

ILASで観測された $ClONO_2$ に基づく NO_y , Cly 分配推定

林田佐智子・池田奈生・戸田庸子 (奈良女子大学理学部) 中島英彰 (国立環境研究所)

1 本研究の背景と目的

冬季両極域の下部成層圏で発生する大規模な化学的オゾン破壊について、これまでの研究から定性的な理解は大きく進んだが、定量的にはまだ十分に理解されていない。現在、化学的オゾン減少量が観測結果とモデル計算で一致しないことが問題として取り上げられている [Becker et al., 2000]。この原因として、モデル計算が活性塩素量を過小評価していることが報告されており、今後塩素系化学種を中心とした定量的理解が必要とされている。

最近 Advanced Earth Observing Satellite (ADEOS) 衛星に搭載された Improved Limb atmospheric Spectrometer (ILAS) センサーの大気微量成分導出アルゴリズムの改良が行われ、新たにクロリンナイトレイト ($ClONO_2$) と五酸化二窒素 (N_2O_5) が導出された。これらの化学種が導出された事により、冬季極域での化学的オゾン破壊に大きな影響を与える塩素系 (Cly)・窒素系 (NO_y) 化学種の定量的理解が期待される。

ここでは極域オゾン破壊過程の解明を目的とし、ILAS 観測値を用いた NO_y 分配比率の初期的解析結果を示す。

2 $ClONO_2$

冬季両極域の下部成層圏では極成層圏雲 (PSCs) 上での不均一反応により、リザボア種である不活性塩素はオゾン破壊する活性塩素へと変換される。そして春に近付くと活性塩素が不活性塩素へと変換され、オゾンが回復する。極域でのオゾン回復期における塩素系化学種の分配比率は、残存するオゾン量によって異なる。オゾンが十分に大気中に残存する場合、活性塩素は主に $ClONO_2$ へと変換される。一方オゾンがほとんど大気中に残存しない場合、 Cl/ClO 比、 NO/NO_2 比は共に大きくなり、 $ClO + NO_2 \rightarrow ClONO_2$ が抑制され、 $Cl + CH_4 \rightarrow HCl + CH_3$ が促進されるために、活性塩素は主に HCl へと変換される。

Douglass et al. [1995] は Upper Atmosphere Research Satellite (UARS) 衛星に搭載された Cryogenic Limb Array

Etalon Spectrometer (CLAES) センサーと HALogen Occultation Experiment (HALOE) センサーの観測値を用いて解析を行った。彼らは、Prather and Jaffe [1990] で示されたように、南極と北極ではオゾン回復期の $ClONO_2$ と HCl の分布の特徴が異なる事を示した。北極では極渦内で $ClONO_2$ が比較的高濃度でほぼ均一に分布していたのに対し、南極では極渦内は $ClONO_2$ 濃度が低く、 HCl 濃度が比較的高いことが示された。さらに極渦境界領域では活性塩素 (ClO_x) は主に $ClONO_2$ に変換されるため、境界に沿って $ClONO_2$ 濃度が高く、collar region と呼ばれる。Michelsen et al [1999] は飛行機観測と衛星観測結果を用いて、1992 年の冬季南極極渦内では HCl が卓越し、境界領域で $ClONO_2$ が卓越していた事を示した。モデル計算においても南極において同じような特徴が示された [WMO, 2002]。

CLAES センサーは UARS 衛星に搭載された他のセンサーと共に $ClONO_2$ などを観測し、貴重なデータを提供したが、残念ながら 1993 年に観測を終了した。冬季北極域での各化学種の状態は力学過程に大きく左右されるため、各年ごとの北半球の一連の化学種のデータが必要である。これまで飛行機や気球観測では観測データがいくつか存在したが、CLAES センサー以来 $ClONO_2$ の衛星観測は行われておらず、ILAS データは極めて貴重といえる。

