

# 熱帯対流圏界層における力学・化学過程の統合的研究

長谷部 文雄<sup>1</sup>, 青木 周司<sup>2</sup>, 本田 秀之<sup>3</sup>, 菅原 敏<sup>4</sup>, 森本 真司<sup>2</sup>, 豊田 栄<sup>5</sup>, 石戸谷 重之<sup>6</sup>,  
後藤 大輔<sup>7</sup>, 中澤 高清<sup>2</sup>, 柴田 隆<sup>8</sup>, 林 政彦<sup>9</sup>, 西 憲敬<sup>9</sup>, 藤原 正智<sup>1</sup>, 宮崎 和幸<sup>10</sup>,  
塩谷 雅人<sup>11</sup>, 鈴木 順子<sup>10</sup>, 荻野 慎也<sup>10</sup>, 稲飯 洋一<sup>11</sup>, 清水 健作<sup>12</sup>, 白井 知子<sup>13</sup>

<sup>1</sup> 北大, <sup>2</sup> 東北大, <sup>3</sup> ISAS/JAXA, <sup>4</sup> 宮城教育大, <sup>5</sup> 東工大, <sup>6</sup> 産総研, <sup>7</sup> 極地研, <sup>8</sup> 名大, <sup>9</sup> 福岡大,

<sup>10</sup> JAMSTEC, <sup>11</sup> 京大, <sup>12</sup> 明星電気, <sup>13</sup> 環境研

## 1. はじめに

生命存在に不可欠な水は、温室効果ガスとして放射エネルギー収支に大きな影響を与える。水蒸気は常温で飽和・凝結するため、その混合比は高度と共に減少し、成層圏では約 4 ppmv という極度の乾燥状態に達するが、放射過程を通じた成層圏水蒸気量変動の気候影響は全球に及ぶ。過去 30 年間の水蒸気量増加が全球平均地表温度にもたらした温暖化は 0.1°C 程度とされ、この値は 1996 年から 2005 年までの CO<sub>2</sub> 増加による温暖化に相当する (Solomon et al., 2010)。また、中層大気中では OH ラジカルに姿を変え、大気化学のあらゆる局面に関与する。こうして、放射・化学・力学過程と複雑に関わり合いながら、それ自体が各過程の微妙なバランスの上に維持されている水蒸気は、地球環境を規定する重要な物質であり、現代中層大気科学の主要な研究対象の一つである。

成層圏水蒸気量の定量的考察に基づき、Brewer (1949) は対流圏大気の成層圏流入経路が低温の熱帯域に限定されると指摘し、大気大循環像を成層圏にまで拡張した。その後の観測の蓄積に伴って脱水過程に関する理解は深まった (「成層圏の泉」仮説; Newell and Gould-Stewart, 1981) が、低温形成の物理過程が大気塊の鉛直上昇に伴う膨張/冷却であるとの認識は一貫して維持された。半世紀余りを経てこれを覆したのが Holton and Gettelman (2001) である。彼らは大気塊が力学的に維持される低温域を準水平的に移流することこそが脱水過程の本質であると指摘し、脱水の主角を成層圏へ貫入する積乱雲から対流圏界面付近に形成される巻雲へと置き換えた。水平移流仮説の基礎となったのは、成層圏大気大循環駆動メカニズムに関する理解の大変革 (Haynes et al., 1991; Holton et al., 1995) と熱帯対流圏界層 (Tropical Tropopause Layer; TTL) 概念の導入 (Highwood and Hoskins, 1998; Folkins et al., 1999) であった。また、対流圏界面温度の季節変動が成層圏流入大気の水蒸気混合比として記録され成層圏を上昇している様子が「大気のテープレコーダー」 (Mote et al., 1996) として捉えられ、赤道と中緯度との間の混合障壁の存在が認識されるようになった (Plumb, 1996)。こうした力学理論の発展に基づく成層圏水蒸気の理解に関する変遷は、成層圏化学や地球温暖化の理解にも及ぶ。

成層圏でオゾン消失を担うハロゲンの大部分はフロンガスなどの長寿命成分を起源とするが、短寿命成分やその分解生成物の貢献も無視できない (Law et al., 2007)。これらの物質は、成層圏への流入に先立って TTL 内の物理・化学過程に曝されるが、氷に取り込まれる性質のある成分やエアロゾルの場合、TTL 内脱水過程の時間スケールと化学過程の時間スケールとの大小により成層圏への輸送効率は大きく異なる。すなわち、主要な脱水過程が水平移流なら氷に取り込まれて落下する割合が増加し、深い対流により一気に成層圏まで輸送される場合と比べ、その成層圏での役割は限定的となる。

