

第16回国際オゾンシンポジウム報告*

小川利紘¹⁾, 川平浩二²⁾, 神沢博³⁾, 近藤豊⁴⁾,
柴崎和夫⁵⁾, 中根英昭⁶⁾, 村松久史⁷⁾

標記シンポジウムが、1992年6月4日より13日までアメリカのヴァージニア州シャーロットビル市にあるヴァージニア大学で開かれた。オゾンの国際シンポジウムはシャルル・ファブリの世話で1929年にパリで開催されてから、今回は16回目(最初の2回は非公式で、3回目以降にはオゾン委員会が発足している)に当たることになるが、その歴史はあまり知られていないので第1表に記しておく。

今回のシンポジウムの参加者は29ヶ国から398名のほり、発表論文の数も400件を越えた(口頭発表142件、ポスター276件)。わが国からの参加者は15名、発表論文は口頭7件、ポスター12件で、前回に比べて数は増えているが、外国の伸び率には及ばない。今回は開催地が米国ということもあって、発表申込論文数が増えたので、最初の2日間は2会場で平行してセッションを開いたが、それでも口頭発表の数よりポスター発表の数の方が圧倒的に多くなってしまった。セッションの主題は、(1)対流圏オゾン、(2)成層圏測定、(3)UARS 衛星観測、(4)気候とオゾン、(5)北極域、(6)南極域、(7)理論・モデリング、(8)トレンドおよび火山噴火の影響、の8つであった。各セッションの様子については、参加者が以下に印象記を寄せているので参照されたい。

なお、オゾン委員会の改選も行われたが、会長、副会長、事務局長はジェラルド・メジー(G. Mégie, 仏 CNRS)、ジム・ミラー(A. J. Miller, 米 NOAA)、ルーメン・ボシュコフ(R. Bojkov, WMO)の3人も再

選された。委員の任期満了に伴う交替もあり、日本からの委員は牧野行雄(気象研, 1988年より継続)と伊藤朋之(気象庁オゾン層解析室, 1992年より新任)の両氏となった。(小川利紘)

〔理論・モデリング〕

1988年のゲッティンゲンにおける「オゾンシンポジウム」に参加して4年経過した今回のシンポジウムに参加した印象は、オゾン研究の進展とオゾン変動の激しさをはっきりと実感出来たことにある。ゲッティンゲンのシンポジウムでは、「南極オゾンホール」発見の熱き議論の余波が残っていた。しかし、今回のシャーロットビルのシンポジウムでは、南極のオゾンホールのは話題は通り越し、北半球のオゾン減少の急激さが話題の中心になり、しかもその数値シミュレーションという高度な段階に入っていた。このような北半球のオゾン減少を象徴するものとして、カナダの紫外線予報の実例がポスターセッションでも報告され、ついにここまでできたのか、という感がした。この4年間は、通常の4年間と異なり、オゾン研究にとっては10年以上経過したのではと思った程の変化であった。

北半球の近年のオゾン減少の特徴は、冬季(1~2月)には、50°N から北極にかけて著しい。今年2月のNASAの発表では、ヨーロッパを中心とした領域で、一酸化塩素(CIO)の濃度が南極オゾンホール並に高く、「北半球でオゾンホール発生の可能性あり」との警告をUARS(Upper Atmosphere Research Satellite)衛星観測結果に基づいて行った(突然昇温のため実際には空振り)。また、秋(9~10月)ごろには、50°Nを中心とした緯度帯でのオゾン減少も大きい。一方、1991年の南極オゾンホールは史上最低のオゾン量が9月には観測されている。1989年以来、一方的に南極オゾンホールは拡大している。

これらの事実から、これまでの見方を変えた点が2つある。1つは、1987年のオゾントレンドパネルが予

* Report on 16th International Ozone Symposium.

¹⁾ Toshihiro Ogawa, 東京大学理学部.

²⁾ Kohji Kawahira, 富山工業高等専門学校.

³⁾ Hiroshi Kanzawa, 国立極地研究所.

⁴⁾ Yutaka Kondo, 名古屋大学太陽地球環境研究所.

⁵⁾ Kazuo Shibasaki, 國學院大学文学部.

⁶⁾ Hideaki Nakane, 国立環境研究所.

⁷⁾ Hisafumi Muramatsu, 京都大学防災研究所.

