

# 成層圏オゾンの地表オキシダント濃度に 及ぼす影響に関する一考察\*

村尾直人・大喜多敏一・太田幸雄\*\*

## 要旨

気象データ、汚染物データから、4月、5月に北海道においてみられる比較的高いオキシダント濃度について、成層圏オゾンの沈降の寄与が考えられることを示した。さらに、大雪山で行った観測によってその現象を確認した。また、成層圏オゾンの沈降の機構について、最近の研究をまとめ、大雪山での観測例は高気圧性の沈降と推定した。

## 1. はじめに

光化学反応による大気汚染は、当初中緯度地域に位置する大都市に特有の問題と考えられていたが、その測定が進むにつれて、オキシダントによる汚染が、都市域、非都市域をとわず、世界的に広がっていることが認識されてきている。日本においても、オキシダントの1時間平均濃度について、環境基準 60 ppb が設定されているが、現在のオキシダント制御は、オキシダント物質のバックグラウンドを無視した上で、一次汚染物質である炭化水素、NO<sub>x</sub> の制御によって、環境基準の達成をめざしているといえよう。

一方、フィールド測定においても、夏期の高オキシダント値と一次汚染物質との関係を明確にしようとする試みが多くみられ、かなりの成果をおさめているが、非都市域での常時観測が整備されるにつれて、オキシダントの長距離輸送、さらに、人為発生源の寄与がほとんど考えられない高濃度オキシダントの出現が報告されるようになった。オキシダントの主成分がオゾンであること、また、オゾンが対流圏において自然の構成成分であることはよく知られているが、そのレベルや季節変動、地域分布などについての知識は十分でないといわざるを得ない。

第1表 成層圏空気と対流圏空気の混合プロセス  
(1半球についての質量パーセント)

圏界面高度の季節変動	10%
平均子午面循環 (Hadley Cell 内の循環)	43%
乱流混合 (ジェット気流)	20%
雷雲	} negligible
雲頂からの放射冷却による 圏界面の移動	
成層圏間の交換	16%
	89%

以下では、成層圏オゾンの沈降の機構に関するこれまでの成果をまとめるとともに、筆者らが北海道地方のオキシダント濃度について行った解析、および、大雪山で行った観測結果について述べる。

## 2. 成層圏と対流圏の物質交換について

成層圏空気の沈降が北緯 30°~60° で卓越すること、成層圏下層のオゾン濃度が春に最大になることはよく知られているが、それに伴い、オゾンの対流圏への沈降も、春期に年平均の 1.5~2.0 倍になるといわれている (Hanwant ら, 1978)。

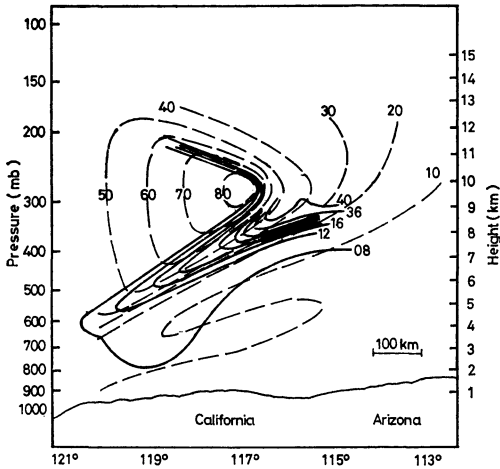
Reiter (1976) は、1半球の成層圏空気の収支を第1表のように示し、全体の和から成層圏間での交換を除き、1年間に成層圏空気の73%が対流圏空気と交換し、オゾンについては、成層圏の下層から、1年間に、成層圏オゾンの全量 ( $\approx 2.4 \times 10^9$  トン) のほぼ50%が対流圏に流入するとしている。

\* Contribution of Stratospheric Ozone on the Ground-level Oxidant Concentration.

\*\* Naoto Muraio, Toshiichi Okita, and Sachio Ohta, 北海道大学工学部。

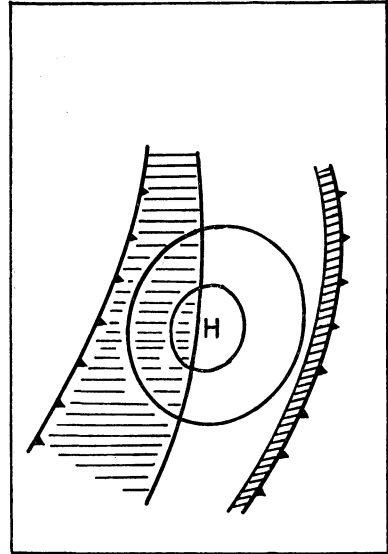
—1981年8月27日受領—

—1982年3月23日受理—

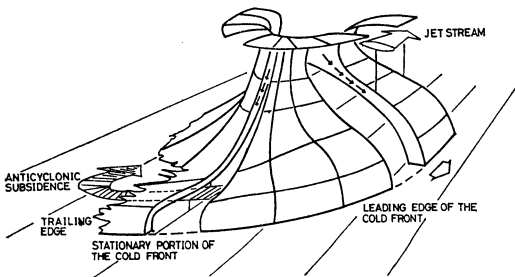


第1図 ジェット気流周辺での tropopause folding 現象の観測 (Sharpiro, 1978).

