

衛星データを用いた北極および南極初期 PSCs の形成過程とその組成について

齋藤 尚子、林田 佐智子 (奈良女子大)、笹野 泰弘 (国立環境研究所)

1 研究の目的

極成層圏雲 (Polar Stratospheric Clouds; PSCs) は、極域下部成層圏における大規模なオゾン破壊現象において重要な役割を果たしており [Solomon, *Rev. Geophys.* 1999]、PSCs の化学組成および相を知ることは、オゾン減少率を正確に評価し、冬季/ 春季極域におけるオゾン破壊メカニズムの詳細を知る上で非常に重要である。改良型大気周縁赤外分光計 (Improved Limb Atmospheric Spectrometer; ILAS) は、ADEOS (Advanced Earth Observing Satellite) 衛星に搭載された太陽掩蔽法のセンサーで、1996 年 11 月から 1997 年 6 月までの約 8 ヶ月間にわたり、両極域 (北緯 57.1 ~ 72.7 度、南緯 64.3 ~ 88.2 度) において、オゾン、硝酸、水蒸気等の成層圏大気微量成分およびエアロゾルの高度プロファイルを観測した。Hayashida *et al.* [JGR, 2000] は、ILAS の $0.78\mu\text{m}$ エアロゾル消散係数データの解析から、同年冬季北極において多くの PSC イベントが観測されていたことを報告し、その時間・空間分布を示した。本研究ではさらに、観測された PSCs の化学組成を推論することを目的として解析を行った。

2 1997 年冬季/春季北極および冬季南極 PSCs 空間分布

ILAS の $0.78\mu\text{m}$ エアロゾル消散係数データを用いて、通常の大気エアロゾル (バックグラウンドエアロゾル) と PSCs とを区別するために、北極についてはまず極渦内、外別に (Nash *et al.* [JGR, 1996] による)、10 日ごと、高度ごとに閾値を設定し、消散係数が閾値以上のデータを「PSC イベント」と定義した。南極については高温域のデータが乏しいため、5、6 月二ヵ月間のデータすべてを対象として高度ごとに閾値を設定し、「PSC イベント」の判定を行った。図 1 は北緯 67.5 度、南緯 67.5 度における ECMWF 気温データの経度・時間断面図に観測された PSC イベントを重ねて示したものである。総観規模で低温になっている領域で PSCs が観測されており、特に北極では低温領域と ILAS の PSCs 観測領域が非常によく対応している。

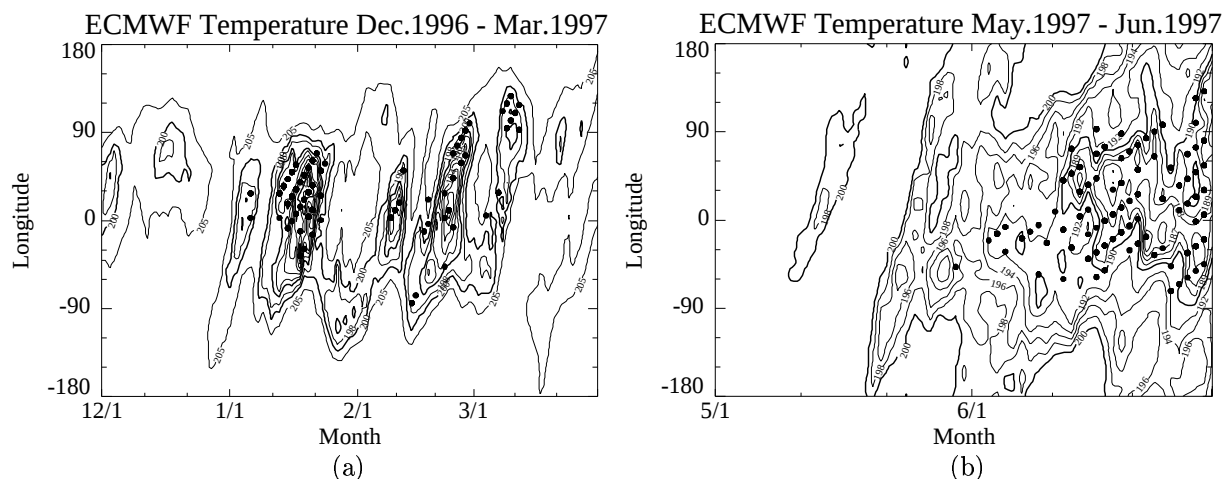


図 1 : ECMWF 気温データ経度・時間断面図、黒丸は ILAS による PSCs 観測位置を示す
(a) 北緯 67.5 度、温位 500K (b) 南緯 67.5 度、温位 550K

