

## 那覇で観測された対流圏オゾンの増大現象について

山 口 小 雪\*<sup>1</sup>・林 田 佐 智 子\*<sup>2</sup>

### 要 旨

那覇における過去29年間にわたるオゾンゾンデ観測データを解析し、対流圏オゾンが特異的に増大する値を、Tukeyの箱ひげ図の定義を用いて高度毎に外れ値として抽出した。その結果、高濃度オゾン現象は、主として4月から5月に、対流圏のほぼ全層に渡って観測されており、特に5月の5 km付近で頻繁に観測されていたことが明らかになった。6月と8月には、対流圏中部・対流圏上部で高濃度オゾンが頻繁に観測されていた。対流圏中部の長期的な傾向では、4月と5月において、近年高濃度オゾンが観測される頻度が増加していた。一方、6月から9月においては高濃度オゾンが観測される頻度は増加していなかった。

### 1. はじめに

対流圏オゾンは大気汚染物質であり、また、温室効果気体でもある (Monks *et al.* 2015)。対流圏オゾンの起源は、清浄大気中では成層圏からの流入 (Holton *et al.* 1995) が主要となるが、大気が汚染されている場合は窒素酸化物・一酸化炭素・揮発性有機化合物などのオゾン前駆物質から光化学反応によっても生成される (Monks *et al.* 2015)。

現在、世界中でオゾン層の観測体制が整えられ、オゾンゾンデ観測データは the World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre (WOUDC) に集められている。この一環として、沖縄県那覇 (26.2072°N, 127.6872°E, 28.06m) では、1989年9月から2018年1月まで気象庁によってオゾンゾンデ観測が行われてきた。取得されたオゾン高度分布は、成層圏オゾンの監視にとどまらず、対流圏オゾンの分布情報としても活用することができる。

那覇で観測された対流圏オゾン濃度は、1996年のデータを用いた Liu *et al.* (2002)、1996年から2003年のデータを用いた Hayashida *et al.* (2008)、1989年から2010年のデータを用いた Zhu *et al.* (2017) で春に高く夏に低い傾向が示された。オゾンゾンデ観測データとモデルシミュレーションによって、春の高濃度は対流圏上部においては成層圏からの流入、対流圏下部においては東南アジアのバイオマス燃焼の影響が示唆されている。夏の低濃度は太平洋からの季節風が影響していると考えられる (Liu *et al.* 2002)。

対流圏オゾンの起源として、成層圏からの流入は、tropopause folding (圏界面畳み込み) に伴って起こることが知られており (Holton *et al.* 1995)、亜熱帯ジェット気流付近で頻繁に流入が観測される (Nakatan *et al.* 2012)。那覇の上空においても成層圏からの流入とみられる対流圏上部におけるオゾン濃度の増加は頻繁に観測される。

一方、近年、アジア大陸では大気汚染によるオゾン濃度の増加が多く報告されている。モデルシミュレーションを用いて、西アメリカにおける春のオゾン増加の50-65%はアジアの影響であるという結果も得られている (Lin *et al.* 2017)。また、アジアにおけるオゾンは、近年、顕著に増加しているとも評価されている (Gaudel *et al.* 2018)。アジア大陸から太平洋への流出

\*1 (連絡責任著者) 奈良女子大学大学院人間文化研究科、  
tandfkiyuko0915@gmail.com

\*2 総合地球環境学研究所／奈良女子大学研究院自然科学系

—2020年1月6日受領—

—2020年3月30日受理—

を観測しやすい位置にある那覇における観測は、大陸からの流出過程を検出するのに有利である。沖縄本島に位置する辺戸岬 (26.81°N, 128.21°E, 60m) においては2005年から国立環境研究所が大気微量成分を、その隣の国設酸性雨測定局では2000年からオゾン測定している。それによれば、2002年から2004年までの地上オゾン濃度は冬から春に極大となり、これは韓国と中国から排出・流出されたオゾン前駆物質の光化学反応による影響と推定されている (Suthawaree *et al.* 2008)。また、Kunwar *et al.* (2017) は、同様に、2007年3月から4月に、エアロゾルについて解析を行い、特に中国からの長距離輸送による影響が強いことを示した。一方、対流圏下部における春の高濃度オゾンの原因として、Liu *et al.* (2002) は、1996年のオゾンゾンデ観測データとモデルシミュレーションを用いて、東南アジアのバイオマス燃焼の影響を示唆している。

これらの高濃度オゾンに関する先行研究は、数年間における解析や平均値を用いた解析が多く、特異的な高濃度オゾンについて統計的に解析した研究は少ない。そこで我々は、長期観測データに基づいて統計的に閾値を定め、特異的な高濃度オゾンイベントを抽出し、その出現頻度を解析することによって、オゾン濃度の変動を探ることを試みた。

本研究では、1989年9月から2018年1月までのオゾンゾンデ観測データを用いて、那覇における対流圏オゾンの長期傾向を詳細に解析し、特異的にオゾンが増大する現象を検出し、その頻度と長期傾向を統計的に調べた。さらに、検出された特異的な高濃度オゾンイベントに対し、成層圏からの流入の可能性と、アジア大陸からの流出の可能性について、渦位の解析と後方流跡線解析によって検討した。特に東南アジアのバイオマス燃焼による影響を確認するため、衛星により観測された火災検知数と流跡線解析の結果を比較した。以下、2章で解析手法と解析対象としたデータの詳細を、3章で解析結果、4章で考察を述べる。

