

冬季の対流圏オゾンの長期変動について

村松久史

LONG TERM TREND OF TROPOSPHERIC OZONE IN WINTER SEASON

By *Hisafumi* MURAMATSU

Synopsis

Ozone partial pressure in the upper troposphere (500–250 mb) obtained from umkehr observations over Japan shows different long term trends at Sapporo, Tateno and Kagoshima for the period 1960–1985. At Sapporo and Kagoshima ozone trend ($\mu\text{mb}/\text{year}$) is positive, while negative at Tateno in winter. The trend of ozone in the upper troposphere has the correlation with the trend of ozone transport from the lower stratosphere over the individual station.

Positive trend at Sapporo in the upper troposphere is closely correlated with the positive trends of both frequency of the intrusion event and the ozone concentration in the lower stratosphere. At Tateno negative trend of ozone is due to the decreasing trend of intrusion event. At Kagoshima ozone trend in the troposphere is scarcely related to the intrusion event.

1. はじめに

オゾンは $9.6\mu\text{m}$ の赤外放射を吸収するため温室効果をもつ。対流圏内のオゾンの変動の地上気温への影響の大きさについて、Fishman et al. (1979)¹⁾ は北半球対流圏のオゾン量が2倍になると地上気温は 0.9K 上昇すると報告している。

対流圏オゾンの長期的変動をみると、世界の各地で増加傾向にあることが測定値の解析で示されている (Liu et al., 1980²⁾: Angell and Korshover, 1983³⁾: Bojkov and Reinsel, 1984⁴⁾: Logan, 1985⁵⁾)。Angell and Korshover (1983)³⁾ によると北半球中緯度の高度 $2\text{--}8\text{km}$ のオゾン量は1970年から1981年の間に12%増加した。またLogan (1985)⁵⁾ によるとヨーロッパ・米国の都会・工業地帯から数100km以内では夏季に地表オゾンは極大を示し、また濃度は1940年代から現在までに $6\text{--}20\text{ppb}$ ($20\text{--}100\%$) 増加した。さらに対流圏中部のオゾン濃度も過去15年間で増加していると報告している。

対流圏オゾンの増加の原因は主として対流圏内の光化学過程によると考えられている。Liu et al (1980)²⁾ は北半球の中・上部対流圏のオゾンは1970–1980年に14–30%増加したと見積り、この増加の原因は成層圏から対流圏へ流入する NO_x と高空を飛行する航空機からの NO_x によるとしている。Crutzen and Gidel (1983)⁶⁾ によると航空機の影響は非常に小さく、工業活動と雷活動による NO_x が対流圏オゾンに影響を与え、北半球の夏の地表付近のオゾン濃度は工業化時代以後に2倍になったと見積っている。人間活動により放出される炭化水素、窒素酸化物や不完全燃焼から発生するCO等もオゾン濃度の増加に寄与しているという報告もある (Vukovich et al., 1985⁷⁾: Isaksen and Hov⁸⁾)

観測されるオゾン濃度の変動は光化学過程ですべて説明されるとは言えない。例えば(1)汚染の少ない場

所での地表オゾンの増加は認められない (Oltmans, 1981⁹⁾), (2)南半球では光化学過程によるオゾン増加は期待されないにもかかわらず Aspendale (38° S, 145° E) では増加している (Angell and Korshover, 1983³⁾), (3)接近した2地点, Hohenpeissenberg (48° N, 11° E) と Payerne (47° N, 7° E) のオゾン濃度をみると前者では増加傾向がいちぢるしいが, 後者では変化していない (Angell and Korshover, 1983³⁾) 等である。

上に述べたことをまとめると, 対流圏オゾンは自然変動が大きく, また地域差も大きいいため長期にわたる変化傾向の大きさ・原因については解明されていないと言える。

本報告は札幌 (43° N, 141° E), 館野 (36° N, 140° E), 鹿児島 (31° N, 130° E) で観測された冬季の対流圏オゾン濃度の経年変化と成層圏から対流圏へ輸送されるオゾン量との関連を調べたものであり, 札幌・館野では対流圏オゾンのトレンドは成層圏からの輸送のトレンドと一致することを示す。