第1表 国際オゾンシンポジウムの開催年と開催場所

回数	年	場所 (国名)
1	1929	パリ (フランス)
2	1936	オックスフォード (英)
3	1951	ブリュッセル (ベルギー)
4	1952	オックスフォード (英)
5	1954	ローマ (伊)
6	1956	ラーヴェンスブルグ (独)
7	1959	オックスフォード (英)
8	1961	アローザ (スイス)
9	1964	アルパカーキ (米)
10	1968	モナコ (モナコ)
11	1972	アローザ (スイス)
12	1976	ドレスデン (独)
13	1980	ボウルダー (米)
14	1984	ハルキディキ (ギリシア)
15	1988	ゲッティンゲン (独)
16	1992	シャーロットビル (米)

測した、「太陽活動極大期になる1990年頃はオゾン量が若干回復する」ということを否定した点である。太陽活動の影響は無視されたといつて良い。2つめに、北半球の冬季下部成層圏の気温は、南半球と比べて20°C近く高いため、北半球では不均一反応（極成層圏雲の氷滴と気体との反応）が生じ難く、南半球並のオゾン減少は生じない、という予測の否定である。

これらの観測事実を前にした今回のシンポジウムでは、必然的に今後のオゾン量予測という研究発表が無いといつていい状況で、むしろ現実の変化の観測や数値シミュレーションという現実の理解に重点があった。これらを列記すると、以下のようにまとめられる。

(1) 不均一反応をめぐる議論：ドイツのCrutzen等のグループが新しい反応を提唱し、一方名大の近藤らは現在提唱されている反応を一部疑問視する発言を行った。

(2) 英国のPyleが代表して発表した、ヨーロッパのオゾン観測キャンペーンの観測結果：各観測点における精密な観測により、オゾン変動を理解しようとする努力である。

(3) 米国のUARS衛星による、グローバルな物質分布とその変動の観測：これは会場より熱い期待が注がれた。しかし、全観測が順調に進んでいるわけではないようで、トラブルが生じたといわれている。しか

し、風まで測定するUARS衛星の目標は今後の衛星観測の方向を示す意義ある野心的な衛星と評価される。

(4) Bojkovが提唱した、これまでの地上オゾン量観測値の見直し：吸収断面積の改訂により、見直そうとのことである。強引とも思われる提唱であるが、オゾンの減少トレンドが明瞭になったという現状の深刻さを反映していると受けとめた。

(5) NCARのBrasseurらが行っているオゾン減少(北半球)の数値シミュレーション：放射の効果を時間的には分のオーダーで計算すると共に、循環と物質分布を現実と比較(時間のオーダー)する試みである。大変な計算量である。

このような研究は、かつてのオゾン研究の歴史には無いと思う程、幅広く精密な理解をしようとする内容であった。

これら成層圏オゾン変動の研究に限って不十分な点と感じたことは、成層圏循環や気温変化と関連づけての研究が案外少なかった点である。たとえば、南極オゾンホールと北半球オゾン減少の特徴には、明らかに両半球の循環の差異がみられる。長期変化を含めて、両半球の循環や気温変化の相異を解明していくことが、不均一反応をキーワードにした現在の研究状況にもう1つ豊かさをもたらす気がする。著者が発表した、

川平・廣岡「南極下部・中部成層圏における気温変化傾向の逆転」は、その少数発表の1つであった。また、今後気温変化（成層圏）の研究もオゾン委員会で重要課題にしていく設定もされており、重要課題の一つである。同時に、衛星観測により力学的・化学的なグローバルな大気の変化を観測することは、UARS衛星にみられるように、今後のオゾン研究の重要な柱となっていくかざるを得ないと思う。日本のADEOS衛星を含めて、グローバルなオゾン等の観測の充実とその解析が、オゾン研究と地球環境問題という社会的要請にも応えていく基礎だと考える。

深刻な状況（この時期ちょうどブラジルで地球サミットが開催されていた）の中でも、ユーモラスな科学雑誌の編集者が登場し、参加者にユーモラスな笑いを誘う記事を載せた新聞を配っていたのは、アメリカ人らしく面白かった。また、私的には、オーストラリアのAtkins氏との有意義な研究討論を極地研の神沢氏と持て、今後の研究の励みになった。やはり、国際シンポジウムは人との直接的つながりを深める価値ある機会である。日本の梅雨を思い出させる天気の日々もあったが、苦勞して参加したことの意義は大きかった。（川平浩二）