## 2. データと解析手法

### 2.1 オゾンゾンデ

使用したデータは、気象庁より提供されている那覇における1989年9月から2018年1月までのオゾンゾンデ観測データである。観測は沖縄気象台において、週1回、14時30分JST頃に行われてきた。データはWOUDC (<http://www.woudc.org>,

2020.5.2閲覧) と気象庁 (<https://www.data.jma.go.jp/gmd/env/data/report/data/>, 2020.5.2閲覧) より入手できる。また、那覇では1989年9月から2008年9月まではKC型 (Kobayashi and Toyama 1966) (1997年8月から2008年9月まではKC-96型, 1989年9月から1997年7月まではKC-79型), 2008年10月から2018年1月まではelectrochemical concentration cell (ECC) 型 (Komhyr 1969) の測器型式で観測されてきた。KC型で観測されたオゾン混合比については既に補正係数としてドブソン比を掛けているデータを使用した。また、KC型とECC型による系統的なバイアスを補正するために、オゾンゾンデに関する国際比較実験Julich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE) 1996 (Smit and Kley 1998), JOSIE2000 (Smit and Sträter 2004), Balloon Experiment on Standard Operating procedures for Ozonesondes (BESOS) 2004 (Deshler *et al.* 2008) に基づき、気象庁 (2018) を参考にして、指定気圧面別の補正係数を線形内挿した上で、KC型データに補正係数を掛けた。第1表はKC型データの指定気圧面別の補正係数を示す。

本研究で解析を行ったオゾンゾンデの観測期間は1989年9月から2018年1月までで、総観測日数は1141日である。

### 2.2 データのグリッド化

オゾンゾンデ観測では、データの取り込みは等時間間隔で行われるため、気球の上昇速度に依存してデータ間の高度幅が異なる。本研究ではデータの単位を数密度に変換して線形内挿し、高度区間0.15kmでグリッド化を行った。

### 2.3 統計解析手法

対象としたすべてのオゾン濃度のヒストグラムをいくつかの高度に対してプロットした(第1図)。我々の関心は「特異的に高いオゾン濃度」のイベントであるので、黒川・林田 (2013) と同様に、Tukey の箱ひげ図の定義を用い、第2表のように定義し、高濃度オゾンイベントを上限值 ( $U_p$ ) を超える外れ値として定義し、解析対象とした。

第1表 KC型データの指定気圧面別の補正係数(気象庁2018)。

気圧 (hPa)	1000	925	850	700	600	500~1
補正係数	1.18	1.15	1.13	1.08	1.04	1.00

2.4 対流圏界面高度について

本研究では、オゾンゾンデ観測データと共に提供されている圏界面高度データを参照して、第一圏界面高度以下のみを解析対象とした。那覇での第一圏界面高度は15km から18km 付近に多いが、極端に第一圏界面高度が低く、第二圏界面が定義される（圏界面曇み込みが起きている）日が見られた。本研究では、対流圏中部から下部における高濃度イベントの内、成層圏から流入したイベントを除くため、第一圏界面高度が11km 以下の日をまず除いた。第一圏界面高度が11km 以下の日は22日あり、これらの日を除いた総解析日数は1119日である。第一圏界面高度が11km 以下の日は