点線はジェット気流の速度 (m/sec) の分布を示す。風向は紙面から読者の方向に直角に吹いている。実線はオゾン (pphm) の等濃度線を示し、12 pphm 以上の濃度は成層圏大気を示していると考えられる。



第2図 成層圏オゾンの沈降により、地上のオゾン濃度が高くなる地域—斜線部 (Wolff ら, 1979).



第3図 寒冷前線による成層圏オゾンの沈降をあらわす模式図 (Harthorn ら, 1976).

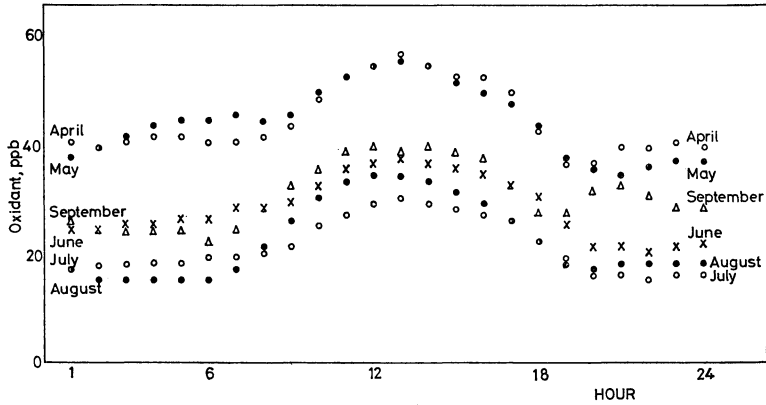
前線面は、先端、後端での前線層の厚さを示すため切断されており、層内を成層圏空気が沈降する様子が示されている。また、前線後端では前線層が消滅し、高気圧による沈降が示されている。

成層圏オゾンの地表濃度への寄与を考える時間問題となるのは、その混合プロセスの時間スケールとオゾンの滞留時間である。第1表に示した混合プロセスのうち、“Hadley Cell”内の循環による混合は数週間の時間スケールで、また、ジェット気流を伴う寒冷前線によって生じる混合は極めて急速で、数時間のスケールで起こるとされている。一方、オゾンの対流圏内での滞留時間は1

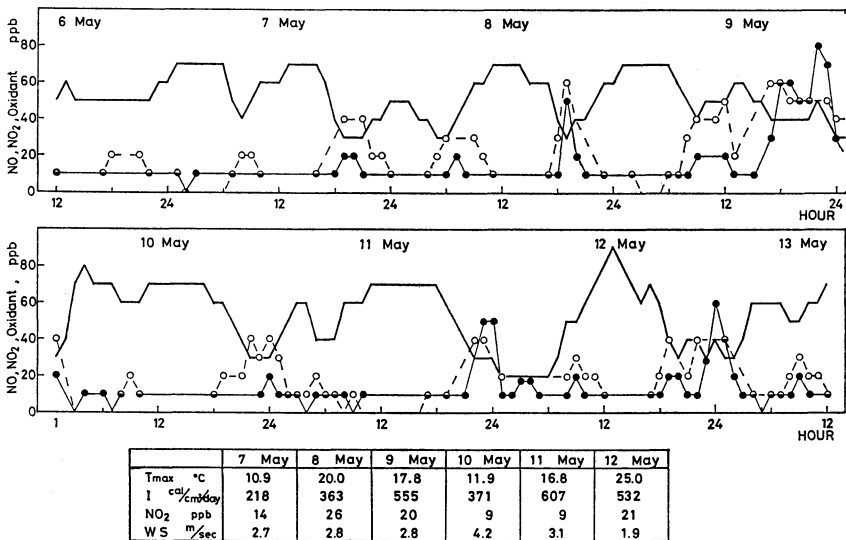
～4カ月といわれており、成層圏オゾンの地表オキシダント濃度への寄与は十分に考えられる。特に、ジェット気流を伴う寒冷前線の後面での急速なオゾンの沈降は、地表において高いオゾン濃度を与える機構として注目されている。第1図は、アメリカ西海岸において、ジェット気流付近での tropopause folding を観測した例であるが、80 ppb のオゾンの等濃度線が800 mb程度にまで達している (Sharpiro, 1978, 1980)。この機構については第3図において述べる。