「UARS衛星観測」及び「オゾンと気候」セッションを中心として

UARS (Upper Atmosphere Research Satellite) は、1991年9月12日に打ち上げられ、有用な観測データを送ってきている。中層大気の微量成分の重要なものを網羅して測るとともに、風を測るセンサーを搭載していることが特徴だ。今回の発表の中では、MLS (Microwave Limb Sounder) の成果発表 (J. W. Waters, JPL) が、圧倒的な印象を与えた。MLSは、ClO (高度~15-45 km), O₃ (~15-80 km), H₂O (~15-85 km), 気温 (~30-60 km), 気圧 (~30-60 km) を、昼夜を問わず、また、PSCs (極域成層圏雲) および火山噴火エアロゾルが存在している場合でも、測ることができる。南極オゾンホールおよび北極域の極渦内でO₃が少なく、ClOが多いこと、ClOの極渦の外への漏れ出しが見られることなど、オゾン問題を考えるのに非常に有用なデータを、美しいカラー画像で示していた。UARS衛星の計画が固まったのは1978年頃だが、その頃の計画書を、会議後に訪れたNCARでJ. C. Gille氏に見せてもらった。MLSの測定項目の中にちゃんとClOが入っている。フロンガスからのCl

がO₃を破壊する可能性を指摘したMolina and Rowlandの有名な論文が出版されたのは1974年であり、それらの成果を吸収して、重要と位置づけられた成分を観測する測器を、迅速に開発できる米国科学の底力を感じた。ちなみに、このセンサーは衛星搭載は初めてで、これまでは気球観測の経験があるのみとのことである。MLSは、測定器開発とデータ解釈のグループの協力がうまくいっている良きサイエンスチームによる素晴らしい仕事である、というR. S. Stolarski (NASA/GSFC) の言葉は、MLSに対する我々の評価をうまく表現している。他のUARS衛星センサーでは、HALOE (Halogen Occultation Experiment) で観測された水蒸気のデータが、赤道成層圏界面付近で東西波数6程度の波の存在を示唆していた。他の大気微量成分センサー (CLAES, ISAMS) の結果も出つつある。風のセンサーのうちの中層大気を測定対象とするHRDI (High Resolution Doppler Imager) による風とNMC客観解析で得られた風とを、1991年12月23日12UTの高度30 kmについて比較した発表があった。両者のパターンはおおむね似ているが、定量的な差があり、NMCの方がHRDIに比べて平均的に3 m/sほど風速が弱い。しかし、これは一例にすぎず、組織的な検証はこれからである。もう一つの風のセンサーWINDIIは、対象が熱圏であって、オゾンとの関連が薄いため発表がなかった。

昨年(1991)8月15日、政変の直前に打ち上げられた「ソ連」のMeteor-3/TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) によるオゾン全量データがNimbus 7/TOMSのそれと整合的であることを示した発表もあった。

「オゾンと気候」については、オゾンの成層圏での減少・対流圏の増加がRadiative Forcing (放射強制力) に与える影響の研究が目についた。GFDLのグループ (Ramaswamy and Schwarzkopf; ReadingのShineも協力) は、下部成層圏の1979年から1990年にかけてのオゾン減少は、負のRadiative Forcingをもたらし、同時期のフロンガス (CFCs) の増加による正のRadiative Forcing (温室効果) を打ち消す程に大きいことを、理論計算で示した。一方、気候モデル、NCAR/CCMをこの問題に適用した研究 (Wang *et al.*, SUNY Albany) によれば、1990年と1980年のオゾン観測値をモデルに組み入れてRadiative Forcingを比較すると、オゾン全量の少ない1990年は1980年に比べ、7月(perpetual July)の場合、対流圏では冷却、

下部成層圏で昇温となる結果を示した。

英国のグループ (Butchart, Austin and Shine) は、理論モデル計算の結果から、北半球の場合でも以下の可能性があることを示した。CO₂ が倍増すると、放射の観点からも、また、プラネタリー波が弱くなって熱輸送も小さくなることから、極域下部成層圏が低温になって PSCs が増える。また、このことと関連し、極渦が春まで持続する。その結果、北半球でも南半球と同様の規模のオゾンホールが出現する。

筆者は、「南極域」のセッションでポーラー・パトロール・バルーン (PPB) 観測結果 (共同研究の成果) を2つ発表した。一つは、1990/1991年夏の上部成層圏と1991年9月の下部成層圏を飛んだPPBの軌跡と気象庁客観解析データに基づいて計算したトラジェクトリーを比較した発表であり、9月の場合、両者のずれが大きいことを示した。もう一つは、9月のPPBによるオゾン濃度およびエアロゾル粒径分布のその場 (in situ) 測定の前備的解析結果の発表であり、林政彦氏 (名大 STE 研) の代読を行った (筆者も共同研究者)。ECMWF等のトラジェクトリー解析結果に基づいて、トラジェクトリーに沿った化学反応の理論計算を行った研究発表が今回のシンポジウムで多く見られたことから、主にトラジェクトリー解析の信頼性の観点等からの反響があった。