2. オゾン輸送の見積りの方法

成層圏から対流圏へのオゾンの輸送過程の一つとして中緯度の寒帯前面に沿って流入する過程が重要であると指摘されている (Danielsen et al., 1985¹⁰⁾; Shapiro, 1980¹¹⁾; Muramatsu et al., 1984¹²⁾)。日本上空で観測された一例を Fig. 1 に示す (村松他, 1987¹³⁾)。この図は潮岬から札幌にいたる鉛直断面内のオゾン混合比の分布を示す。寒帯前面 (破線) に伴うジェット流 (J) の北側で圏界面 (太い実線) がジェット流の軸より下方へ沈み込み圏界面に裂け目が生ずる。この裂け目から成層圏の空気 (およびオゾ

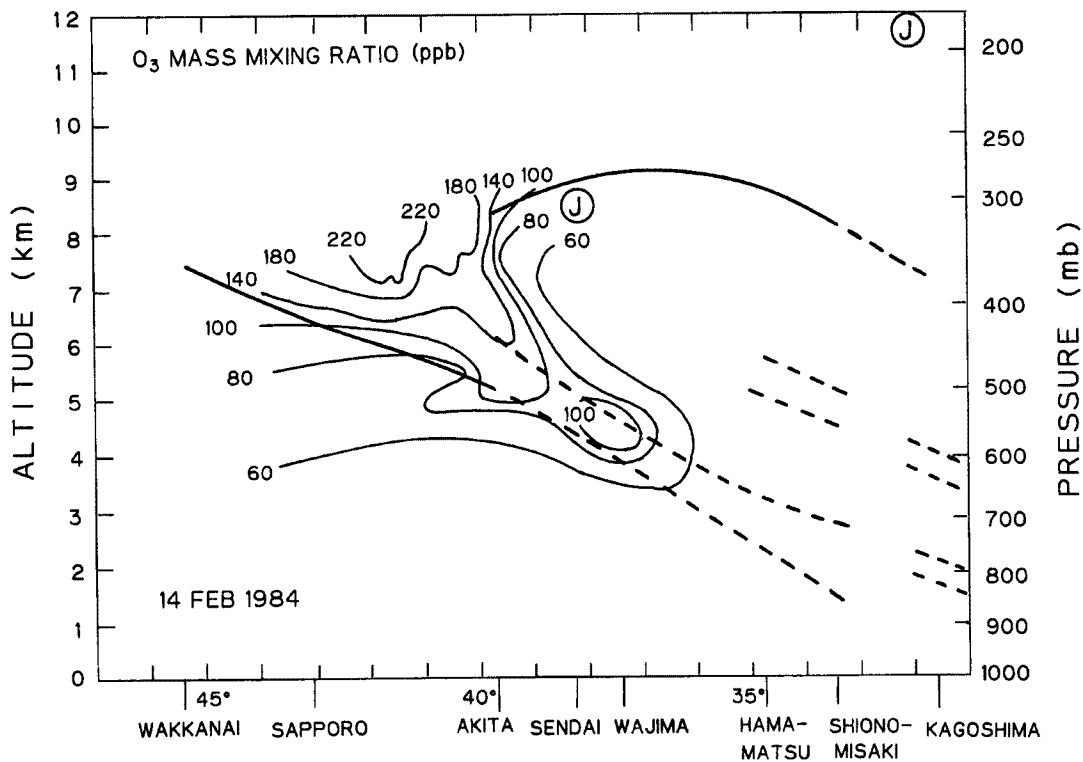


Fig. 1. Vertical cross section of ozone observed from an aircraft. Thin line; ozone mass mixing ratio (ppb); Heavy line; tropopause; Dashed line; frontal boundary; ① axis of jet stream.