一方、Wolff ら (1979) は、成層圏オゾンの地表濃度への寄与を確認する目的で、<sup>7</sup>Be 濃度とオゾン濃度との相関をとり、田園地域で有意な結果を得たが、そこで、成層圏オゾンの地表オゾン濃度への寄与が、寒冷前線の後面だけでなく、第2図に示すように、寒冷前線を背後にひかえた高気圧の後面においてもみられることを示した。高気圧の後面でのオゾンは、それまで地表面近くでの光化学反応によって生成すると考えられていたため、その機構に興味を持たれたが、寒冷前線後面での沈降よりも時間スケールが幾分か大きいものとして、次のように説明されている。

Harthorn ら (1976) は、テキサス州において、州規模のオゾン濃度上昇が寒冷前線通過後の数日間に高気圧後面で起こっていることと、前線が広域に長時間存在し、それがオゾンを多く含む安定な層であることから、



第4図 札幌市東保健所における1時間平均オキシダント濃度の1月にわたって平均した日変化の様子(1975年).



第5図 1975年5月6~12日, 札幌市東保健所におけるオキシダント濃度, NO<sub>x</sub>濃度, および, 日最高気温(Tmax)日平均風速(WS), 午前6~9時平均NO<sub>2</sub>濃度(NO<sub>2</sub>), 全天日射量(I).

— オキシダント濃度, —○— NO<sub>2</sub>濃度, —●— NO濃度

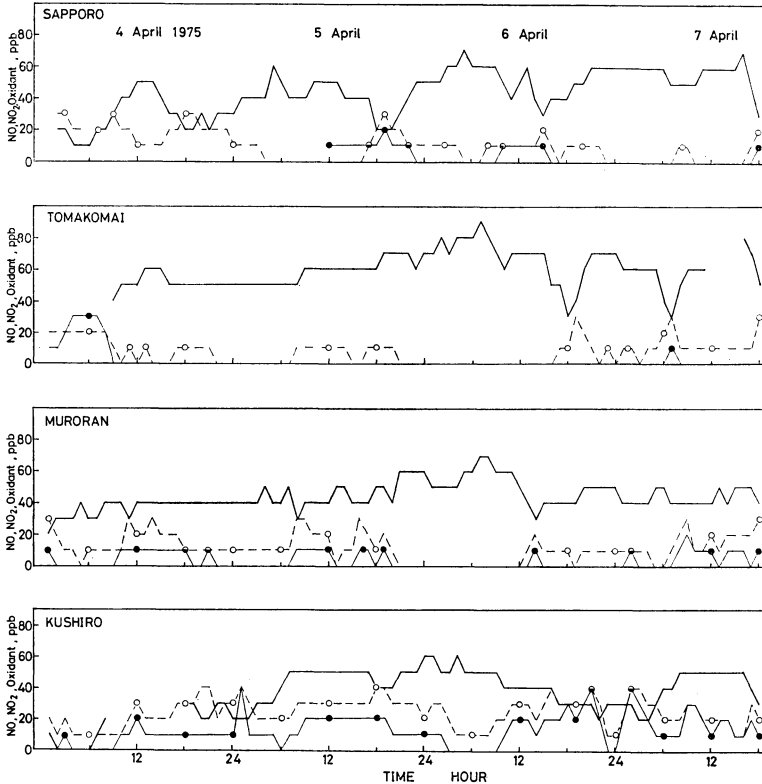
次のような機構を考え, 模式図(第3図)を作成した.

1. オゾンを多く含んだ成層圏空気が, ジェット気流付近で, 発達した前面層に沿って沈降し始める.
2. 数日後, オゾンはさらに等温位面に沿って沈降し, 寒冷前線の後端に達する.
3. 寒冷前線の後端において, 高気圧による沈降によりオゾンが地表に達する.

Stickel (1976) は, この“オゾンを多く含んだ安定

な前面層”を, 地表濃度に影響を与える潜在的補給源と考えている.

また, Johnston ら(1979) は合衆国中央部での測定から同様の機構を支持しており, 上記の機構は成層圏オゾンの沈降の機構として, ほぼ定着しているといえよう.