なお、今回の出張は、文部省科学研究費・創成的基礎研究 (代表・松野太郎東大教授) の援助を受けました。(神沢 博)

「北極域」及び「南極域」セッション

南極域での大規模なオゾンの減少 (オゾンホール) の発見以来その原因を解明すべく多くの研究がなされてきた結果、次のような過程がオゾンホールの生成にとって本質的であることがわかっている。(1)南極の冬期、冷却された成層圏で極域成層圏雲 (Polar Stratospheric Clouds : PSCs) が生成し、その雲を構成している粒子上で HCl や ClONO₂ などの安定な塩素化合物がオゾンを破壊する反応性塩素に変換される。(2)春に、太陽光が南極に戻ってきたときにこの反応性塩素によるオゾン破壊の光化学的な触媒サイクルにより早い速度で極渦の中でオゾンが破壊される。(3)本来反応性塩素によるオゾン破壊作用を弱める作用のある窒素酸化物 (NO_x) も PSCs により粒子に捕捉されたり硝酸に変換されてしまう。

一方北極域でも冬期に気温が低下し PSCs が発生す

ることが観測されている。しかし、北極域の場合、強いプラネタリー波動の活動により平均的には冬の終り頃 (2月の初め) には気温が上昇するためオゾンの破壊は南極域と比べ不完全なものとなっている。同時にこのプラネタリー波動は極渦の境界の形を北極を中心にした同心円から大きく変形させたり、極渦の内外の輸送をより盛んにする。このため北極域でのオゾン破壊の過程の解明には南極よりもより精密な理解が必要になってくる。北半球中高緯度でも冬期を中心にオゾンの長期的な減少が起きている。この原因が北極域で起きていることとどのように関係しているのかが大きな関心事になっている。

このような事情を反映して、何らかの形で不均一反応に関係した論文が多かったのが目についた。特にヨーロッパの研究者は1990年のCHEOPS (Chemistry of Ozone in the Polar Stratosphere) 及び1991~1992年のヨーロッパ北極域成層圏オゾン観測キャンペーン (EASOE : European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) に関係した論文の発表が多かった。EASOEでは1991年6月のピナツポ噴火に伴う高濃度エアロゾルの条件下で、地上、航空機からのリモートセンシング、気球観測を中心にした大気組成の観測が行なわれた。3次元の大気運動を考慮した解析、光化学シミュレーションも重要なEASOEの部分である。EASOEの成果全体についてはケンブリッジ大学のJohn Pyleにより報告された。筆者らは1990年の1月に極渦の内側でPSCsによるNO_yの低濃度化が見られたこと、1992年の1月には極渦の境界付近では低濃度化が見られなかったことを示した。またピナツポ噴火の影響と思われる低NO濃度の気球観測についても発表した。ドイツのマックス・プランク研究所のRothらはグリーンランドでOCIOが冬期高濃度になることを紫外の分光観測より見出した。またマイクロ波によるグリーンランド及び1992年のスイス上空での冬期のCIO測定結果についてそれぞれ de Zafra と Gerber により発表された。冬期下部成層圏でスイスのような緯度でも気温次第でCIO濃度が不均一反応により1ppbv程度になり得ることを示しており興味深い。またケンブリッジ大学やNCARのグループにより数値計算により予想される高濃度CIO領域が、UARS衛星により観測された高濃度CIO領域と良く一致することが示された。

一方、最近のアメリカの北極域オゾンの大きな研究活動は、UARS衛星による観測およびEASOEとほ

ほぼ同時期に実施された1991~1992年のAASE (Airborne Arctic Stratospheric Expedition) II航空機観測である。AASE IIについてはKuryloによりまとめが紹介された。AASE IIは1989年に行なわれたAASEに続くER-2とDC-8による航空機観測である。今回ER-2により観測された主なパラメーターはClO, BrO, NO, NO_y, O₃, CFCII, N₂O, HCl, aerosolである。前回と比べNO, NO_y同時観測が可能になったこと、CFCII, HCl測定器が新たに加わり塩素の収支をより詳しく測定できるようになったことが測定器の大きな違いである。またAASE IIの特徴は極渦の発達する前の10月から極渦の崩壊する3月まで観測を行なうことにより、北極域において不均一反応の介在した一連の光化学過程を調べることにある。初冬に既にHCl濃度が減少し始めClO濃度が増加すること、NO_x濃度が気相反応から予想される濃度よりかなり小さい、冬期オゾンが正味の減少をする、などいくつかの興味ある観測結果が得られている。しかしAASE II観測が終ったのがオゾンシンポジウムに近かったこともあり、重要な結果の個々の講演発表はなかった。EASOE, AASE IIともピナツボ噴火の成層圏化学、特にオゾンへの影響についての結論は微妙であり、これからの解析に持ち越されているというのが筆者の印象である。

