

南極オゾンホールと成層圏エアロゾルの関係について

Relationship between ozone hole and stratospheric aerosols

代表研究者	名古屋大学太陽地球環境研究所教授 Prof., Solar-Terrestr. Environm. Lab., Nagoya Univ. Yasunobu IWASAKA	岩 坂 泰 信
協同研究者	名古屋大学太陽地球環境研究所教授 Prof., Solar-Terrestr. Environm. Lab., Nagoya Univ. Masumi TAKAGI	高 木 増 美
	名古屋大学太陽地球環境研究所助教授 Assoc. Prof., Solar-Terrestr. Environm. Lab., Nagoya Univ. Yutaka KONDO	近 藤 豊
	国立極地研究所教授 Prof., National Inst. Polar Res. Sadao KAWAGUTI	川 口 貞 夫
	国立極地研究所助手 Res. Assoc., National Inst. Polar Res. Syuji AOKI	青 木 周 司
	国立極地研究所助手 Res. Assoc., National Inst. Polar Res. Hiroshi KANZAWA	神 沢 博
	気象研究所主任研究官 Senior Res., Res. Inst. Meteorol. Kikuo OKADA	岡 田 菊 夫
	NASA GSFC, Res. Fellow A. C. AIKIN	A. C. エイキン
	Director, DSIR Phys. Eng. Lab. W. A. MATTHEWS	W. A. マッシュース

Polar Stratospheric Clouds (PSCs) are suggested to be important components controlling Antarctic spring ozone depletion (Ozone Hole). However, there are few informations on PSCs formation and function of PSCs. During ozone hole, nitrogen oxides decreased their density and chlorine oxides actively destructs ozone. Large decrease in NO_x density and activation of ClO_x ozone destruction are possibly due to heterogeneous processes including PSCs. Here PSCs were collected with balloon which launched at Kiruna, Sweden in winter of 1989 and 1990, and their molecular state and shape were observed with 'method of nitron thin film' in which PSCs molecular state could be identified by chemical products made from chemical reaction between PSCs matter and nitrate evaporated on the surface of collecting plate.

These suggested that Arctic ozone depletion in winter was made through the similar pro-

cesses with Antarctic ozone hole. Nucleation of PSCs possibly advanced on Aitken size particles of which chemical composition was not completely identified.

研究目的

南極の成層圏では、オゾンの急激な減少が春先に観測され、その規模が1970年代の末から拡大の一途をたどっていることが1985年のファーマン博士らの研究で明らかにされた。彼らは、このオゾンの減少が、クロロフルオロカーボン（日本ではフロンと呼ばれることが多い）の大気中の濃度の増加が原因であると指摘したため、内外に大きな反響をまき起こした。

その後、さまざまな検討が加えられ、彼らが提唱した単純な化学反応系では観測されたオゾンの減少は説明できないことが明らかになってきた。

新しく提案された考えは、南極の冬の成層圏に多量に発生するエアロゾル（その後、このエアロゾルは、地球全体に広がって常に存在している硫酸エアロゾルと区別して極成層圏雲 (Polar Stratospheric Clouds: PSCs) と呼ばれるようになった）が、オゾン破壊に関与しているとするものであった。例えば、PSCsの発生によって大気中の微量気体の濃度が著しく変化しオゾン破壊が促進される、あるいは、安定化した塩素化合物 (NiOClO_2) を表面反応によって分解し遊離塩素を発生させるためにオゾンの塩素酸化物による破壊を促進する、などの考え方が代表的なものである。

この仮説で登場してきたPSCsは、冬に多量に発生すること以外には観測事実はなく、表面反応に関わる種々のPSCsのパラメーターやPSCs形成に関わる情報は全く得られていない。PSCsの大きさ、酸濃度、空間分布、およびその時間変化についてすら極めて限られた情報しか得られていない。

中低位緯度地帯での観測結果などをも参照して、冬季の南極成層圏の大気状態について熱力学的な検討を加えた結果、硝酸三水和物や氷が冬の成層圏で凝結する可能性が指摘された。これらの

凝結物は、中低緯度では発生しないため観測例がなく、多くの不明の部分が残されていた。

本研究では、北極成層圏オゾンの気球による国際観測に参加し、エアロゾルの直接採集を行いこれまで実証されていなかったエアロゾルの化学成分、特に硝酸イオンの有無を明らかにし、さらにそれらがPSCsと呼ばれているものであるか否かを検討し、オゾンホール形成にどのような関わりを持つかを明らかにすることを主目的とした。