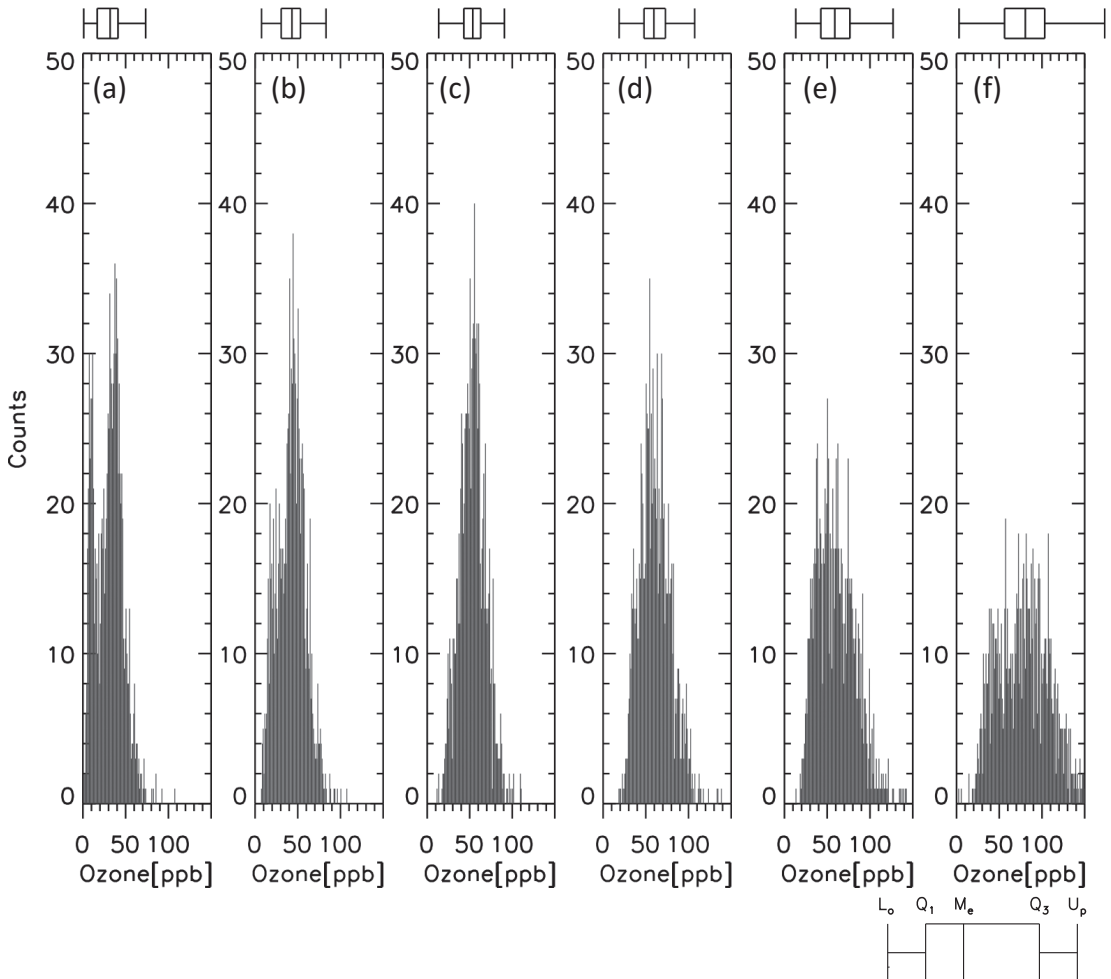
第2図において図中の矢印で示している。

2.5 後方流跡線解析

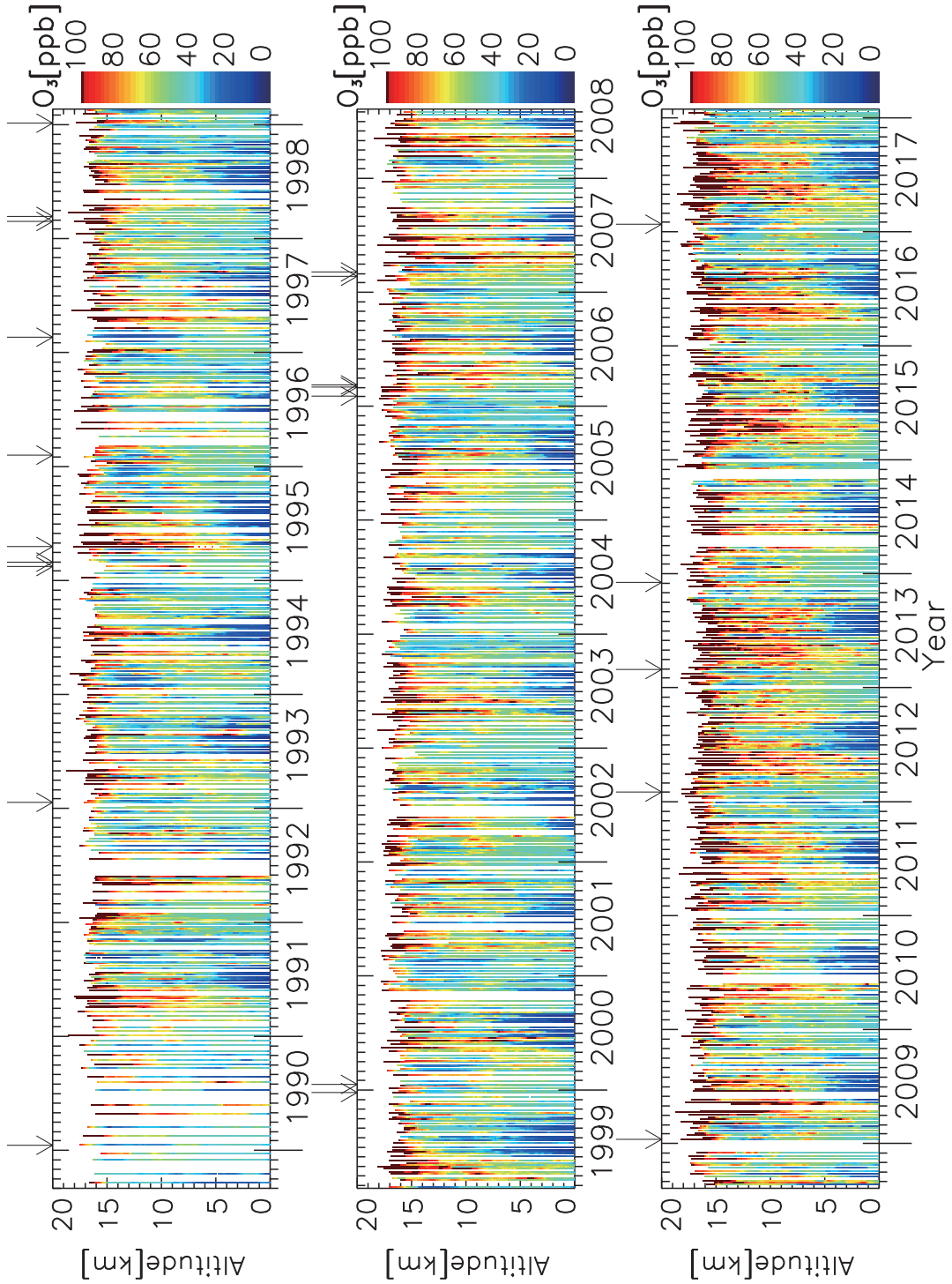
高濃度オゾンイベントの起源を調べるため、

第2表 Tukeyの箱ひげ図の定義.

$M_e$	中央値
$Q_1$	第一四分位値
$Q_3$	第三四分位値
$L_o$	下限値 $[Q_1 - 1.5 \times (Q_3 - Q_1)]$
$U_p$	上限値 $[Q_3 + 1.5 \times (Q_3 - Q_1)]$
$O_{ut}$	外れ値 $[U_p < O_{ut}]$



第1図 高度0.15km 毎にグリッド化されたオゾン濃度分布. 縦軸は個数. 横軸はオゾン濃度 (ppb). 階級の幅は 1 ppb 毎. (a) 高度0から0.15km, (b) 高度3から3.15km, (c) 高度6から6.15km, (d) 高度9から9.15km, (e) 高度12から12.15km, (f) 高度15から15.15km. 対応する箱ひげ図を各パネルの上に表示.



第2図 観測日毎のオゾン濃度の時系列図。縦軸は高度 (km)、横軸は年月。色はオゾン濃度 (ppb) を示す。矢印は第一圏界面高度が11km 以下の日を示し、オゾン濃度は第二圏界面高度まで示している。

National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) Air Resources Laboratory の the Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPPLIT4) model (<https://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>, 2020. 5. 2 閲覧) を用いて, 3 日間の後方流跡線解析を行った. 期間は4月と5月における高濃度オゾンイベントの日, 初期時刻は観測時刻に近い15時 JST, 初期地点是那覇 (26.2072°N, 127.6872°E), 初期高度は高濃度オゾンが検出された高度に設定した.