3 ILAS センサーの $ClONO_2$ データ

ILAS の大気微量成分導出アルゴリズムの改良により、version 6 で新たに両半球で $ClONO_2$ が導出された。ILAS は ADEOS 衛星に搭載されたセンサーで、1996 年 8 月に打ち上げられた。ILAS は 1996 年 11 月から 1997 年の 6 月まで観測を行い、 H_2O , CH_4 , N_2O , NO_2 , HNO_3 , O_3 , エアロゾル (又は PSCs) の高度分布を観測した。観測は高緯度 (北緯 57.1° - 72.7° 、南緯 64.3° - 88.2°) の 1 日 14 点で行われた。ILAS は 9 か月間しか観測を行っていないが、これらの期間は 1996/1997 年の冬季北半球に当たり、極渦が比較的長い期間形成され、オゾンが大規模に破壊さ

れた特徴的な年であった。ILAS のデータに $ClONO_2$ が加わるにより、室素系・塩素系化学種の分配比率の推定が可能となる。

Nakajima et al. [2003] は ILAS version 6 の $ClONO_2$ 観測値と気球観測との比較を行い、相対的に ILAS 観測値が 30% 小さいことを示している。しかしこのようなバイアスがあるにもかかわらず、 $ClONO_2$ の高度分布観測結果の再現性は安定していることを報告しており、データの信頼性は十分にあると考えられている。

また我々の研究グループでは ILAS の観測値と HALOE の HCl を組み合わせ、極域夏季において $ClONO_2/HCl$ の比が $(O_3)^2/CH_4$ に比例することを明らかにした (本シンポジウム講演集: 戸田ら, ILAS で得られた $ClONO_2$ と HALOE で得られた HCl の比率 ~ オゾン・メタンとの関係 ~)。この結果は ILAS データが十分な信頼性を持っているということを裏付けている。

4 NO_y 分配比率

ILAS 観測値を用いた NO_y 分配比率の初期的解析結果を示す。図 1 と図 2 はそれぞれ北極と南極の温位 475K での ILAS 観測値から求めた $NO_y (= NO_2 + 2N_2O_5 + ClONO_2 + HNO_3)$ に対する NO_2 (左上), $ClONO_2$ (右上), HNO_3 (左下), N_2O_5 (右下) の分配比率の時系列と観測時の local time (実線) である。ここで N_2O_5 は未検証データである。これらの結果から北極 (図 1) では $ClONO_2$ は定常状態では NO_y の 5-10% を占めるが、冬季 2-4 月にかけては 20% 近くまで増加することがわかる。これは極渦内で活性塩素が不活性化するプロセスにおいて、 $ClONO_2$ が急激に生成されたためである。また HNO_3 は定常状態ではほぼ 90% を占めているが、2-4 月にかけては一部 60% 近くまで減少していることがわかる。また、観測時の local time と日変化の大きい NO_2 に着目すると、local time の変化とともに分配比率も変化している。さらに南極では 3 月から 4 月にかけて日の入りでの観測から日の出での観測へと観測イベントが推移し、観測時間帯が大きく変化する。これに伴って NO_2 と HNO_3 の分配比率も変化している。これは日変化化学種をオカルテーションで観測しているためであり、変化の解釈には local time を十分に考慮する必要がある。

ILAS は NO を観測していないために、ここで示した分

配比率には NO が含まれていない。今後は NO を考慮に入れた分配比率を考える必要がある。現在我々の研究グループではボックスモデルを用いて NO_y , Cl_y のシミュレーションを行い、NO を含めた分配比率の推定も行っている。

5 まとめ

本研究では ILAS 観測値を用いて 1996 年 10 月から 1997 年 6 月までの温位 475K での NO_y 分配比率の初期的解析を行った。その結果、図 1, 図 2 に示したような分配比率が得られた。また日変化の大きい NO_2 , N_2O_5 は観測時の local time に大きく依存しており、ILAS データの信頼性を裏付けると共に、日変化を考慮に含めた解析が必要であることがわかった。今後は ADEOS2 衛星に搭載された ILAS2 センサーの観測値に対しても同様の解析を行い、比較・検討を行う。