研究経過

フランスを中心とする北極成層圏のオゾン観測が、1989年および1990年に計画された。観測は、大型のプラスチック気球を用い、オゾン濃度をはじめオゾン濃度を支配する化学反応の全貌が捕まえられるように、いろいろな要素について行われた。本研究で開発したエアロゾル自動採集装置も同時に搭載され、以下の問題の解明に資する情報を得ることが目的となった：

- 1) 予想されているような極成層圏に特有なエアロゾル (PSCs) が北極成層圏で発生しているか？
- 2) 北極成層圏においても南極成層圏のオゾンホールと同じような機構でオゾン減少が起きているか？

PSCsの発生は、南極成層圏のエアロゾル観測で認められたものではあるが、それらが硝酸三水和物もしくは水の凝結物であるとするなら、北極でもそれらが観測される可能性がある。ただし北極成層圏は南極よりも平均的に気温が高く、観測されたとしても規模が小さいものであったり持続時間の短いものであったりすると予想される。

観測は、以下のように行われた：

観測時期：1989年2月、1990年1月

気球の放球場所：スウェーデン、キルナ市

観測高度：対流圏上部より約30 kmまで

気球の回収：スウェーデンより放球されたのち

ノルウェー国内で回収する

硝酸の検出に使用される特別試薬であるニトロンを蒸着した薄膜の上にエアロゾルを採集し、エアロゾル物質とニトロンが反応して特有の針状の結晶を作るか否かによって、エアロゾル物質のなかに硝酸あるいは硝酸塩が含まれているかいないかを判定した。針状の結晶の有無は、電子顕微鏡によって観察した。

ニトロンの蒸着膜に加えて、炭素膜の上にもエアロゾルを採集した。炭素膜上に採集されたエアロゾルの観察は長い歴史があり、これまでに大量に蓄積されているエアロゾルの電子顕微鏡画像との比較検討によっても、今回採集したエアロゾルの化学組成を同定することが有用と考えられた。

観測は、1989年ではエアロゾルの採集装置のテストを中心とし、1990年ではその経験をふまえたエアロゾル採集を行った。

研究成果

1989年の観測で、採集装置が完全に作動することを確認した。このとき採集されたエアロゾルは、わずかながら硝酸イオンの存在を認めており北極圏での硝酸エアロゾル(PSCs)の生成が行われている可能性が高いことを示していた。同時になされたオゾン観測の結果からは、オゾンの有意な濃度低下が確認されており、いわゆるオゾンホール型のオゾン破壊が北極においても進行させつつあることを暗示していた。

この時の採集装置では、空気の捕収量が少なく採集面に採集されたエアロゾルの数が少ないために、十分な観察が出来なかった。この点を改良する必要が生じたが、同時に積載重量を増加させずに採集量を増加させる工夫も必要であった。

1990年の観測では、改良を加えた採集装置で1月18日および1月31日に採集がなされた。採集結果のうち主なものは以下のとおりである。

1) 1月31日の観測に於いて、20~24 kmの硝酸エアロゾルからなる層が観測された。

2) 1月31日の硝酸エアロゾル層の存在した場所は、硝酸三水和物の凝結が可能な程度の低温状態にあった。

3) この硝酸エアロゾル層の近辺では、気体状

の窒素酸化物の濃度低下が見られ、いわゆる脱窒状態(硝酸や NO_x の濃度が低い状態)の大気が形成されていた。この大気の脱窒状態は、大量の硝酸エアロゾルの生成と関係があると推定される。

4) 硝酸エアロゾル層は、硫酸(もしくは硫酸塩エアロゾル)層の上に重なるようにして存在していた。

5) 硫酸エアロゾル層のなかに、極めて少数の硝酸エアロゾルが混じっていた。このことが観測された高度は、熱力学的には硝酸エアロゾルの生成が困難な場所である。

1990年の1月31日の結果は、硝酸エアロゾル(PSCs)が低温の大気内で形成されることを、個々のエアロゾルの電子顕微鏡観測によって直接検証した。これまでになされた観測では、多くの場合フィルター上にエアロゾル状物質を多量に集めそれを化学分析することが行われたが、この場合には個々エアロゾルの化学成分の違いがわからなくなってしまう。

今回の観測によって、硝酸エアロゾル層ではほとんどのエアロゾルが硝酸エアロゾルであり他のタイプのものを認めなかった。また、硝酸エアロゾル層と硫酸エアロゾル層がはっきりと区別できることから、硝酸エアロゾル層が形成されたときには、この層内にあった硫酸エアロゾル(硫酸塩エアロゾル)さらには化学成分が同定不可能なエイトケン粒子(半径が $0.01 \mu\text{m}$ 以下)のほとんどが核になって硝酸エアロゾルを作っている可能性が高い。