### 2.6 火災検知数

高濃度オゾンの起源の可能性として, バイオマス燃焼の影響を考慮するために, National Aeronautics and Space Administration (NASA) より提供され, Terra/Aqua に搭載されている Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS; Giglio 2016; <https://earthdata.nasa.gov/active-fire-data>, 2020. 5. 2 閲覧) の火災検知数 (MCD14ML Collection6) (0.5°×0.5°) を使用した. 信頼度80%以上のデータを使用し, 外れ値が検出された日から遡り4日

間を使用した.

### 2.7 渦位

渦位に基づく圏界面高度の定義として, 渦位が 2PVU (Potential Vorticity Unit) であると定義されることが多い (Hoskins *et al.* 1985; Holton *et al.* 1995). 本研究では圏界面高度を2PVUとし, 気象庁より提供されている気象庁55年長期再解析 (JRA-55; Kobayashi *et al.* 2015; [https://jra.kishou.go.jp/JRA-55/index\\_ja.html](https://jra.kishou.go.jp/JRA-55/index_ja.html), 2020. 5. 2 閲覧) の等温位面解析値の渦位 (anl\_isentrop125\_pvor) (1.25°×1.25°) の 15時 JST の値を参照した.

## 3. 解析結果

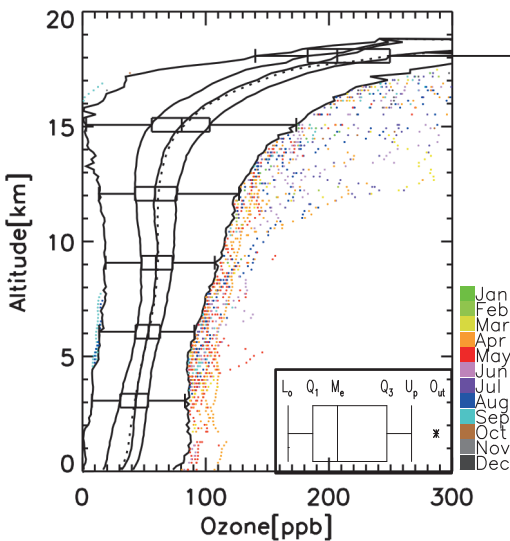
### 3.1 時間高度断面

高度0.15km にグリッド化したデータを用いて, 観測日毎のオゾン濃度を時系列で表したものが第2図である. 縦軸は高度, 横軸は年月を表す. 色はオゾン濃度を表す. Liu *et al.* (2002) と同様に, 春に高濃度, 夏に低濃度を表している. 対流圏中部・上部に頻繁に高濃度のオゾンが観測され, それらは2007年以降に頻繁に観測されているように見える. 第2図中の矢印は第一圏界面高度が11km 以下の日を示している. 第一圏界面高度が11km 以下の日は, 全観測期間内で, 1月に6日, 2月に8日, 3月に5日, 4月に1日, 12月に2日あり, 冬から春にかけて多い.

