases by combined use of JEM/SMILES and ACE-FTS, 7th Limb Conference, 2013年6月17~19日、ドイツ、ブレーメン
- ④橘友仁、齋藤尚子、杉田考史、笠井康子、JEM/SMILESとACE-FTSによる北極成層圏オゾン破壊過程の解析、地球惑星科学連合大会2013年度大会、2013年5月19~24日、幕張メッセ、千葉県、千葉市
- ⑤橘友仁、齋藤尚子、笠井康子、杉田考史、JEM/SMILESとACE-FTSを組み合わせた2009/2010年冬季極成層圏微量成分の解析、第18回大気化学討論会、2012年11月6~8日、ホテルパーレンス小野屋、福岡県、朝倉市
- ⑥橘友仁、齋藤尚子、笠井康子、JEM/SMILESによる2009/2010年冬春季北極成層圏オゾン破壊関連物質の解析、地球惑星科学連合大会2012年度大会、2012年5月20~25日、幕張メッセ、千葉県、千葉市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齋藤 尚子 (SAITOH, Naoko)

千葉大学環境リモートセンシング研究センター・助教

研究者番号：50391107