南極域でのオゾン化学関係の論文数は北極域に比べ少なかった。ニュージーランドのKeysらはArrival HeightsでのHNO₃全量とNO₂全量の地上分光測定より秋期にNO_xが減りHNO₃が増加するとの測定結果に基づいてNO_xからHNO₃への変換が起き始めていることを示唆した。このことは極域でのPSCsあるいはバックグラウンドエアロゾルによる不均一反応が秋期に進行するという興味深い結果であり、北極域での同様な観測は重要であろう。この問題は故Noxonの追及したテーマでもあり十分な解答がまだ得られていない。現代的な観点からこれを解明することができるであろう。また筆者らは昭和基地のNO₂の分光観測よりやはり冬期のNO_x→HNO₃変換を示唆し、また1991年の12月頃よりピナツボ噴火の影響によりNO₂濃度が異常に低下していることを報告した。

このように極域の成層圏化学は南極オゾンホールが発見以来、不均一反応による反応性塩素(Cl_y), 窒素酸化物(NO_y)の収支、分配の影響の理解という観点から研究が続けられている。またより定量的な大気化学研究のためにアメリカおよびヨーロッパの研究者は着実な観測技術の開発やプラットフォームの整備を行

なっている。わが国はこのいずれも不十分な状態であり、またアプローチの仕方でも系統的ではない。依然として彼等とのギャップは大きいというのがいつもながらの感想である。(近藤 豊)

「成層圏測定」セッション

今回のオゾンシンポジウムでStratospheric MeasurementsというセッションはM1からM4までであった。このうち、M1とM2は6月5日(金)の午前と午後、M3は翌6日(土)午前にいずれも対流圏オゾンのセッションと並行で開かれ、対流圏のセッションとどちらを選ぶか迷った人も結構いた。M4は12日(金)の午前のセッションであった。各セッション共に8~9件の口頭発表があり、これに加えて、ポスター発表の件数が口頭発表の件数と同じかむしろ多いという印象であった。今回のシンポジウムではポスター発表の件数が圧倒的に多く、成層圏測定関連のものも幾つかのポスターセッションで発表があった。それにもう一つ、今回のシンポジウムではセッション名は必ずしも発表内容を最適に表しているとはいえず、M1からM4のセッションでも微量成分の吸収断面積の温度依存性の話からオゾンのミニホールの現象学に関する話題まで含まれていた。成層圏オゾンに関する研究は、純粋な理論的(モデル)研究を除けば、何らかの意味で全て成層圏測定に関係しているということなのかも知れないが。

ここでは筆者の興味に従って観測と解析という点から印象を述べる。地上観測では(ドブソン観測を除いて)、先ずオゾン・ライダーが試験観測的段階から実用の段階に入ったという印象である。ドイツのR. Fabianらのグループ、JPLのI. S. McDermidらのグループ、フランスG. Mégieのグループ、日本の国立環境研グループ、そして南アフリカと世界各国でオゾン測定重要な一手の地位を確立したと思える。ただ、現在はピナツボ火山噴火の影響をどう取り除くかに各グループとも苦勞している様子だ。けれどこれは逆に、エアロゾルとオゾンの関係を研究するのに有効であるということでもあり、NASAラングレー研究所のグループによる航空機搭載ライダーによる北極域冬季のPSCs(極域成層圏雲)とオゾン、夏季のエアロゾルとオゾン、熱帯域でのピナツボ噴火後のエアロゾルとオゾン等の観測結果が興味深かった。また、紫外-可視域の太陽天頂散乱光観測からNO₂とオゾン、さらにOCIOやBrO(極域のみ)を求めることがほぼ標