### 3.2 全解析期間の統計解析

Tukey の定義を用いて, 高度0.15km 毎に1989年9月から2018年1月までの29年間の統計解析を行った. 第3図はその結果を示す. 縦軸は高度, 横軸はオゾン濃度を表す. 高度3km 毎に箱ひげ図を表しているが, その他の高度では箱ひげ図を省略し, 中央値 ( $M_c$ ), 第一四分位値 ( $Q_1$ ), 第三四分位値 ( $Q_3$ ), 下限値 ( $L_o$ ), 上限値 ( $U_p$ ) をそれぞれ実線で, 平均値を点線で, 外れ値を点で表している. 外れ値の色は月を示す. 対流圏全体に渡って,  $U_p$  を超える外れ値が検出されていることが分かる. 高度約10km 以上では外れ値が多いが, これらは成層圏からの流入の影響と考えられる. 10km 以下では, 4月と5月に外れ値が多いことが分かる.

第4図は第3図で示された外れ値を月別に数えたものである. 縦軸は高度, 横軸は高度0.15km 毎の外れ値の総数を示す. 4月から5月に対流圏全体で外れ値が多く, 特に5月の5km 付近に多い. 6月の対流圏中部と対流圏上部や8月の対流圏中部から対流圏上部



第3図 Tukey の箱ひげ図の定義を使用した高度0.15km 毎のオゾン濃度の統計解析 (1989年9月から2018年1月まで). 縦軸は高度 (km), 横軸はオゾン濃度 (ppb). 高度3km 毎に箱ひげ図を示す. その他の高度は箱ひげ図を省略し, 中央値 ( $M_c$ ), 第一四分位値 ( $Q_1$ ), 第三四分位値 ( $Q_3$ ), 下限値 ( $L_o$ ), 上限値 ( $U_p$ ) をそれぞれ実線で, 平均値を点線で, 外れ値を点で表している. 外れ値の色は観測月を示す.

にかけて外れ値が多数検出された。

第5図aは、外れ値が多い4月から9月について、高度3-6 km における外れ値が検出された日数を表す。縦軸は月毎の外れ値が検出された日数、横軸は年を示す。4月と5月は2007年以降に外れ値が検出され

た日数が増加しており、長期的な傾向が見られる。2006年以前と2007年以降に外れ値が検出された頻度を、有意水準0.05のFisherの正確確率検定で確認したところ、有意な差があった(4月のP値は0.008, 5月のP値は0.002)。また、6月から9月においては、

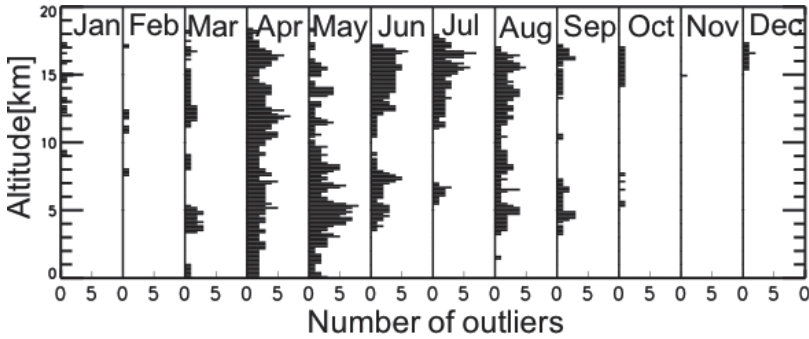
第5図に示す通り外れ値が検出された日数は少なく、2007年を挟んでの増加傾向が見られない。確認のためFisherの正確確率検定を行ったが、有意な差はなかった。

4. 考察

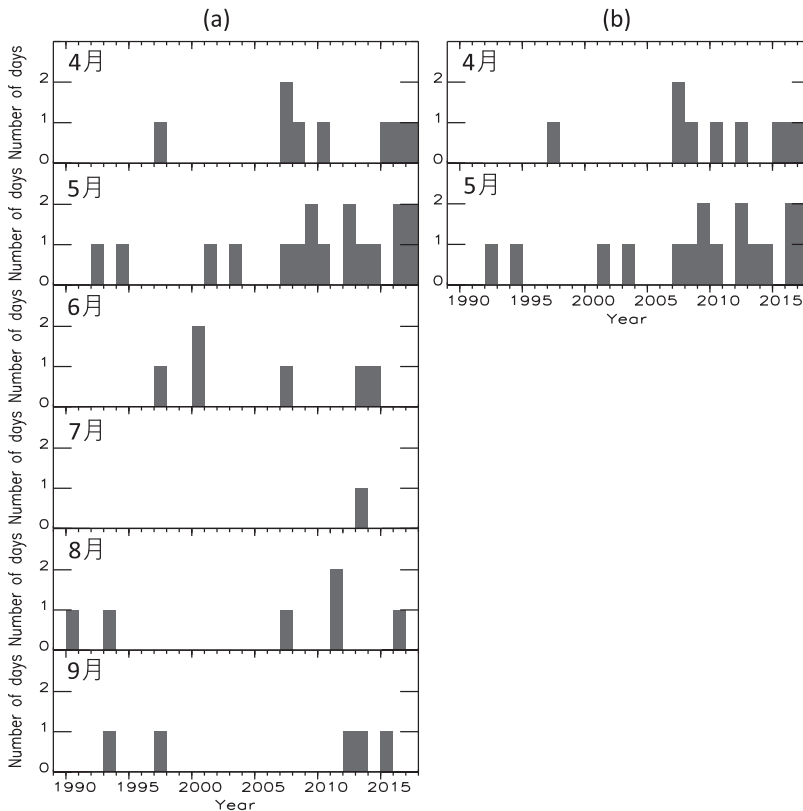
外れ値として検出された高濃度オゾンイベントの原因として、成層圏からの流入、近隣のバイオマス燃焼や人為活動による大気汚染の影響や、那覇の都市化によるオゾン前駆物質の増加などの可能性が考えられる。