ン) が対流圏へ輸送される。

ある地点の上空での個々の輸送現象によるオゾンの輸送量は、 $[O_3]$ をオゾン濃度、 V_z を圏界面 (350 mb) での下降流の速さとする $[O_3] \cdot V_z$ で与えられる。

ある期間内、たとえば1ヶ月 (または季節) 内の平均的オゾンの輸送量すなわち下向きフラックス $M(O_3)$ は

$$M(O_3) = [\overline{O_3}] \overline{V_z} P_r dS \dots\dots\dots (1)$$

で与えられる¹⁴⁾ (Fig. 2)。ただし $P_r dS$ はある地点 (面積 dS) の上空である期間内、たとえば1ヶ月間 (または季節)、に輸送現象が発生している割合 (確率)、 $[\overline{O_3}]$ 、 $\overline{V_z}$ は各々ある期間内の平均的オゾン濃度および鉛直下降流の速さである。Fig. 2 は Fig. 1 に示した観測結果と他のいくつかの結果をモデル化したものである。太い実線は圏界面を、破線は寒帯前面を表わす。

$$O_3 \text{ downward flux} = [\overline{O_3}] \overline{V_z} P_r dS$$

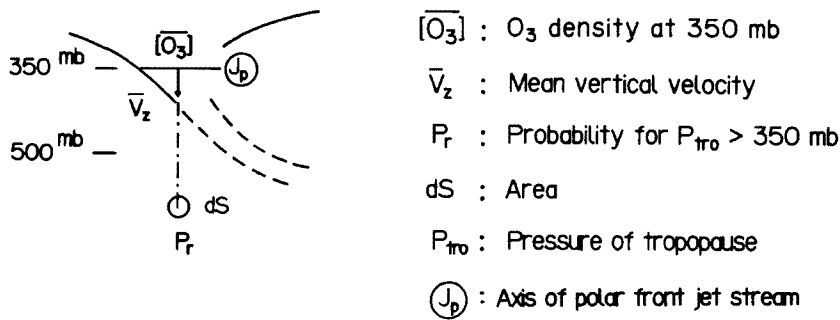


Fig. 2. Transport model to estimate the downward flux of ozone from stratosphere to troposphere.

この輸送現象は時間・空間的にかなりランダムに起るため、この現象を直接観測してオゾンの鉛直フラックスを求めた例は少ない。村松他 (1987)¹³⁾ は上記の方法で観測値をもとにアジア地区の冬季のオゾン輸送量を推定した。Viezee et al. (1983)¹⁵⁾ は上記とは異なる方法で、数回の観測からオゾンの鉛直フラックスを見積っている。

今回の報告は個々の輸送現象に関するものではなく、主として現象の発生する割合 (確率) の経年変化に着目している。なお流入するオゾン濃度としては 350 mb 面の値ではなく成層圏下部の平均値を使用している。

3. 対流圏上部のオゾンの長期変動

反転観測から得られるオゾンの高度分布は、下から第1層 (500-250 mb)、第2層 (250-125 mb)、第3層 (125-62.5 mb)、……、第9層 (1.96-0.98 mb) の各層内の平均分圧である¹⁶⁾。Fig. 3 には札幌、館野および鹿児島島の冬季 (12月, 1月, 2月) の第1層のオゾン分圧の経年変化を示す。冬季の圏界面の高さは札幌、館野では約 300 mb であり、鹿児島では約 100 mb である。したがって札幌、館野では第1層は対流圏上部と成層圏下部の一部のオゾンを含み鹿児島では対流圏のみのオゾンを含む。

Fig. 3 をみると札幌・鹿児島ではオゾン分圧が増加傾向にあり、一方館野では減少傾向にある。1960-1985年の期間について回帰直線を求め実線で示した。これによるとオゾン分圧の年変化率は札幌では $0.74 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、館野では $-0.15 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、鹿児島では $0.50 \mu\text{mb}/\text{年}$ である。これらの増加・減少傾向が有