準的な手段として確立し、インド、中国、旧ソ連諸国、東欧など世界各国で観測装置が稼働していることが分かった。ヨーロッパの北極域共同観測でも基本観測の一つとして認識され、幾つかのグループが観測データを提供している。ドブソン観測や衛星観測 (TOMS) データが手に入らない状況でオゾン全量を測定する重要な観測手法ということである。原理的には簡便な観測法であり、NO₂ とオゾン地上観測の一大ネットワークの誕生を思わせる。ただ、観測データの質にはまだばらつきが多い。ニュージーランドの Johnston らのグループは観測経験も長く、データの質が飛び抜けて良く、ピナツボ火山噴火で成層圏に注入されたエアロゾルが NO_x を減らす事実を見事に捕えている。日本の名大 STE 研近藤氏のグループも北半球 (北海道) で同じ現象を見だしている。マイクロ波による地上観測も、Parrish and McDermid のグループ、de Zafra のグループらの老舗だけではなくヨーロッパのグループも参加して、複数の観測点が形成され、これも標準的な観測手段の一つ (少々高価であるが) となりつつあると感じた。他の観測手段、他グループとの比較観測も行われつつあり、今後新しい観測事実の発表を期待したい。また、オゾン減少が地上でどの程度の UV 放射量増加になるかということで、UV 観測の報告が多くなった。ゾンデのデータから各高度のオゾン量トレンドを求めるといような事も目についた。

筆者は「北極域」のセッションで、中緯度での大気球による遠赤外域の大気発光スペクトル観測結果 (HCl と HF 高度分布) を報告したが、オゾン以外の微量成分の大気球観測の報告が減ったという印象を強く受けた。一般的に大気球の放球場は中緯度にあり、しかも観測可能な季節が限られているのに対し、現在は高緯度に特に関心が高いためもあるのだろうが、筆者には少々寂しかった。衛星観測では 1991 年 8 月 15 日に打ち上げられた METEOR 3/TOMS のデータがまとまった形で初めて(?)発表された。TOMS のデータが今やオゾン全量の標準的データとなっていることが改めて浮き彫りにされたが、TOMS のデータも様々な観点から、特に雲とエアロゾルの影響を考慮して、再解析した結果が NASA のグループを中心に報告され注目を集めた。

最後に今回のシンポジウムでの全体的な印象を少々述べる。まずオゾンホール騒動とも言うべき状況は一段落したということである。アメリカによる物量作戦で概略は明らかになったということなのだろう。ただ

し、北極域に関してはヨーロッパ諸国の底力を感じた。また熱帯域への関心の高まりが感じられる。今回のシンポジウム全体で、ヨーロッパの研究者の元気が特に目についた。ロシア人の論文 (実際に参加したかどうかは別にして) の多さもかなりのものであったと思う。インド、中国からの論文も多いがやはり水準的には今一步であろう。これからは間違いなく熱帯域が一つの大きな焦点になるはずであるから、アジアでの共同研究の推進など、日本の研究者の役割が大切であると感じた。(柴崎和夫)

「トレンドおよび火山噴火の影響」セッション

オゾン全量のトレンドについては「成層圏オゾンに関する科学アセスメント: 1991」(WMO, 1991) でまとめられてから日が浅く、特に目新しい話はなかったが、NASA/Goddard の McPeters による Nimbus 7 の SBUV (Solar and Backscattered Ultraviolet) 観測データの再解析結果によって得られた上部成層圏のトレンドは興味深かった。SBUV データには拡散板の劣化の問題があるが、異なった太陽天頂角において得られたオゾン濃度が等しいという制約を課すことによってトレンドの系統誤差を処理した。その結果、10 年間あたり赤道で 5%、北半球で 10%、南半球で 15% の減少トレンドが得られた。これは、数値モデルによる値とほぼ一致しており、SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) I と SAGE II の比較から得られた減少トレンドよりかなり大きい。SAGE II のオゾン変動とよく一致しているの、拡散板の劣化の影響の補正に成功したと主張しているが、SBUV データがエアロゾルの影響を受け易い点も含め今後の議論に注目したい。高度 15 km~25 km のトレンドについても、データ数が少なく変動の大きな高度であり、今後の観測の強化が望まれる。

ピナツボ火山関連では、①エアロゾルの挙動及び関連する気象条件に関する観測研究、②オゾン、二酸化窒素など気体成分に関する観測研究、③数値モデルを用いた研究に関する報告が行われた。

①に関して Chandra and Stolarski が衛星観測結果などをまとめていたので紹介する。() 内はエルチチョン火山噴火の際の値である。成層圏に注入された SO₂ 量は 15~20 メガトン (5~6 メガトン)、QBO の位相は東風(西風)、2~3 カ月後のエアロゾルの広がり、30°S~40°N (10°S~40°N) であるが南半球に大量に流れた、ということである。鉛直分布については、