TTL 内脱水過程の理解には巻雲生成過程の解明が不可欠である。TTL における巻雲は上部対流圏のエアロゾル粒子を氷晶核として形成されるが、巻雲粒子の個数濃度は、氷晶核となり得る硫酸水溶液エアロゾル粒子濃度から予想される値より一桁以上小さいことが示唆されており (Krämer et al., 2009)、巻雲粒子個数濃度の逆説と呼ばれている。また、熱帯巻雲中では氷に対する相対湿度 (RH<sub>ice</sub>) で数十%以上に達する高い過飽和 (雲中高過飽和の謎) が観測されており (Shibata et al., 2007)、巻雲生成過程の詳細は未解明である。また、海洋プランクトンの代謝生成物として大気中に放出される硫化ジメチル (DMS) の分解により形成される有機エアロゾルも、水蒸気の凝結核となり巻雲を形成する。エアロゾルはそれ自身、負の放射強制をもたらす (直接効果) が、さらに巻雲のアルbedo変化を通して負の放射強制を引き起こす (間接効果)。しかし、エアロゾルのもつ放射強制の定量的評価には極めて不確実性が高く、気候変動予測の精度向上に向けた最重要課題である (Solomon et al., 2007)。

下部成層圏の水蒸気は 1980 年から 2000 年にかけて 20%ほど増加し、2000 年代に入って 10%急減した後、再度増加に転じている (Hurst et al., 2011)。増加トレンドは成層圏で酸化されて水蒸気を生成するメタンの増加では説明できず、2000 年頃の減少の原因も Brewer-Dobson 循環の強化に伴う TTL の低温化にあると考えられるが、そのメカニズムは解明されていない (長谷部, 2012)。

Brewer-Dobson 循環の強度は、大気塊が対流圏との接触を絶たれてからの経過時間として定義される「年齢」

(age) により評価することができる。中緯度成層圏における CO<sub>2</sub> 混合比は熱帯域における成層圏流入時の対流圏混合比を概ね保存していると考えられ、大気の年齢の評価に用いることができる。クライオジェニックサンプラーを用いた成層圏大気のサンプリング(以下、クライオサンプリング)によれば、日本上空の中部成層圏における CO<sub>2</sub> 混合比の増加率は、対流圏の値よりわずかに小さい(Engel et al., 2009)。これは、熱帯域で成層圏に流入した大気が日本上空まで到達するのに要する時間が長くなっていること、すなわち大気の年齢が延びてきていることを示唆する。この事実は、地球温暖化に伴って Brewer-Dobson 循環が強まり成層圏大気の年齢が若くなる、という気候モデルによる予測(e.g., Austin et al., 2007) と明らかに矛盾するが、その原因はまだ明らかになっていない。

このように、気候変動予測には長寿命の温室効果ガスに加えて成層圏水蒸気の長期変動やエアロゾルによる放射強制(直接・間接効果)の理解が不可欠であるが、TTL 内脱水過程、Brewer-Dobson 循環の変調メカニズムと大気の年齢、巻雲中の高い過飽和と巻雲粒子の低濃度など、重要な素過程に未知の事柄が多く残されている。これらの解明を通して、化学輸送モデルに成層圏水蒸気量変動を組み込むなど、気候変動予測の高度化へ向けた取り組みが今後の重要課題である。

## 2. プロジェクトの目的と学術的特徴

宇宙科学研究所や東北大学のグループを中心に実施されてきた日本上空の成層圏クライオサンプリングは、1985年の開始(Honda et al., 1996)以来、CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, SF<sub>6</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, CO の濃度や CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, Ar の同位体比の高度分布などを明らかにしてきた。その結果は、大気成分の振る舞いに関する多くの革新的知見をもたらしてきた。Gamo et al. (1989) は、日本・スカンジナビア・南極上空における CO<sub>2</sub> 同位体観測に基づき、成層圏において CO<sub>2</sub> の  $\delta^{18}\text{O}$  の値が高度とともに増加することを見出した。この特徴は、対流圏起源の CO<sub>2</sub> が成層圏を上昇する間に、重い酸素原子を含むオゾン(O<sub>3</sub>)の光解離で生成された <sup>18</sup>O(<sup>1</sup>D) や <sup>17</sup>O(<sup>1</sup>D) が CO<sub>2</sub> 分子を構成する酸素原子と入れ替わり、CO<sub>2</sub> 分子に徐々に取込まれたためと解釈されている(e.g., Yung et al., 1991; Wen and Thieme, 1993; Thieme et al., 1995; Yung et al., 1997)。また、中間圏より高い高度でしか起こらないと信じられていた大気成分の重力分離が成層圏高度でも生じていることを初めて観測的に見出す(Ishidoya et al., 2006, 2008)といった成果も得られている(中澤, 2013)。