このうち、那覇の都市化によるオゾン前駆物質の発生に起因する可能性は低いと考えられる。第4図で示されるように、地上付近において高濃度オゾンが観測されているのではなく、むしろ、対流圏中部・上部における高濃度オゾンが顕著であるからである。また、環境省が発表している環境省大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)の光化学オキシダントデータを参照したところ、地上付近における顕著な光化学オキシダントの増加は検出できなかった。

本解析にあたっては、2章で述べた通り、圏界面量み込みが起きていると推定された日は観測対象から除



第4図 月別の高度0.15km 毎の外れ値の総数。縦軸は高度 (km), 横軸は外れ値の総数。



第5図 (a) バイアス補正されたオゾン濃度における4月から9月と (b) バイアス補正されていないオゾン濃度における4月, 5月の高度3-6 km における外れ値が検出された日数。縦軸は日数, 横軸は年。

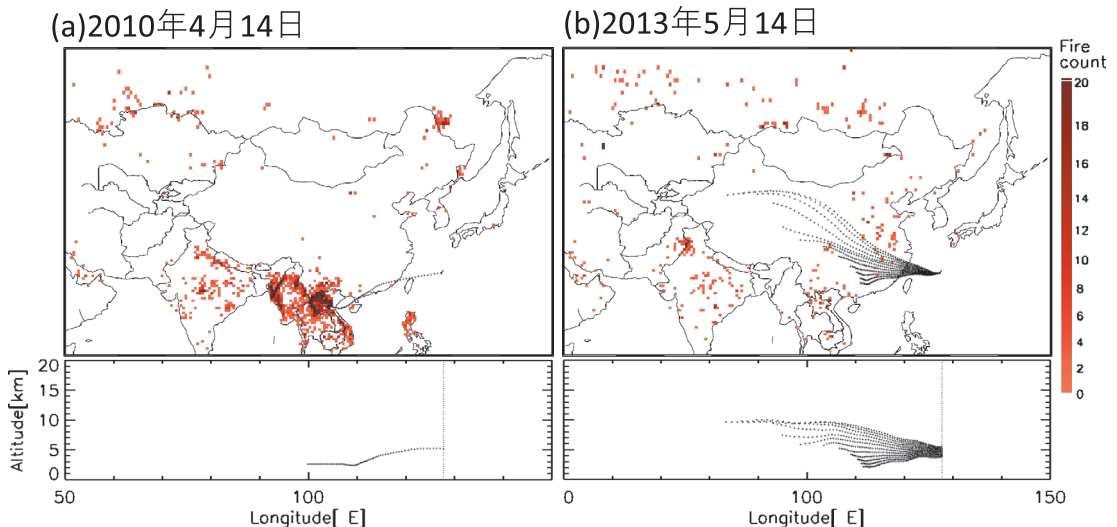
いているので、成層圏からの流入イベントの影響はある程度除かれていると考えられる。確認のため、那覇上空の渦位を JRA-55 から分析したが、4月と5月の対流圏中部（高度3-6 km）において高濃度オゾンが観測された日においては、明らかな成層圏の空気塊の流入は確認できなかった。また、4月と5月の対流圏中部において検出された外れ値について、対応する高度から HYSPLIT を用いて3日間の後方流跡線解析を行なったところ、上層から空気塊が降りてきていると見られる事例は、4月には8日中1日のみ、5月は17日中4日しかなかった。これらの成層圏からの影響が考えられる日を除いたところ、その他の高濃度イベントは、後方流跡線解析によって、すべてアジア大陸から流出した空気塊が那覇で観測されていたものと判定できた。

上記のことから、4月と5月の対流圏中部の高濃度オゾンイベントの多くは、アジア大陸からのオゾン流出に影響されていると考えられる。Liu *et al.*(2002) は、那覇における春の高濃度オゾンイベントは、東南アジアのバイオマス燃焼によって発生するオゾン前駆物質に由来し、長距離輸送によって那覇に到達した可能性があるとして示している。そこで、バイオマス燃焼の影響を考慮するために、MODIS の火災検知数がある地域を調べた。火災が検知された場所・時間と、後方流跡線が対応していたのは、4月には8日中5日、5月には17日中9日、すなわち25日中14日(56%)であっ