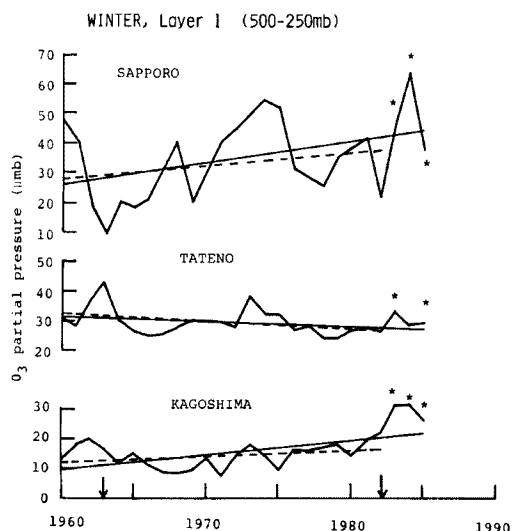


Fig. 3. Ozone partial pressure in the upper troposphere in winter. Vertical arrows; volcanic eruption of Agung (1963) and El Chichon (1982); *; data affected by the stratospheric aerosols from the eruption of El Chichon. Regression lines for the periods 1960-1985 and 1960-1982 are shown by the solid and broken lines, respectively.

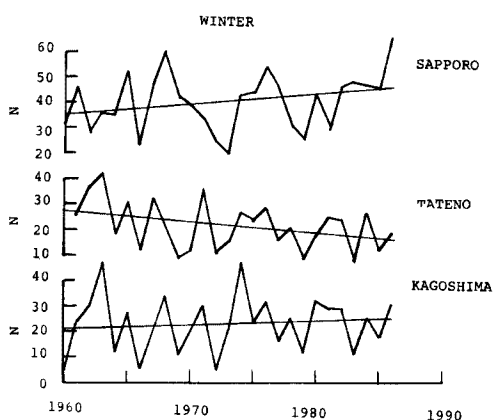


Fig. 4. Frequency of the event of ozone intrusion from stratosphere to troposphere.

意であるかどうかを判定する信頼係数は、札幌・館野・鹿児島について各々、0.94, 0.78, 0.99である。館野の値の有意さが低いが、札幌、鹿児島では増加傾向、館野では減少傾向にあると言える。

しかしながら反転観測に対しては、成層圏内のエアロゾル粒子が影響を与える。成層圏エアロゾル粒子の影響は見掛け上成層圏上部のオゾン量を小さくし、対流圏一下部成層圏のオゾン量を大きくする。この原因はエアロゾル粒子による光の散乱にあるが、粒子の光学的性質が現在まだ十分に分っていないのでこの影響を除去した正確なオゾン量は得られない。Fig. 3には1982年4月のEl Chichon噴火の後の1983年から1985年までの期間で影響を受けた資料に星印を付けてある。El Chichon噴火の影響を除外した1960-1982年の期間について回帰直線を求めFig. 3に破線で示した。この場合のオゾン分圧の年変化率は、札幌、館野、鹿児島で各々0.45 $\mu\text{mb}/\text{年}$ 、 $-0.24 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、 $0.21 \mu\text{mb}/\text{年}$ となる。増加または減少傾向は各々、0.67, 0.90, 0.89の信頼係数で有意である。札幌、鹿児島での信頼係数は小さくなり、館野では大きくなったが各々の地点での増加、減少傾向は変わらない。

4. 成層圏からのオゾンの流入の頻度

対流圏のオゾンの増加の原因については、対流圏内の光化学生成の増加によるとする報告^{6),7),8)}がある。我々は成層圏から対流圏への流入の寄与に着目する。Fig. 4は成層圏下部の空気（とオゾン）が対流圏へ流入する回数の経年変化を示す。Nは12月-2月の冬季に圏界面が350 mbより下に沈降した回数を高層観測資料¹⁷⁾から求めたものである。高層観測は1日2回実施されるので、冬季の全観測回数は約180回である。ある観測地点上空での流入の確率 P_r は $N/180$ で近似できる。したがってFig. 4は札幌、館野、鹿児島上空で成層圏から対流圏へのオゾンの流入の確率の経年変化を示す。