極めて少数ではあるが、硫酸エアロゾル層のなかに硝酸エアロゾルが認められた。この状態は、上述した状態とはきわめて異なり単にこの領域が硝酸エアロゾルの生成可能状態にあったとするだけではこのような状態を説明することにはならない。

考えられる過程の一つに、硝酸エアロゾルの重力落下を指摘することができる。硝酸エアロゾルが形成された場合には、数 μm にまで成長する可能性が指摘されている(特に、脱窒が起きていない時期の硝酸蒸気分圧が比較的高いとき)。このような大きな粒径を持った硝酸エアロゾルは、

当然のことながら重力沈降するために、下に広がっていた硝酸エアロゾル層のなかに落下することは十分に考え得ることである。

硝酸エアロゾルの落下現象は、脱窒の効果という面から見るとオゾン破壊過程に大きな影響を及ぼしている。

塩素酸化物のオゾン破壊は、窒素酸化物の存在によって抑制されている。抑制物質として働いている窒素酸化物は、硝酸がエアロゾル化することで濃度を低下させる。この現象に硝酸エアロゾルの落下が加わると、脱窒現象はさらに加速されることになり、結果としてオゾンの破壊がより活発になることを意味するからである。

このように見てくると、PSCs（硝酸エアロゾル）の発生に伴って脱窒状態の大気が形成され、塩素酸化物のオゾン破壊が活性化されることによってオゾンホールが形成されているのと同じ現象が北極でも起きていることが強く示唆される。南極では、さらに低温化が進み氷粒子の形成も予想されているが北極の観測ではこのような状態は見られなかった。ともあれ、PSCsの存在下で塩素酸化物のオゾン破壊が著しく促進される点については南極も北極も本質的な違いはないといえる。

今後の課題と展望

硝酸エアロゾルが直接的に観察された例は極めてまれであり、本研究の最も大きい成果であった。しかし、いまだ観測例は限られたものであり、PSCsの発生から消滅までの時間経過や立体的な構造は不明なままである。気球による観測は、地理的な条件や施設の整備状況によって大きく左右されるために、時間的に密な観測はとうてい望めない。レーザーダタや人工衛星のようなりモートセンシング技術を併用し、より総括的な研究の実施が望まれる。

硝酸エアロゾルの形成は、大気中の窒素酸化物の生成消滅と強い関連がある。この硝酸エアロゾルが本研究で見たように重力落下するものであるなら、成層圏の硝酸が対流圏まで落下してくる可

能性もありうる。近年、南極氷床のコア解析から、水中の硝酸イオンの動向と太陽活動の11年周期との対応の良さが、多くの人の関心を引いている。本研究で強く示唆されたように成層圏のPSCsは極めて有力な硝酸の運搬者である。極成層圏のエアロゾルの形成が、太陽活動と大気圏と雪氷圏を結ぶ硝酸の振舞を支配するプロセスともなり得る。

本研究は、オゾンホール形成とエアロゾルの関係を明らかにすることを目的として開始されたが、一方では雪氷学での新しい発見と遭遇し、硝酸エアロゾル(PSCs)の別の側面(=硝酸の運搬者)を鮮明にする機会ともなった。新しい視点から、太陽活動の地球への影響を考える足場が硝酸エアロゾル(PSCs)の研究から得られるであろう。

発表論文

- Iwasaka, Y. and Hayashi, M.: Nitric acid trihydrate particle formation in the polar stratosphere and its effect on nitric acid transport to the troposphere, *J. Geomag. Geoelectr.*, 43 (1991), in press.
- Koike, M., Kondo, Y., Hayashi, M., Iwasaka, Y., Newman, P. A., Helten, M. and Amedieu, P.: Depletion of arctic ozone in the winter 1990, *Geophys. Res. Lett.*, 18 (1991), in press.
- Iwasaka, Y., Hayashi, M., Nomura, A., Kondo, Y., Koga, S., Yamato, M., Koike, M., Amedieu, P. and Matthews, W. A.: Seasonal change and chemical state of polar stratospheric aerosols, *Proc. Intern. Symp. Role of Polar Region on Global Change*, (1991), in press.
- Iwasaka, Y. and Hayashi, M.: Two different stages in polar stratospheric clouds events: Lidar backscatter of particulate matter and temperature in the antarctic stratosphere, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 69, 71~81 (1991).
- Iwasaka, Y. and Hayashi, M.: Nitric acid transport from the stratosphere to the troposphere and ice sheet in antarctica through polar stratosphere, *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, 4, 12~21 (1991).
- Iwasaka, Y. and Hayashi, M.: Effect of polar stratospheric clouds on geochemical cycle of stratospheric material—stratospheric particle precipitation—, *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, 3, 25~35 (1990).