第6図 1975年4月4～7日, 札幌, 苫小牧, 室蘭, 釧路でのオキシダント濃度, NO<sub>x</sub>濃度変化。  
 — オキシダント濃度, —○— NO<sub>2</sub>濃度, —●— NO濃度

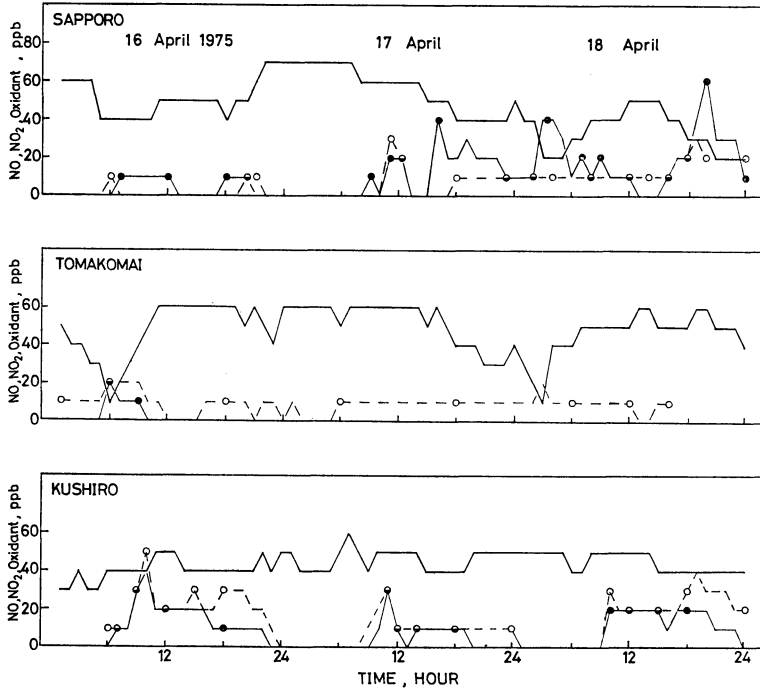
3. 北海道における例

北海道において, 4月, 5月に深夜, 早朝から長時間にわたって, 環境基準(1時間値 60 ppb)を上回るオキシダント濃度が出現するケースがしばしばみられ, その解析を行ったところ, それらが成層圏起因のオゾンの寄与が大きい高濃度状態ではないかと考えられる点をいくつか確認したので以下に述べる。なお, 解析には北海道のオキシダント測定局のうち, 札幌, 苫小牧, 室蘭, 釧路について, 1975年, 1976年, 4月, 5月分のデータを使用した。札幌市に関しては, 比較的自動車排ガスの影響が小さいと思われる東保健所のデータを用いた。

成層圏オゾンの寄与にふれる前に, 札幌市におけるオキシダントによる汚染状況を簡単に述べる。

第4図に, 札幌市東保健所における1975年の1時間平均オキシダント濃度を1カ月にわたって平均した日変化を示す。4月, 5月は図に示したように早朝から高いオキシダント濃度がみられるが, 日変化の様子は4～9月

で大きな差がみられない。すなわち, オキシダントが, 一次汚染物質に太陽光が照射されることによって引き起こされた光化学反応の生成物であるという意味で, オキシダントの日中の生成量を問題とするならば, 4月, 5月に, 特に光化学反応による汚染が, 卓越しているとはいえないと考えられる。そこで, 日中の最高濃度と早朝の最低濃度との較差を新たに指標として用いると, 高濃度状態は, 濃度較差が極めて大きい場合だけでなく, かなり小さい場合にも数多くみられることがわかった。ここで, 通常光化学スモッグと呼ばれる範囲にあるのは, もちろん前者であるが, それを与える条件としては, これまでの著者らの解析(村尾, 1980)から, 比較的高い一次汚染物質濃度, 海風の侵入, 弱風, 高温, 高日射量が増えられ, さらに気圧配置としては, 北緯35°～40°付近の日本海～三陸沖にある高気圧の圏内に入り, しかも気圧傾度が極めて弱い安定な配置であることがあげられる。



第7図 1975年4月16~18日, 札幌, 苫小牧, 釧路でのオキシダント濃度, NO<sub>x</sub> 濃度変化。  
 — オキシダント濃度, —○— NO<sub>2</sub> 濃度, —●— NO 濃度

第2表 1975年4月5日, 6日, 16日, 17日, 札幌市における日最高気温, 全天日射量, 午前6時~9時平均 NO<sub>2</sub> 濃度, 日平均風速.