オゾン濃度の場合と同様回帰直線を求めると、Nの年変化率は札幌、館野、鹿児島について各々、0.42回/年、 -0.44 回/年、0.13回/年である。増加または減少傾向の統計的有意性を示す信頼係数は各々0.85, 0.94, 0.34である。

各地点でのNのトレンドはオゾンのトレンドと一致する。しかし鹿児島ではオゾンの増加傾向は統計的に有意であったが、Nの増加傾向は有意でない。館野ではオゾンおよびNは共に減少傾向で両者とも信頼係数0.90で有意である。札幌ではオゾンについてEl Chichon噴火の影響を無視すると、オゾン、Nとも増加傾向の信頼係数は大きいですが、El Chichon噴火の影響を考慮するとオゾン増加傾向の有意さは低下する。

5. 成層圏下部のオゾンの長期変動

成層圏下部のオゾンとして反転観測の第2層(250-125 mb)の値を採用しその長期変動をFig. 5に示す。ただし鹿児島では第2層は上部対流圏に属する。

前と同様に回帰直線を求めると1960-1985年の期間で年変化率が、札幌、館野、鹿児島で各々、 $1.12 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、 $0.055 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、 $0.041 \mu\text{mb}/\text{年}$ (実線)でいずれも増加傾向にあるが、これらの信頼係数は各々、0.86、0.30、0.28であり、札幌以外では小さい。第1層と同様El Chichon噴火の影響を受けた資料を除外すると(1960-1982年の期間で)、年変化率は札幌、館野、鹿児島で各々 $0.833 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、 $-0.150 \mu\text{mb}/\text{年}$ 、 $-0.135 \mu\text{mb}/\text{年}$ (破線)となり、増加、減少傾向は信頼係数0.69、0.67、0.62で有意である。

札幌では成層圏下部のオゾン濃度は増加傾向にあると見てよいが、El Chichonの影響を考慮すると有意性は低くなる。館野と鹿児島では、El Chichonの影響を考慮するかしないかで年変化率の符号が変わり、また有意性も低い。したがって館野では下部成層圏のオゾン濃度の増加または減少傾向はみとめられない。鹿児島の上部対流圏(250-125 mb)ではオゾン濃度の長期変動は認められない。ただし前に述べたように第1層(500-250 mb)では増加傾向である。

6. まとめおよび検討

成層圏から対流圏へのオゾンの流入フラックスを

(1)式で見積る場合、 P_r は流入の頻度Nから求め、

$[\overline{O_3}]$ は成層圏下部のオゾン濃度とする。平均下降流の速さ \overline{V}_z の経年変化は現在のところ見積ることができないので、仮に経年変化がないとすると、対流圏上部のオゾン濃度の経年変化は $[\overline{O_3}] \times N$ により決まる。

第1層、第2層のオゾンの長期変動のトレンドと成層圏から対流圏へのオゾン流入頻度の長期変動のトレンドを%/年で表わし、95%信頼限界とともにTable 1に示す。Table 1と第3、4、5章で述べた