3 PSC 理論値の計算

観測値と様々な組成の PSC 理論値とを比較することで、観測された PSCs の化学組成を推定することが可能となる。本研究では、PSCs の組成として液相粒子である STS(supercooled ternary solution)、固相粒子である NAD(nitric acid dihydrate)、NAT(nitric acid trihydrate) を考慮した。STS 粒子形成を仮定した時に理論的に期待できる粒子体積および粒子に取り込まれた後に気相中に残存する硝酸量は、ILAS データから見積もられたバツ

クグラウンド硝酸量、水蒸気量、硫酸量を用い、熱力学モデルに基づいた Carslaw の理論式 [Carslaw et al., GRL 1995] を援用して計算した。NAD 粒子、NAT 粒子と平衡状態となる硝酸蒸気圧は Worsnop et al. [Science, 1993] と Hanson and Mauersberger [GRL, 1988] の実験式をもとに計算し、その値をもとに密度を仮定して (1.62g/cm^3) [Hofmann and Deshler, JGR, 1991] 理論粒子体積を求めた。理論体積と ILAS のエアロゾル消散係数データとを比較するために、粒径分布を仮定し [Deshler et al., JGR, 2000]、複素屈折率 [Luo et al., GRL, 1996; Toon et al., JGR, 1994] を与え、Mie 散乱理論をあてはめて、体積を $0.78\mu\text{m}$ 消散係数に変換した。

4 観測された PSCs の組成について

4.1 1997 年 1 月北極

図 2 は、北極の 1 月中旬高度 22km での (a)ILAS 消散係数データと UKMO 気温データ、(b) ILAS 硝酸データと UKMO 気温データの散布図である。黒丸は PSCs と判定されたデータを表している。10 日ごとと高度ごとに ILAS データから見積もられた値を用いて計算した STS(実線)、NAD(破線)、NAT(点線) の理論曲線もあわせて示してある。1 月中旬の高度 22km 付近では STS 理論値に近い値をもつデータが多く、消散係数値が STS 理論値に対応して増加しているところで硝酸が減少しており、特に低温領域においては消散係数が大きくなると硝酸がより減少している。特に 1 月 19、20 日は鉛直方向に比較的広範囲で STS の存在を示唆するデータが得られていた (図 3)。

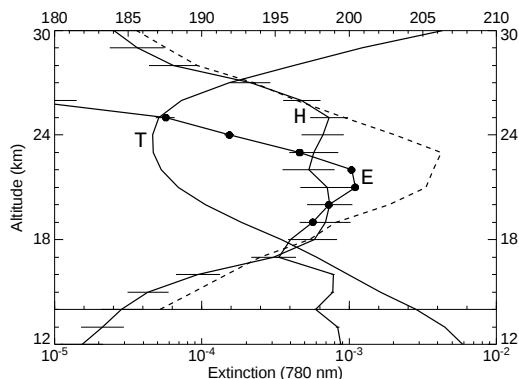
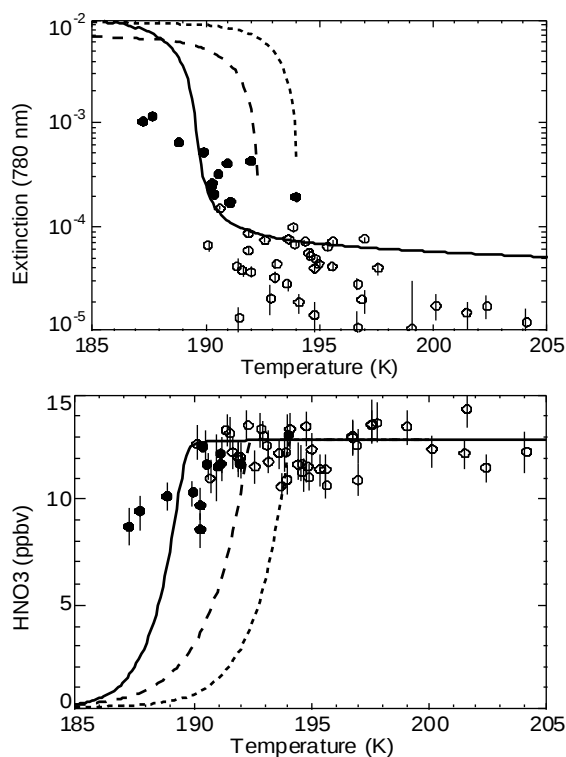