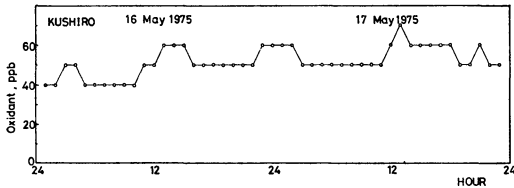
	日最高気温 (°C)	全天日射量 (cal/cm <sup>2</sup> /day)	NO <sub>2</sub> 濃度 (ppb)	日平均風速 (m/sec)
4月5日	9.3	233	9	3.9
4月6日	8.7	193	6	5.4
4月16日	9.8	268	9	2.7
4月17日	10.3	153	4	4.1

一方, 4月, 5月には濃度較差が小さいにもかかわらず, 早朝からオキシダント濃度が高く, 長時間にわたって高濃度状態がつづくという現象がみられ, さらにそれらは, 前述した気象条件とは大きく異なった条件下で起こっていることが以下のように明らかになった.

第5図に, 1975年5月6~12日, 札幌市東保健所におけるオキシダント濃度, NO<sub>x</sub> 濃度および, 日最高気温, 日平均風速, 6~9時平均 NO<sub>2</sub> 濃度, 全天日射量

を示す. 5月8日, 12日は, オキシダントの濃度較差が比較的大きく, 一般的な日変化を示しているが, 5月7日, 9日, 10日の場合, 深夜から早朝のオキシダント濃度が高く, さらに日中の濃度変化が小さいことから, 高濃度状態が長時間持続している. ここで, 21時前後にオキシダント濃度が減少する例がみられるが, これは大気が安定になるのに加えて, 自動車排ガスによる NO との反応が増加するためであると考えられ, それは同時刻の NO<sub>2</sub> 濃度が高くなることから確認できる.

一方, 気象要素をみると, 通常の日変化パターンがみられた8日は, 弱風, 高温, 高日射量となっているが, 7日, 9日, 10日については, 低温, 低日射量で, 風も10日は比較的強く, これらのオキシダントを“大気低層での光化学反応によって生成したオキシダント”とすることはできないと考えられる. 特に, 早朝の NO 排出と逆転層の上昇に対してオキシダントの高濃度レベルを維持するためには, かなりの量のオキシダント物質の補給を必要とする. 以上の点から, 筆者らはこれらのオキシダント物質の補給源を成層圏オゾンの沈降に求めるこ

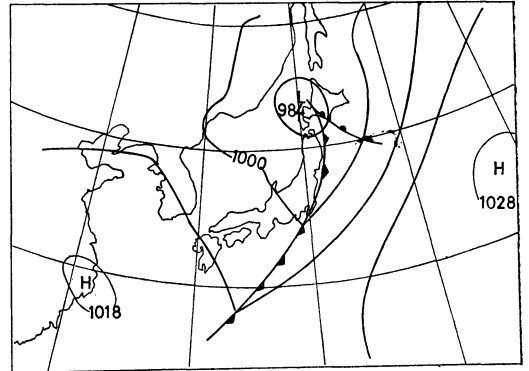


第8図 1975年5月17日，釧路におけるオキシダント濃度変化。

とが最も妥当と考え、広域的なオキシダントの挙動の確認を行った。

第6図に、1975年4月4～7日の札幌，苫小牧，室蘭，釧路，第7図に、同じく4月16～18日の札幌，苫小牧，釧路のオキシダントと  $\text{NO}_x$  の濃度変化，第2表には、これらの日の最高気温，全天日射量，日平均風速，早朝（6～9時平均）の  $\text{NO}_2$  濃度の札幌，東保健所での値を示す。4月6日，17日に、札幌で観測された早朝からの高いオキシダント濃度は、図にみられる通り道内各地で発現しており，気象条件も元にした例に等しく強風，低温，低日射量となっている。さらに4月6日，17日は，札幌で降雨を記録している。

第8図に、1975年5月17日の釧路のオキシダント濃度変化を示す。この日は最終的に150mmをこえるこの時期としてはめずらしい記録的な豪雨だったが，オキシダント濃度は高く，13時に70ppbを記録している。しかし，この日の札幌，苫小牧ではオキシダント濃度が比較的低く，ここに示されたオキシダント（オゾン）が成層圏起因であるとするにはその論拠に乏しいが，気象条件からみて他のオキシダント物質の補給が考えにくいことからこの例を成層圏オゾンの寄与とみるならば，その地域スケールを考える意味で参考にできよう。第9図に4月6日午前9時の地上天気図を示すが，この例に限らず，成層圏オゾンの寄与が考えられる日はすべて寒冷前線の通過前後になっており，札幌においても，第2図に示した2つの領域でこの現象があらわれていることがわかった。また，第7図，第8図に示した4月6日，17日について上層断面図を作成したところ，測定点に対して寒冷前線が平行に位置したため，寒冷前線を横切る断面図は作成できなかったが，NE～SWにのびる寒冷前線に平行にジェット気流の存在を確認した。これらのことは，これまで示した成層圏オゾン沈降の必要条件を満足しているといえよう。