米国, フランス, イタリア, 日本などのライダーグループから発表があった。高度 20 km~25 km にピークを持つ分布が主なエアロゾル層の特徴であるが, 高度 35 km 以上にピークを持つエアロゾル層も一時期であるが観測されている。また, エアロゾルの表面積密度の見積りが, 林田らによる観測結果や数値モデルによる研究の中で行われていたが, ピーク付近で $30\sim 100 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ の範囲に入っているものがほとんどであった。この値は, 通常の硫酸エアロゾルより 2 桁, I 型 PSCs (三酸化硝酸粒子) の数倍で, ほぼ II 型 PSCs (氷晶粒子) の場合に匹敵する大きなものである。

②については, まずコンゴのブラザビル (4°S) におけるオゾンゾンデ観測結果 (Grant ら) が目についた。それによると 20 km~30 km のエアロゾルのある高度領域 (中心 24 km) でオゾン層が減少しており 30 km から上ではオゾンは増加していた。ただ, オゾン全量は北半球では平年値より低いが, エアロゾルが大量に流れた南半球ではほとんど平年並みである。他方, Johnston らによる観測によると NO_2 全量はニュージーランドで最大 40% (少なくとも 20%) 減少しており, 日本でも少ない (近藤ら)。更に, SAGE II の NO_2 観測によれば, 25 km 付近では 60% 程度減っている (Zawodny)。 NO_2 の減少は $\text{NO}_2 + \text{ClO} \rightarrow \text{ClONO}_2$ による ClO の不活性化を止めることを通してオゾンを減少させるはずである。オゾンの鉛直分布には影響が現われているようにも見えるし, 全量には現われていないようでもあり, 今後の観測研究の結果が待たれる。とくに, HNO_3 や ClO などの観測結果が出てくるとかなり核心に迫れるだろう。

③の数値モデルによる研究では, 3次元化学-輸送モデルを 1992年1月9日から走らせた Granier らの研究や, 1次元モデルに不均一反応を組み込み 1974年~1995年の間走らせた Blanchette and McConnel の研究が興味深かった。前者の3次元モデルでは, NO_2 全量が減少, HNO_3 と ClO は増加しており, ClO は東シベリアで最大となっていた。そしてその一部が北海道にかかっていたので, 日本の参加者の間で話題になった。しかし, 10日程度しか計算を行っていないので, オゾンのような長寿命の成分の変化はシミュレートできていない。後者の1次元モデルでは, 不均一反応を組み込み, 火山噴火による硫酸エアロゾルの増大や CFC (クロロフルオロカーボン) の増加もシナリオに入れていた。その結果, エルチチョンやピナツポ火山噴火の後でオゾンが減少しているが, エアロゾル表

面積や不均一反応速度に比例して減少するのではなく, それよりは小さくなっている (飽和効果)。そして, オゾンは次の冬 (1992/1993) に一番減少する (南半球 - 8%, 40°N で - 4%) と予測していた。このように, モデルでは結果が出て来るが, 観測との比較, 様々な観測結果のつじつまの合った解釈という点になると, まだまだこれからといったところである。

(中根英昭)

「対流圏オゾン」セッション

対流圏オゾンのセッションには約 80 編の論文が登録され, 発表は口頭とポスターが半々で 6月4日~6日に行われた。対流圏オゾンが注目される理由は, 温室効果が大きいこと, オゾン量の変化は成層圏内では減少傾向であるが対流圏内では増加傾向であること, 光化学反応の鍵である水酸基を生成すること, 高濃度になると動植物に有害であること等である。

対流圏オゾンに関して次にあげる問題を念頭においてシンポジウムに参加した。(1)自由対流圏と境界層のオゾンのトレンドについて, 地域, 季節, 年代により差があるかどうか, もし差があればその原因はなにか。(2)自由対流圏と境界層との間でのオゾンおよび先駆物質の輸送はどのように行われるか。(3)対流圏全体のオゾンの収支に関して, 成層圏からの流入, 地表付近での破壊, 対流圏内での化学生成と消滅の4過程のそれぞれの寄与はどの程度か。

オゾンのトレンドに関しては, 北半球の自由対流圏では過去数十年の期間で増加傾向であることは一般に知られている。増加の原因は NO_x や炭化水素からの光化学生成と考えるのが一般的である。まずトレンドに関して以下に述べる発表が行われた。ヨーロッパの地上オゾンについて過去 10年間の資料によると, 全地域に共通するトレンドはないが, おおまかに言って内陸では年平均, 冬, 夏とも増加傾向であり, 海岸地域では減少傾向である (Low *et al.*)。ドイツ国内の地上オゾンは 1980年代はそれ以前より増加傾向が小さいこと, またアルプスの山麓では増加傾向はみられないが 2~3 km の高度では約 1 ppbv/年の増加傾向である (Scheel *et al.*)。

南半球の地上オゾンのトレンドは認められないかマイナスであることで一致している (Scheel *et al.*; Oltmans *et al.*; Matthews)。南半球の自由対流圏については, ニュージーランドでの観測によると 7~9 km で減少傾向であり, その他の層では変化はみられ

ない (Matthews).