図 2：北極 1997 年 1 月中旬高度 22km で観測された ILAS データの散布図。同期間の STS 理論値、NAD 理論値、NAT 理論値をそれぞれ実線、破線、点線で示している

(上) $0.78\mu\text{m}$ エアロゾル消散係数 v.s. UKMO 気温 (K)

(下) 硝酸 (ppbv) v.s. UKMO 気温 (K)

図 3：1 月 19 日北緯 65.8 度、東経 21.6 度で観測された PSC プロファイル (消散係数) と対応する硝酸プロファイルおよび UKMO 気温プロファイル。破線は 1 月中旬の理論値計算に用いたバックグラウンド硝酸プロファイル (ILAS データより算出) を示している

次に、1 月中旬に観測された PSC イベントについて、それぞれの粒子体積の増加量から、STS を仮定した場合に粒子に取り込まれると考えられる理論硝酸量を計算し、その量と実際に大気中から除去された硝酸量とを比較した (図 4)。大気中の硝酸量と理論残存硝酸量は定量的に一致しており、STS を仮定すると観測された PSC 粒子の mass balance はよく保たれているといえる。さらに、ECMWF データを用いて 20 日間の backward 流跡線計算 [Matuzono et al., 1998] を行い、理論値との比較から STS の存在が示唆される粒子が経てきた気温を調べた。図 5 にその一例を示す。STS だと考えられる PSC イベントの気温履歴の多くは概ね図 5 に示された履歴と類似した特徴を持っている。この時期に観測された PSC イベントの多くは、観測直前以外は 20 日間 T_{ice} 付近の低温を経験しておらず、固相粒子の核となりうる氷粒子も硫酸水和物も観測時には存在していなかったと考えられるため、液相粒子が形成されやすい状況であったといえる [Tabazadeh et al., GRL, 1995]。

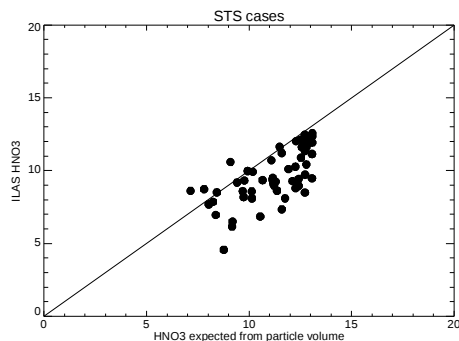


図4：1月中旬に観測されたPSCイベントについて、粒子体積の増加量からSTSが存在しているとして大気中に残存する硝酸量を計算した理論値（横軸）と対応するILAS硝酸観測値（縦軸）との比較

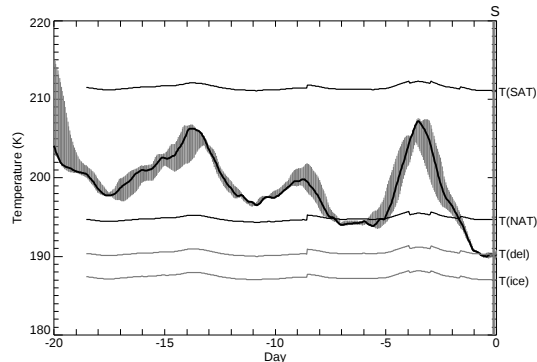


図5：1月中旬に観測されたSTSイベントの20日間の気温履歴
灰色部分は観測地点から東西南北100km離れた地点から流跡線を計算した場合の気温の振れ幅を表している
Sはスカンジナビア山脈通過時を示す