第9図 1975年4月6日，午前9時，地上天気図。

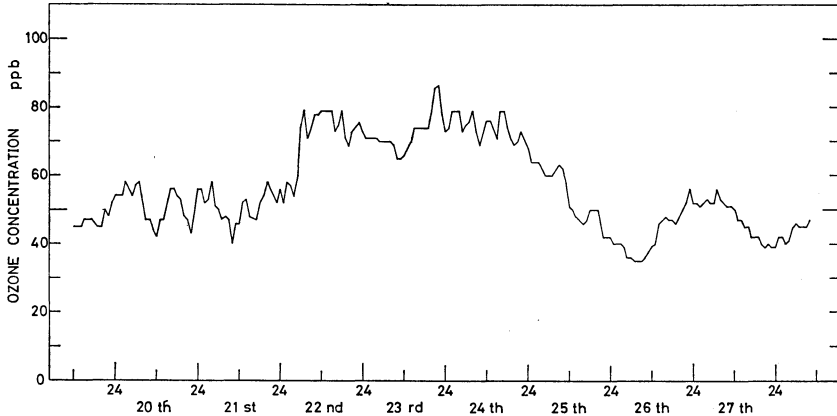
#### 4. 大雪山におけるオゾン濃度の測定

以上の考察をもとに、1981年4月19～28日に、北海道大雪山旭岳ロープウェイ-姿見駅（高度1595m）にてオゾン濃度の連続測定を行った。オゾン濃度は、DASIBIオゾン濃度計1003-AHの指示値に、高度補正係数1.21を乗じて求めた。

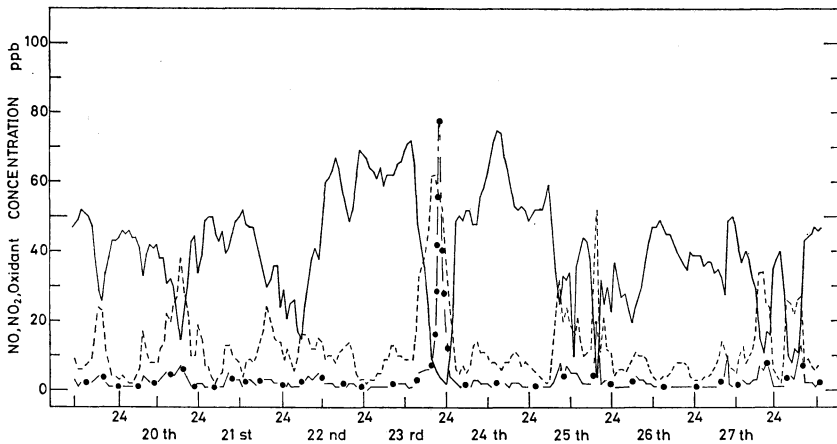
第10図に大雪山における測定結果，第11図に札幌市東月寒測定局における同期間のオキシダント， $\text{NO}_x$ の濃度変化を示す。東月寒測定局は，札幌市の南東部に位置し，比較的清浄でこの期間ではオキシダント濃度値が市内の測定局のなかで最も高い値を示していた。第10図に示した通り，大雪山でのオゾン濃度は，22日から上昇し，23日夜に90ppb弱の最大濃度となった。70ppbをこえるオゾン濃度が3日間近く続いた。また，その前後の濃度は40～50ppbで，この時期のバックグラウンド濃度と考えられる。

ここで，地上データとの対応をみると，大雪山で最大濃度となった23日夜間は，1000～900mbで $2^\circ\text{C}$ 程度の強い逆転があり，地上 $\text{NO}_x$ 濃度が高くなったため，オキシダント濃度が著しく減少している。この傾向は夜間に多くみられ，その間の大雪山オゾン濃度と地上オキシダント濃度との対応を悪くしているが，地上オキシダント濃度が，22日から上昇するなど全体的な対応はよく，札幌でのオキシダントのピーク値が大雪山での値とほぼ一致するか，やや低いことがわかる。上層との混合が盛んな日中の対応のよさは，この時期の地上オキシダント濃度レベルが，上層空気との混合の割合によって決まってくることを示していると思われる。

第12図に4月21～25日の札幌における上層比湿分布，第13図に4月23日21時の地上天気図を示す。対流圏



第10図 1981年4月19~28日, 大雪山旭岳におけるオゾン濃度変化.



第11図 1981年4月19~28日, 札幌市東月寒測定局におけるオキシダント濃度, NO<sub>x</sub>濃度変化.