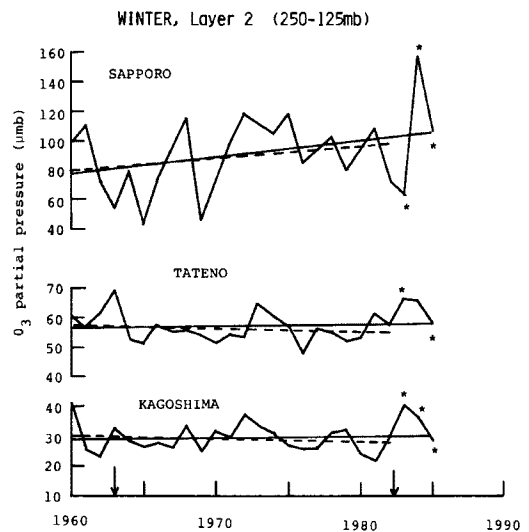


Fig. 5. Ozone partial pressure in the lower stratosphere (at Sapporo and Tateno) and in the upper troposphere (at Kagoshima). Vertical arrows; volcanic eruption of Agung (1963) and El Chichon (1982); *; data affected by the stratospheric aerosols from the eruption of El Chichon. Regression lines for the periods 1960-1985 and 1960-1982 are shown by the solid and broken lines, respectively.

Table 1. Trends (% per year) of ozone and intrusion frequency in winter with 95% confidence limits.

Station	Period	Trend (%/year)	Period*	Trend (%/year)
Ozone Layer 1 (500 - 250 mb)				
Sapporo	1960-1985	2.1 ± 2.2	1960-1982	1.4 ± 3.0
Tateno	1960-1985	-0.51 ± 0.78	1960-1982	-0.81 ± 0.98
Kagoshima	1960-1985	3.1 ± 1.7	1960-1982	1.5 ± 1.8
Ozone Layer 2 (250 - 125 mb) **				
Sapporo	1960-1985	1.2 ± 1.7	1960-1982	0.94 ± 1.98
Tateno	1960-1985	0.096 ± 0.49	1960-1982	-0.27 ± 0.57
Kagoshima	1960-1985	0.14 ± 0.97	1960-1982	-0.48 ± 1.1
Intrusion frequency				
Sapporo	1960-1986	1.0 ± 1.4		
Tateno	1960-1986	-2.0 ± 2.1		
Kagoshima	1960-1986	0.56 ± 2.5		

* : Data affected by the stratospheric aerosols from the eruption of El Chichon are omitted.

** : Trends are for the lower stratosphere at Sapporo and Tateno, and for the upper troposphere at Kagoshima.

ことから次のことが分る。

(a) 札幌では対流圏上部のオゾン濃度は増加傾向にある。成層圏から対流圏へのオゾンの流入頻度と下部成層圏のオゾン濃度は両者とも増加傾向にある。したがって対流圏オゾンの増加は成層圏からの流入の増加に関連しているが、流入頻度か成層圏下部のオゾンの濃度のどちらとの関連がより強いかわからない。El Chichon 噴火の影響を考慮に入れると対流圏、下部成層圏のオゾンの増加傾向の統計的有意さは低くなる。

(b) 館野では対流圏オゾンの濃度は減少傾向にある。一方成層圏下部のオゾンの濃度の長期変動はないが、成層圏から対流圏へのオゾンの流入頻度は減少傾向である。したがって対流圏オゾン濃度の減少は流入頻度の減少に起因する。

(c) 鹿児島では対流圏のオゾン濃度 (500-250 mb) は増加傾向にある。成層圏から対流圏へのオゾンの流入現象の頻度は増加傾向にあるが統計的に有意でない。500-250 mb の対流圏へ流入するオゾンは鹿児島上空の第2層 (250-125 mb) からとするか、または北側の館野上空の成層圏下部からとしても、そこでのオゾン濃度の長期変動傾向はみとめられない。したがって500-250 mb 層のオゾン濃度の増加傾向と鹿児島上空でのオゾンの流入現象の変動との関連は弱い。

いままでは冬季のオゾン濃度の変動をみてきたが、他の季節についての変動傾向を Fig. 6 に示す。縦軸はオゾン分圧の年変化率 ($\mu\text{mb}/\text{年}$) で丸は1960-1985年、四角は1960-1982年 (El Chichon 噴火の影響を受けた資料を除外) の直線回帰から求めた値である。信頼係数が0.90以上で有意なものは黒く塗りつぶした。