しかし、1月中旬に観測された特徴的なPSCイベントはスカンジナビア山脈の風下側で観測されたものが多く（例：図3）、観測時に山岳波による局所的冷却の影響を受けていた可能性が否定できない。図2に示されているように、 T_{ice} 付近で観測されているPSCイベントのいくつかは観測値と対応するSTS理論値との間に大きな隔たりがあるが、これは山岳波による局所的気温振動のために、STSが完全な平衡状態に達することができなかったことが一因であると考えられる [Voigt *et al.*, *GRL*, 2000]。また、ILASは高度20km付近で視線方向に約200kmと広いsampling volumeを持つため、観測視野の中にSTSとそれ以外の組成のPSCsあるいはエアロゾルが同時に存在していたという可能性があるが、図2に示されたPSCイベントと同時観測された水蒸気も大きく減少していることから [Pan *et al.*, *GRL*, 2002]、山岳波による急激な気温降下があったとすると、これらのデータはiceとSTSのmixtureの状態を示していると考えられる。

4.2 1997年3月北極

図6は北極の3月初旬高度18kmでの消散係数データ、硝酸データの散布図である。PSC時期の後期にあたる3月初旬には、観測されているPSCイベントの数は少ないが、図に示されているように、消散係数値、硝酸値ともにNAD粒子、NAT粒子の存在を示唆しているデータがみられる。

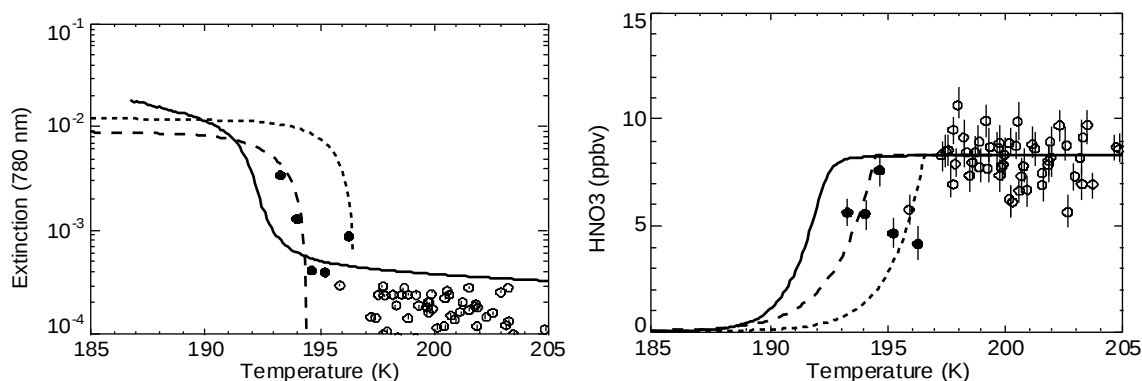


図6：北極1997年3月初旬高度18kmで観測されたILASデータの散布図
（左） $0.78\mu\text{m}$ エアロゾル消散係数 v.s. UKMO 気温 (K) （右）硝酸 (ppbv) v.s. UKMO 気温 (K)

3月の9日、10日には高度数kmにわたってNAD/NAT PSCsが観測されていた。図7にそれらのPSCイベントが経験した気温履歴の一例を示すが、図5に示された履歴と比較して、 T_{NAT} 以下経験時間が明らかに長く、20日間で T_{ice} 付近かそれ以下の気温まで下がっている。Larsen *et al.* [JGR, 1997]は、総観規模で少なくとも1日連続して T_{NAT} 以下を経験するか、 T_{NAT} 以下で総観規模の気温振動を経験すれば粒子が凍ることを示した。3月に観測されたこれらのイベントは T_{NAT} 以下を数日間以上連続して経験しており、Larsen *et al.* [JGR, 1997]