— オキシダント濃度, -- NO<sub>2</sub> 濃度, —●— NO 濃度

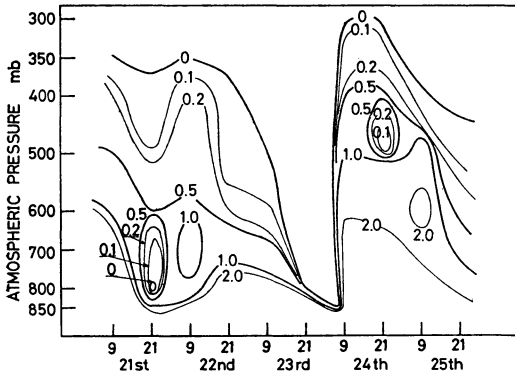
上層において、露点温度とオゾン濃度との間に負の相関があることが指摘されているが (Routhier ら, 1980), この場合も23日夜間のオゾン最大濃度に対して上層の比湿は著しく低下している。また、21時の気圧配置より上昇したオゾン濃度は、第3図において述べた高気圧による沈降によってもたらされたと推定される。

以上、第3章においては、光化学反応の考えにくい悪天候下の高いオキシダント濃度の出現例、第4章においては高気圧の後面におけるオゾンの沈降の観測例を示した。2種の例で成層圏オゾン沈降の機構がどの程度の差異をもつかを明らかにすることはできないが、双方とも比較的高いオキシダント濃度が数日間にわたって現れて

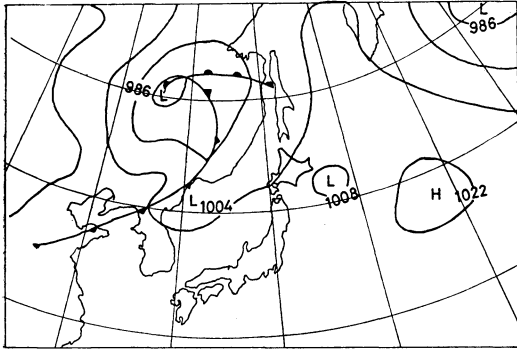
いることから、成層圏オゾンが、比較的大きい時間スケールをもつ機構で地表オキシダント濃度に寄与しているのではないかと筆者らは考えている。また、北海道では4月、5月に寒冷前線の通過が数多いことから、この時期のバック・グラウンド汚染はかなり高いことが予想され、さらに、成層圏、対流圏上層のオゾン濃度が北半球の春に最も高くなることとあわせて第5図に示した日平均濃度の違いを生じていると考えられる。

### 5. おわりに

成層圏オゾンの沈降の機構に関する最近の研究と筆者らが北海道のオキシダント濃度について行った解析、観



第12図 1981年4月21~25日, 札幌における上層比湿分布 (比湿: g/kg). 但し, 比湿0はラジオゾンデ・データで相対湿度0%として示された点を便宜的に結んだ.



第13図 1981年4月23日, 午後9時, 地上天気図.

測をまとめた.

成層圏オゾンが, 寒冷前線の後面におけるジェット気流付近での tropopause folding によって対流圏に沈降し, その時間スケールは別にして, さらに, 寒冷前線後面での下降流により, あるいは, 高気圧による沈降によって地表に達するというメカニズムは, ほぼ定着しているが, 一方, そのフラックス値や出現頻度, あるいは, 地域的広がり, バックグラウンドなどは文献によってかなり異なっており, 今後の研究成果を待たなくてはならない. しかし, その出現頻度とはもかく, ほとんどの論文がこのメカニズムによってオゾン濃度は人為汚染の及ばない地域において 80 ppb を上回ることが十分にあるという点では一致している. したがって, 今後, オゾンや PAN など, 個々のオキシダント物質に注目して現象の解析や影響評価, あるいは大気汚染の制御にあたる

必要があろう.

前述のとおり, 多くの論文で成層圏オゾンの沈降の影響は人為汚染の及ばない地域についてののみいわれている. それは, 人為汚染地域では  $\text{NO}_x$  の排出によってオキシダント濃度がむしろ減少するからであるが, Harthornら (1976) が示したように, 成層圏オゾンが光化学反応を促進したり, 夜間の化学に影響を及ぼす可能性は十分にありと考えられ, 今後詳細な検討を必要としよう.

終わりに, 本研究にあたり資料を提供していただいた北海道庁生活環境部公害対策課, 札幌市環境局公害部大気課, 札幌管区気象台の関係各位に厚く御礼申しあげます.