オゾンを化学的方法で測定する場合、大気中に SO_2 が存在すると、オゾン測定値にマイナスの影響を与えることが議論され、地上オゾンの測定で SO_2 除去フィルターを使用していなかった期間を含めたトレンドには検討の余地があるとの意見が出された。 SO_2 除去フィルターは NO を NO_2 に変換するので、その影響も無視できない。この問題は世界中で使用されているオゾンゾンデの観測にも当てはまることである (わが国のオゾンゾンデについては1976年に「オゾンゾンデの問題点, 測候時報 43, 250-254」で検討されている)。

境界層と自由対流圏の間の交換については、対流雲・対流活動により地上付近から対流圏中部、上部までのオゾンその他の物質の輸送に関する発表が多かった。モデルによる研究では対流雲や深い対流による輸送のパラメタリゼーションが中心であった。観測・解析では地上付近から対流圏上部への気塊の輸送、対流活動によるオゾン生成ポテンシャル (Pickering *et al.*), 境界層から成層圏下部への輸送 (Heijboer and Kelder) について発表がなされた。サバンナでのバイオマス燃焼に伴うオゾンの生成については、航空機による観測によるとオゾンは境界層内で増加する場合や減少する場合があり、自由対流圏内でも増加する場合や減少する場合などまちまちである。燃焼源の近くの新しいプルーム内ではオゾンは減少し、古いプルーム内では増加する (Kirchhoff and Marinho)。自由対流圏のオゾンが境界層をとおり地上まで輸送される過程に関しては、地上のオゾンと風速から、自由対流圏のオゾン濃度と境界層内のオゾンの輸送を推定する方法 (Muramatsu) が発表された。

対流圏内のオゾンの収支については、観測・解析・モデルによる結果の発表があった。GTE (Global Tropospheric Experiment) 計画の結果によると、高緯度地方では成層圏からの輸送と地表での破壊の2過程でオゾン分布は説明できる。オゾンに関係する NO_y の源についての観測 (Dickerson *et al.*), 解析 (Murphy and Fahey), モデル (Rohrer *et al.*) の結果によると、

成層圏からの輸送は冬の高緯度以外では重要でなく、境界層からの輸送が主要である。

バイオマス燃焼の対流圏オゾンへの寄与については、南半球のアフリカとその周辺の海洋上のオゾンに関しての報告が多かった。サバンナでの燃焼の煙の中の CO , NO_2 , O_3 と CO_2 との比は工業活動による燃焼と同じである (Helas *et al.*) こと、バイオマス燃焼の時期のアフリカとその周辺海域のオゾンは鉛直輸送と大規模水平輸送により決定され、バイオマス燃焼の影響はみられない (Garstang) こと、バイオマス燃焼の結果と推定される高濃度オゾンの領域が陸地から大西洋へ移動する現象がみられ、また8月から10月にかけてのオゾンの増加はバイオマス燃焼と関係する場合と無関係な場合がある (Richardson *et al.*) ことなどの発表があった。

対流圏に関する研究計画として EUROTRAC (European Experiment on Transport and Transformation of Environmentally Relevant Trace Constituents in the Troposphere over Europe) と GTE の紹介があった。EUROTRAC はヨーロッパを中心とした大気中微量気体の輸送・変質に関する研究計画で、測定網、変質過程、地表での交換、測器の開発、実験室やモデルによる実験の課題を含む。今までに雲の微物理過程、PAN (パラオキシアセチル硝酸) とオゾン増加の関係、エアロゾル中の煤、3次元化学モデルを用いたオゾン・硫黄化合物の循環、窒素化合物の大気-地表の交換等で成果をあげた。GTE は NASA の研究計画で ABLE (Amazon Boundary Layer Experiment) -3A (Arctic, 1988), ABLE-3B (Canada, 1990) 等の計画でオゾンのバイオマス燃焼からの生成、境界層から自由対流圏への輸送、成層圏から対流圏への輸送などを航空機を用いて観測した。極東地域を対象とした PEM (Pacific Exploratory Mission)-WEST もこの計画に含まれる。さらに STARE, SAFARI など南大西洋熱帯域を対象とした研究が計画されている。

(村松久史)