第1層は3地点で全季節とも対流圏のトレンドを表わしている。札幌ではすべての季節で増加傾向にある。ただし春の増加の有意性は低い。館野では冬季を除いて有意なトレンドはない。鹿児島では全季節で増加傾向である。

第2層は札幌、館野では冬と春は成層圏下部の、夏と秋は対流圏のオゾン変動を示す。札幌では全季節で増加傾向を示すが、秋以外では有意性は低い。館野では有意な変化傾向はない。鹿児島では第2層は全

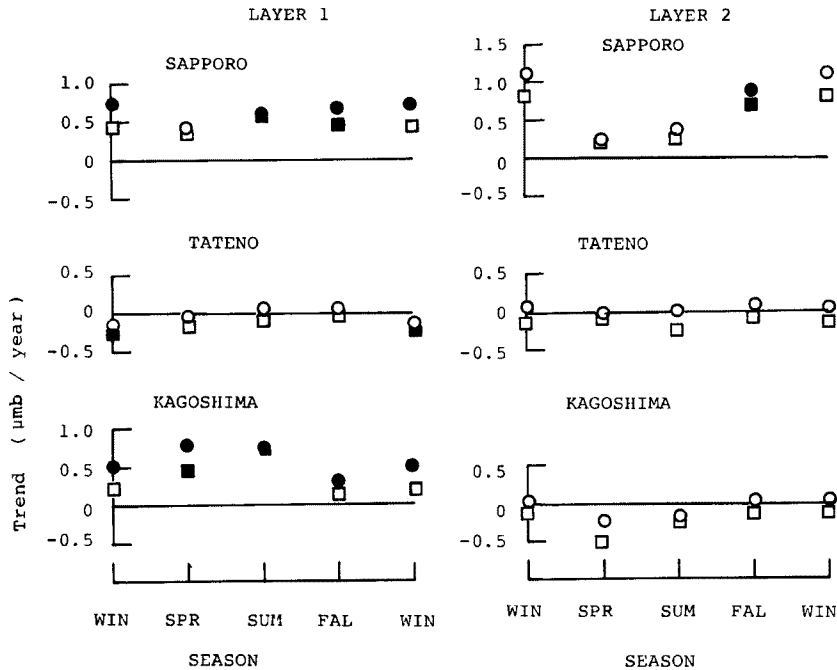


Fig. 6. Seasonal ozone trends (μ mb/year).

Circles show the trends for 1960-1985 and squares for 1960-1982. Solid circles and squares show the trends significant with 0.90 confidence coefficient.

季節で対流圏に属し、春、夏に減少傾向を示すが有意性は低い。

日本以外の観測点に関しては、年平均または季節平均でみると対流圏ではオゾンが増加し成層圏下部では減少する傾向がみられる⁴⁾。この傾向と異なり第1層のオゾンが減少傾向を示す地点が館野以外にも存在する。たとえばヨーロッパ地域の年平均オゾンのトレンド(%/年)をみると Belsk (52° N, 21° E), Arosa (47° N, 10° E), Mt. Louis (42° N, 2° E) で各々 2.8 ± 0.9 , -0.63 ± 0.29 , 2.62 ± 0.82 であり⁴⁾、観測地点でトレンドが異なる。なおこれらの値の信頼限界は standard error を表わしている。またカナダでも Edmonton (53° N, 114° W) と Goose Bay (53° N, 60° W) で各々 0.98 ± 0.85 と -1.02 ± 0.98 の異なるトレンドを示す⁴⁾。

対流圏のオゾン濃度の長期変動は対流圏内での一様な光化学過程だけでなく、成層圏から対流圏への流入現象の影響を受けると考えられる。日本、カナダ、ヨーロッパは低気圧擾乱の発達する地域でありまた上に示したようにこの地域でオゾンのトレンド(増加または減少傾向)に差がみられることは、大気の循環(成層圏から対流圏への輸送過程を含めた)がオゾンのトレンドに影響を与えていることを示している。