## 文献

- Hanwant, B.S., L.I. Francis and B.J. Warren, 1978: Tropospheric ozone; Concentration and variabilities in clean remote atmospheres, *Atm. Env.*, 12, 2185-2196.
- Harthorn, J.W. and H.M. Walker, 1976: A "TEXAS SIZE" ozone episode tracked to its source, *Proc. Int. Conf. on Photochemical Oxidant Pollution and its control*, EPA Report No. EPA-600/3-77-001 a.
- Johnston W.B., W. Viezee, L.A. Cavanaph, F.L. Ludwig, H.B. Siph, and E.F. Danielsen, 1979: Measurements of stratospheric ozone penetration into the lower troposphere, *Proc. 4th Sym. Turbulence, Diffusion and Air pollution*, 355-362.
- 村尾直人, 1980: 札幌市における光化学オキシダントの生成機構に関する研究, 修士論文.
- Reiter, E.R., 1976: The role of stratospheric import on tropospheric ozone concentration, *Proc. Int. Conf. on Photochemical Oxidant Pollution and its control*, EPA Report No. EPA-600/3-77-001 a.
- Routhier, F. and D.D. Davis, 1980: Free tropospheric/boundary-layer airborne measurements of  $\text{H}_2\text{O}$  over the latitude range of 58 S to 70 N; Comparison with simultaneous ozone and carbon monoxide measurements, *J. Geophys. Res.*, 85, 7293-7306.
- Reiter, E.R., 1976: The role of stratospheric import on tropospheric ozone concentration, *Proc. Int. Conf. on Photochemical Oxidant Pollution and Its Control*, EPA Report No. EPA-600/3-77-001 a.
- Sharpiro, M.A., 1978: Annual report of national center for atmospheric research (解説 "Atmospheric mixing" *Env. Sci. Tech.*, 14, 15-18).



— 1980: Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere, *J. Atm. Sci.*, **37**, 994-1004.  
 Sticksel, P.R., 1976: Application of 1976's ozone sounding information to 1970's surface ozone studies, *Proc. Int. Conf. on Photochemical*

*Oxidant Pollution and its control*, EPA Report No. EPA-600/3-77-001 a.

Wolff, G.T., M.A. Ferman and P.R. Monson, 1979: The distribution of beryllium-7 within high pressure systems in the eastern U.S. (解説 “Atmospheric mixing” *Env. Sci. Tech.*, **14**, 15-18).

## ヘス教授の御逝去を悼む

米フロリダ州立大学教授(気象学)ヘス博士(Seymour L. Hess)は本年1月15日、病のため同大所在タラハナーのメモリアルメディカルセンターで永眠された。享年61。

教授は世界的に有名な気象学者で、その著“Introduction to Theoretical Meteorology”は標準的な教科書の1つとしてよく知られている。ニューヨークのブルックリンに生まれ、ブルックリン・カレッジを経てシカゴ大学で、M.S. および Ph. D. をえられた。いわゆるシカゴ学派の初期の一人としてジェット気流の発見・解明に大きな貢献をされ、その後新設のフロリダ州立大学気象学部にむかえられた。同大では新設学部の発展、学生の教育に力をつくされると共に、惑星の気象学、特に火星のその研究に没頭された。この間、火星をめざすアメリカの Viking 計画の気象班リーダーをつとめられ、その功により1977年、アメリカ気象学会より Viking Flight Team Special Award を、また NASA よりメダルを授けられた。フロリダ州立大では気象学部長(同大では Chairperson といっている)の任にあられた。

筆者は1954年、いわゆるフルブライト留学で同大気象学部大学院に入学、博士の講義をうけた。海洋学が専攻だったが気象も必須だったのである。白せき長身の先生は Physical Meteorology を担当された。当時、気象学部長はバウム(Werner A. Baum)の下にヘス、気象力学のシャーマン(Leon Sherman)、解析のラスール(N.E. LaSeur)、気候のグリーソン(Thomas A. Gleeson)



火星の地図を示すヘス教授(フロリダ州立大学の1980年版案内による)。

と、30をやっと出たばかりのおもにシカゴと UCLA 出の新進気鋭の教授をそろえ、清新の気にあふれていた。日本と同じようにアメリカでも気象学や海洋学の講座はもと物理、天文の教室に属していたが第二次大戦中にこれが独立の学部、教室になり東のシカゴ大では C.-G. Rossby、西の UCLA では J. Bjerknes 指導のもとに多くの優秀な人材をうんだ。ヘス教授の講義は現象の物理的意味、説明を重視し、too mathematical ともいえる故シャーマン教授の Dynamical Met. と対照的であった。“Richardson の失敗”から始まる数値予報のユニークな特別講義も忘れられない。わが国で同教授の指導を受けた気象学者、海洋学者も数多い。

(半澤 正男)