た。第6図に (a) 4月と (b) 5月の典型的な一例を示した。(a) の例では、東南アジアの火災検知数の多い領域と後方流跡線がよく対応していたことから、東南アジアのバイオマス燃焼起源の影響を受けた空気塊が那覇上空に到達していたことが示唆された。(b) の例では中国南部が起源とみられるが、バイオマス燃焼起源だけではなく、人為起源の影響を受けた空気塊が那覇上空に輸送されていた可能性が示唆される。

長期傾向については、第5図で示した通り、4月と5月の対流圏中部において、近年高濃度オゾンが観測された日が増加している。2008年にはオゾンゾンデの型式が変更になっているが、バイアスを補正していることや、平均値のトレンド解析ではなく、高濃度イベントの個数を数えている手法から考えて、機器の違いによるわずかなバイアスの影響は受けにくいものと考えられる。確認のため、高度3-6 km における外れ値が検出された日数を、第5図 a のバイアス補正された場合と、第5図 b のバイアス補正されていない場合とで比較した所、4月では2012年のみわずかに違いがあったが、5月では全く違いがなかった。従って、第5図 a で示されたオゾン高濃度イベントの2007年以降の増加は、東南アジアや中国におけるバイオマス燃焼や工業、自動車などの人為的活動による影響が、近年次第に深刻になってきたことを示している可能性がある。

これまで、アジアで観測された高濃度オゾンイベン



第6図 (a) 4月と (b) 5月における火災が検知された場所・時間と、後方流跡線が対応していた日の一例。赤色が火災検知数。

トの原因推定を研究した例では、数年間における解析結果によるものが多いが、那覇のオゾンゾンデ観測は過去29年間に渡り継続的に観測されており、これほど長期観測が行われている地点は少ない。我々は本研究において、那覇の長期観測データを用いることによって、対流圏中部の高濃度オゾンイベントが近年増加していることを明らかにすることができた。今後、オゾン濃度の長期傾向についてさらに詳細な解析とその原因についての研究が必要であろう。

## 5. まとめ

那覇における1989年9月から2018年1月における過去29年間のオゾンゾンデ観測データを解析し、対流圏オゾンの増大現象が起こる月と高度を明らかにした。Tukeyの箱ひげ図の定義を用いて、統計的な外れ値を高濃度オゾンイベントとして抽出した。その結果、4月から5月には、対流圏のほぼ全層に渡って高濃度イベントが観測されており、特に5月の高度5 km付近に頻繁に観測されていたことが明らかになった。その原因として、東南アジアのバイオマス燃焼や中国大陸における大気汚染物質の放出などの影響が考えられる。特に4月と5月の対流圏中部においては、近年外れ値が観測される頻度が増加しており、人為的影響がより深刻になりつつあることが示唆される。一方、6月から9月において、高濃度オゾンが観測される頻度は増加していなかった。

## 参考文献

- Deshler, T., J. L. Mercer, H. G. J. Smit, R. Stubi, G. Levrat, B. J. Johnson, S. J. Oltmans, R. Kivi, A. M. Thompson, J. Witte, J. Davies, F. J. Schmidlin, G. Brothers and T. Sasaki, 2008: Atmospheric comparison of electrochemical cell ozonesondes from different manufacturers, and with different cathode solution strengths: The Balloon Experiment on Standards for Ozonesondes. *J. Geophys. Res.*, **113**, D04307, doi:10.1029/2007JD008975.
- Gaudel, A., O. R. Cooper, G. Ancellet, B. Barret, A. Boynard, J. P. Burrows, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, J. Cuesta, E. Cuevas, S. Doniki, G. Dufour, F. Ebojje, G. Foret, O. Garcia, M. J. Granados Muños, J. W. Hannigan, F. Hase, G. Huang, B. Hassler, D. Hurtmans, D. Jaffe, N. Jones, P. Kalabokas, B. Kerridge, S. S. Kulawik, B. Latter, T. Leblanc, E. Le Flochmoën, W. Lin, J. Liu, X. Liu, E. Mahieu, A. McClure-Begley, J. L. Neu, M. Osman, M. Palm, H. Petetin, I. Petropavlovskikh, R. Querel, N. Rahepo, A. Rozanov, M. G. Schultz, J. Schwab, R. Siddans, D. Smale, M. Steinbacher, H. Tanimoto, D. W. Tarasick, V. Thouret, A. M. Thompson, T. Trickl, E. Weatherhead, C. Wespes, H. M. Worden, C. Vigouroux, X. Xu, G. Zeng and J. Ziemke, 2018: Tropospheric ozone assessment report: Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation. *Elem. Sci. Anth.*, **6**, 39, doi:10.1525/elementa.291.
- Giglio, L., W. Schroeder and C. O. Justice, 2016: The collection 6 MODIS active fire detection algorithm and fire products. *Remote Sens. Environ.*, **178**, 31-41.
- Hayashida, S., N. Urita, K. Noguchi, X. Liu and K. Chance, 2008: Spatiotemporal variation in tropospheric column ozone over East Asia observed by GOME and ozonesondes. *SOLA*, **4**, 117-120.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood and L. Pfister, 1995: Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.*, **33**, 403-439.
- Hoskins, B. J., M. E. McIntyre and A. W. Robertson, 1985: On the use and significance of isentropic potential vorticity maps. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **111**, 877-946.
- 気象庁, 2018: オゾン層・紫外線の年のまとめ (2017年). 気象庁, 45pp.
- Kobayashi, J. and Y. Toyama, 1966: On various methods of measuring the vertical distribution of atmospheric ozone (III)-Carbon iodide type chemical ozonesonde-. *Pap. Meteor. Geophys.*, **17**, 113-126.
- Kobayashi, S., Y. Ota, Y. Harada, A. Ebata, M. Moriya, H. Onoda, K. Onogi, H. Kamahori, C. Kobayashi, H. Endo, K. Miyaoka and K. Takahashi, 2015: The JRA-55 reanalysis: General specifications and basic characteristics. *J. Meteor. Soc. Japan*, **93**, 5-48.
- Komhyr, W. D., 1969: Electrochemical concentration cells for gas analysis. *Ann. Geophys.*, **25**, 203-210.
- Kunwar, B., K. Torii and K. Kawamura, 2017: Springtime influences of Asian outflow and photochemistry on the distributions of diacids, oxoacids and  $\alpha$ -dicarbonyls in the aerosols from the western North Pacific Rim. *Tellus B*, **69**, 1369341, doi:10.1080/16000889.2017.1369341.
- 黒川歌夕, 林田佐智子, 2013: 東アジアにおける対流圏オゾンのクライマトロジーの研究. 日本気象学会2013年度秋季大会予稿集, P386.
- Lin, M., L. W. Horowitz, R. Payton, A. M. Fiore and G. Tonnesen, 2017: US surface ozone trends and extremes from 1980 to 2014: quantifying the roles of rising Asian emissions, domestic controls, wildfires, and climate. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 2943-2970.
- Liu, H., D. J. Jacob, L. Y. Chan, S. J. Oltmans, I. Bey, R. M.