本報告では冬季のみの解析結果を示したが、今後他の季節についても同様の解析をすすめる予定である。

謝 辞

本研究に必要なオゾンの資料の入手に関して気象庁気象研究所牧野行雄室長と同高層気象台廣田道夫課長の御協力を感謝します。

参考文献

- 1) Fishman, J., V. Ramanathan, P.J. Crutzen and S.C. Liu: Tropospheric ozone and climate, Nature, Vol. 282, 1979, pp. 819-820.

- 2) Liu, S. C., D. Kley, M. McFarland, J. D. Mahlman and H. Levy II: On the origin of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, Vol. 85, 1980, pp. 7546 - 7552.
- 3) Angell, J. K. and J. Korshover: Global variation in total ozone and layer-mean ozone: An update through 1981, *J. Climate and Appl. Meteor.* Vol. 22, 1983, pp. 1611 - 1627.
- 4) Bojkov, R. D. and G. C. Reinsel: Trends in tropospheric ozone concentration, *Pro. Ozone Symp., Halkidiki, Reidel*, 1984, pp. 775 - 781.
- 5) Logan, J. A. : Tropospheric ozone: Seasonal behavior and anthropogenic influence, *J. Geophys. Res.*, Vol. 90, 1985, pp. 10463 - 10482.
- 6) Crutzen, P. J. and L. T. Gidel: A two-dimensional photochemical model of the atmosphere 2: The tropospheric budgets of the anthropogenic chlorocarbons, CO, CH₄, CH₃Cl and the effect of various sources on tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, Vol. 88, 1983, pp. 6641 - 6661.
- 7) Vukovich, F. M., J. Fishman and E. V. Browell: The reservoir of ozone in the boundary layer of the eastern United States and its potential impact on the global tropospheric ozone budget, *J. Geophys. Res.*, Vol. 90, 1985, pp. 5687 - 5698.
- 8) Isaksen, I. S. A. and O. Hov: Calculations of trends in the tropospheric concentration of O₃, OH, CO, CH₄, and NO_x, *Tellus*, Vol. 39 B, 1987, pp. 271 - 285.
- 9) Oltmans, S. J. : Surface ozone measurements in clear air, *J. Geophys. Res.*, Vol. 86, 1981, pp. 1174 - 1180.
- 10) Danielsen, E. F. : Ozone transport in "Ozone in the Free Atmosphere" R. C. Whitten and S. S. Prasad eds., Van Nostrand Reinhold, New York, 1985, pp. 123 - 159.
- 11) Shapiro, M. A. : Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere, *J. Atmos. Sci.*, Vol. 37, 1980, pp. 994 - 1004.
- 12) Muramatsu, H., T. Sasaki, M. Hirota and Y. Makino: An aircraft observation of an intrusion process of stratospheric ozone into the troposphere, *Papers in Meteor. and Geophys.* Vol. 35, 1984, pp. 1 - 10.
- 13) 村松久史・旭満・牧野行雄・広田道夫・佐々木徹・桑島正幸: オゾンの消長に係る微量成分の測定, 気象研究所研究報告書. 昭和61年度1987, pp. 237 - 256.
- 14) Muramatsu, H., Y. Makino, M. Hirota and T. Sasaki: Intrusion process of stratospheric ozone into the troposphere over Japan, *International MAP Symposium*, Kyoto, 1984.
- 15) Viezee, W., W. B. Johnson and H. B. Singh: Stratospheric ozone in the lower troposphere-II. Assessment of downward flux and ground-level impact, *Atmos. Env.*, Vol. 17, 1983, pp. 1979 - 1993.
- 16) Ozone Data for the World, Atmospheric Environment Service, Department of the Environment, Downsview, Canada.
- 17) Aerological Data of Japan, Japan Meteorological Agency, Tokyo.