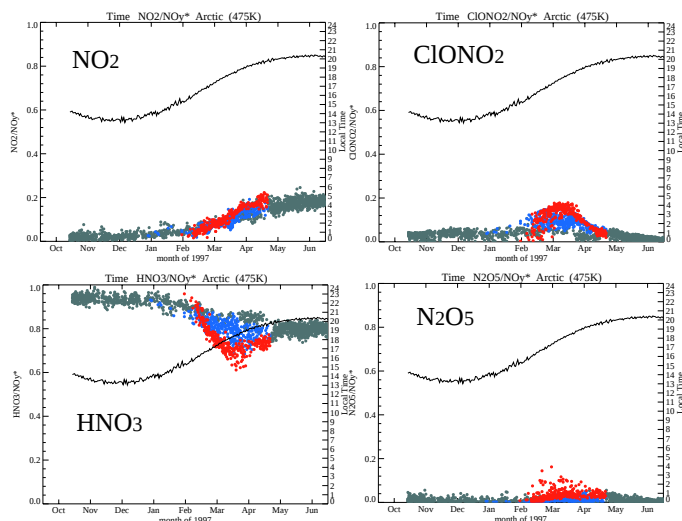


図 1: 北極、温位 475K での NOy 分配比率。縦軸:分配比率(左)、local time(右) 横軸:時間 (1997 年 10-6 月)

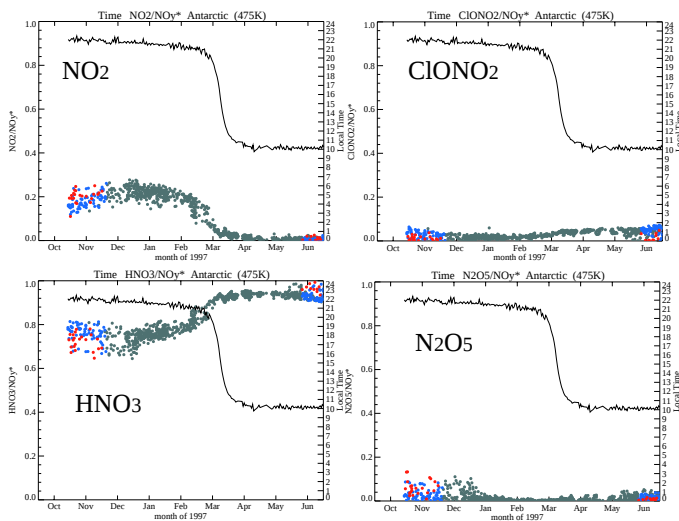


図 2: 南極、温位 475K での NOy 分配比率。縦軸:分配比率(左)、local time(右) 横軸:時間 (1997 年 10-6 月)

phys.Res.Lett

参考文献

Becker, B., R. Muller, D.S. McKenna, M. Rex, K.S. Carslaw, and H. Oelhaf, Ozone loss in the Arctic stratosphere in the winter 1994/95: Model underestimate results of the Match analysis, J. Geophys. Res., 105 (12), 15175-15184, 2000.

Douglass, A.R. et al., Interhemispheric differences in springtime production of HCl and ClONO2 in the polar vortices, J.Geophys.Res., 100 , 13,967-13,978, 1995

Michelsen, H.A., C.R. Webster, G.L. Manney, D.C. Scott, J.J. Margitan, R.D. May, F.W. Irion, M.R. Gunson, J.M. Russell, III, and C.M. Spivakovsky, Maintenance of high HCl/Cl_y and NO_x/NO_y in the Antarctic vortex: A chemical signature of confinement during spring, in J. Geophys. Res., pp. 26,419-26,436, 1999

Nakajima, H., H. Irie, T. Sugita, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. C. Toon, B. Sen, W. A. Traub, K. Jucks, T. Yokota, and Y. Sasano, Measurements of ClONO2 by ILAS in the high latitude stratosphere, to be submitted to Geo-

Prather, M, and A. H. Jaffe, Global Impact of the Antarctic Ozone Hole: Chemical Propagation, J.Geophys.Res., 95 , 3473-3492, 1990.

World Meteorological Organization, Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002