- Yantosca, J. M. Harris, B. N. Duncan and R. V. Martin, 2002: Sources of tropospheric ozone along the Asian Pacific Rim: An analysis of ozonesonde observations. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **107**, 4573, doi:10.1029/2001JD002005.
- Monks, P. S., A. T. Archibald, A. Colette, O. Cooper, M. Coyle, R. Derwent, D. Fowler, C. Granier, K. S. Law, G. E. Mills, D. S. Stevenson, O. Tarasova, V. Thouret, E. von Schneidmesser, R. Sommariva, O. Wild and M. L. Williams, 2015: Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 8889–8973.
- Nakatani, A., S. Kondo, S. Hayashida, T. Nagashima, K. Sudo, X. Liu, K. Chance and I. Hirota, 2012: Enhanced mid-latitude tropospheric column ozone over East Asia: Coupled effects of stratospheric ozone intrusion and anthropogenic sources. *J. Meteor. Soc. Japan*, **90**, 207–222.
- Smit, H. G. and D. Kley, 1998: JOSIE: The 1996 WMO International Intercomparison of Ozonesondes Under Quasi Flight Conditions in the Environmental Simulation Chamber at Jülich. World Meteorological Organization (WMO) Global Atmosphere Watch (GAW) report series, No. 130 (Technical Document No. 926). <https://www.fz-juelich.de/SharedDocs/Downloads/IEK/IEK-8/EN/ESF/JOSIE1996.html> (2020. 4. 20閲覧)
- Smit, H. G. and W. Sträter, 2004: JOSIE-2000: Jülich Ozone Sonde Intercomparison Experiment 2000: The 2000 WMO International Intercomparison of Operating Procedures for ECC-Ozone Sondes at the Environmental Simulation Facility at Jülich. WMO GAW report series, No. 158 (Technical Document No. 1225). <https://www.fz-juelich.de/SharedDocs/Downloads/IEK/IEK-8/EN/ESF/JOSIE2000.html> (2020. 4. 20閲覧)
- Suthawaree, J., S. Kato, A. Takami, H. Kadena, M. Toguchi, K. Yogi, S. Hatakeyama and Y. Kajii, 2008: Observation of ozone and carbon monoxide at Cape Hedo, Japan: Seasonal variation and influence of long-range transport. *Atmos. Environ.*, **42**, 2971–2981.
- Zhu, Y., J. Liu, T. Wang, B. Zhuang, H. Han, H. Wang, Y. Chang and K. Ding, 2017: The impacts of meteorology on the seasonal and interannual variabilities of ozone transport from North America to East Asia. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **122**, doi:10.1002/2017JD026761.

---

## High Ozone Anomaly in the Middle Troposphere in Naha

Koyuki YAMAGUCHI<sup>\*1</sup>, Sachiko HAYASHIDA<sup>\*2</sup>

<sup>\*1</sup> (*Corresponding author*) Graduate School of Humanities and Sciences, Nara Women's University, Kitauoyahigashi machi, Nara city, Nara, 630–8263 Japan.

<sup>\*2</sup> *Reseach Institute for Humanity and Nature/Faculty of Science, Nara Women's University.*

(Received 6 January 2020; Accepted 30 March 2020)

---