の結果を支持するものである。また、これらのイベントはいずれも観測直前に山岳波の影響を受ける可能性のある典型的な山岳領域を通過しておらず、観測時に山岳波による冷却のために氷粒子が形成されていたとは考えられない。図8は、図7に例示した PSC イベントを含む空気塊の流跡線に沿って、液相に対する固相の saturation ratio を計算した結果であるが、saturation ratio は 20 日間継続的に高い値を示しており、つまり nucleation rate が高いといえるため、homogeneous nucleation によって硝酸水和物 NAD/NAT が形成されたものと考えられる。しかし、もし以前に形成された硫酸水和物 (SAT) が融解することなく固体の状態で周囲に存在していたとすると、それを核として硝酸水和物が heterogeneous nucleation した可能性も否定できない。

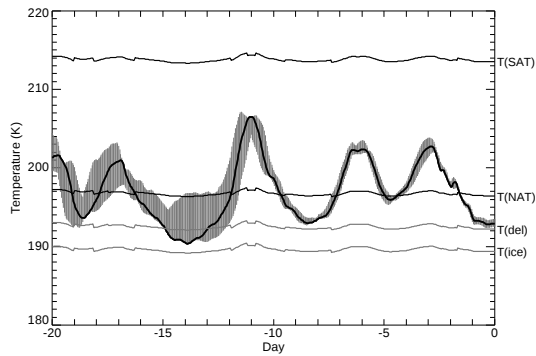


図7: 3月初旬に観測された NAD/NAT イベントの 20 日間
の気温履歴

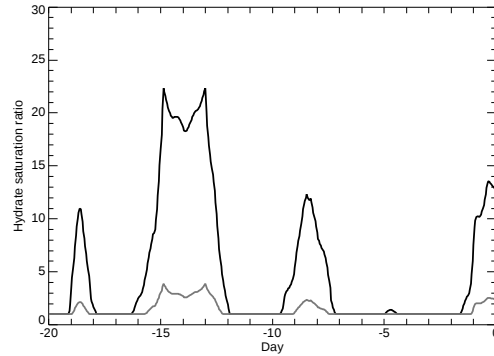


図8: 図7に例示した PSC イベントを含む空気塊の流跡線
に沿って計算した液相に対する固相の saturation ratio
黒線は NAT、灰線は NAD の saturation ratio

4.3 1997 年 6 月南極

南極では 1997 年 5 月下旬頃から PSCs が観測され始めており、6 月中旬・下旬には広い経度範囲で観測されている (図 1 参照)。南極で観測された PSC イベントについても北極同様に観測値と理論値との比較解析を行った結果、6 月下旬に関しては、硝酸・水蒸気減少量、消散係数増加量ともに STS で説明できるイベントが多く見られたが、6 月中旬は PSCs 観測時の水蒸気減少量が大きく、STS を仮定するとその減少量を説明することができない。北極と比較して南極では容易に T_{ice} 付近かそれ以下まで気温が下がるため、本研究で仮定した以外の組成、例えば ice PSCs などを考慮に入れて解析を行う必要がある。

5 まとめ

ILAS は 1997 年 1 月から 3 月にかけて、北極で約 60 の PSC プロファイルを観測しており、南極においても 5 月下旬頃から PSCs を観測し始め、6 月には西経 90 度から東経 90 度にかけて頻度高く観測している。本研究では、ILAS の $0.78\mu\text{m}$ エアロゾル消散係数データおよび硝酸、水蒸気データを用いて、観測された PSCs の化学組成推定を行った。1997 年 1 月～3 月に北極で観測された PSC イベントの組成別観測頻度を以下にまとめる。

	STS	NAD/NAT	unclassified	all PSC events
Jan.	32.4	23.6	44.0	148
Feb.	9.5	30.2	60.3	63
Mar.	3.2	64.5	32.3	31

表 1: 1997 年 1 月～3 月の PSC 組成別観測頻度 (単位は%)

詳細については *Saito et al. [JGR, 2002]* を参照されたい。