熱帯域における成層圏水蒸気観測は、日本の研究者を中心に組織された Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region (SOWER) プロジェクトにより、オゾン・水蒸気ゾンデを用いた集中観測として 1998 年から実施されてきた(Hasebe et al., 1998)。得られたデータは、熱帯成層圏水蒸気の長期変動の記述(Fujiwara

et al., 2010)のほか、Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder (SMILES) のオゾン観測値の検証にも利用されている(Imai et al., 投稿中)。SOWER 現場観測は、TTL 内水平移流に伴う脱水の観測的証拠を始めて捉えた(Hasebe et al., 2007, 2013)ほか、多点同時観測の特長を活用した水蒸気 match (同一大気塊の複数回観測)からは、氷結開始臨界値として RH<sub>ice</sub> 146 ± 19 % という見積もりが得られている(Inai et al., 2013)。また、水蒸気ゾンデとライダーの同時観測からは雲中高過飽和の謎の実例が数多く見出され、脱水進行中の大気塊の観測例と解釈できる巻雲中における水蒸気混合比の極小も観測されている(Shibata et al., 2007)。さらに、ライダーと光学的粒子計数器(Optical Particle Counter; OPC) とによる同時観測で見出された硫酸塩エアロゾル層中の巻雲では、雲粒子とエアロゾル粒子の濃度が、液相エアロゾル粒子中における巻雲生成理論から予想されるものよりはるかに少なく、巻雲粒子個数濃度の逆説の実例と考えられている(Shibata et al., 2012)。

以上のように、クライオサンプリンググループと SOWER グループは、それぞれ、温室効果ガスの詳細な解析と TTL 内脱水過程の観測的記述を通して、地球環境問題の理解に貢献する重要な知見を世界に先駆けて発表してきた。本プロジェクトの目的は、これら 2 つのグループの連携により、熱帯西部太平洋域の TTL と下部成層圏における大気物理学・大気化学過程を統合的に解明することである。この連携が今というタイミングで実現することには、特に価値がある。それは、熱帯西部太平洋を対象とする大規模航空機観測が 2014 年 1-2 月に実施される(Jensen et al., 2013)ためである。この計画では、超高高度長距離飛行可能な NASA の Global Hawk による ATTREX<sup>1</sup> (<http://www.espo.nasa.gov/attrex/>) を軸に、NCAR による CONTRAST<sup>2</sup>・ヨーロッパによる CAST<sup>3</sup> 両プロジェクトにより派遣される航空機を合わせた計 3 機体制による集中観測で、境界層から TTL までの大気物理・化学過程を総合的に明らかにしようとしている。我々の統合研究がこれを機になすべきことは 2 つある。第 1 は航空機観測とは独立な水蒸気・オゾン観測により、航空機観測に対する検証データを提供するとともに SOWER で継続してきた現場観測を発展させること、第 2 は航空機により詳細に観測された大気が成層圏上昇過程で受ける変質をクライオサンプリングによって捉えることである。このような機会は過去に例がなく、将来においても恐らくないであろう。さらに、成層圏への入り口において大気微量成分混合比を正確に押さえておくことは、中緯度や極域で実施されるクライオサンプリングの結果を解釈する上で極めて重要である。

本プロジェクト(図 1)は、航空機観測と連携した水蒸

<sup>1</sup>Airborne Tropical Tropopause Experiment

<sup>2</sup>CONvective TRansport of Active Species in the Tropics

<sup>3</sup>Coordinated Airborne Studies in the Tropics

気・オゾン観測による TTL 内脱水過程の精密観測、対流圏大気流入域における JT サンプラー (Morimoto et al., 2009) を用いたクライオサンプリングによる大気微量成分の高度分布の記述とエアロゾルサンプリングによる氷晶核の微物理特性の解明を通して、TTL から下部成層圏領域における化学・輸送過程に関する総合的知見をもたらすと期待できる。プロジェクトのゴールは次の通り:

1. ATTREX 航空機観測との match を含む国際協力により水平移流に伴う脱水量定量化と脱水効率の観測的評価を精密化し、氷結開始に至る臨界  $RH_{ice}$  の気候値とその変動性評価の精度を高める。
2. TTL 内に存在する氷晶核の微物理特性、断片的証拠の得られている heterogeneous nucleation の実態を明らかにし、雲中高過飽和の謎を解明する。
3. 対流圏大気流入域の各高度において、 $CO_2$ 、 $SF_6$  等の混合比・各種同位体の  $\delta$  値などから化学的に評価される大気の年齢と、水蒸気混合比から力学的に評価される最終脱水高度通過後の時間とを比較し、両者の整合的な理解を確立する。
4. ATTREX 航空機により観測された大気をクライオサンプリングにより解析し、熱帯成層圏を上昇中の大気に作用する力学過程・化学過程を解明する。
5. 本プロジェクトと白鳳丸から実施されたクライオサンプリングの比較により、熱帯域における海面水温の東西コントラストと Walker 循環とが対流圏化学物質の TTL 輸送効率に及ぼす影響を明らかにする。

### 3. 実施計画

主要な現場観測は 2 回の集中観測として実施する。第 1 は 2014 年 1-2 月の ATTREX/CONTRAST/CAST と同期した観測で、水蒸気・オゾンのゾンデ観測とライダーによる巻雲・エアロゾル観測を中心に実施する。第 2 は 2015 年 1-2 月を当面の目標に実施するクライオサンプリングで、水蒸気・オゾン・ $CO_2$  ゾンデ観測・OPC 観測とエアロゾル/雲粒子サンプリングも同時に試みる。観測拠点としては、warm pool の中心に位置し赤道直下において対流圏界面が高く低温で、西部熱帯太平洋を代表する地点が望まれるため、インドネシア宇宙航空庁 (LAPAN)

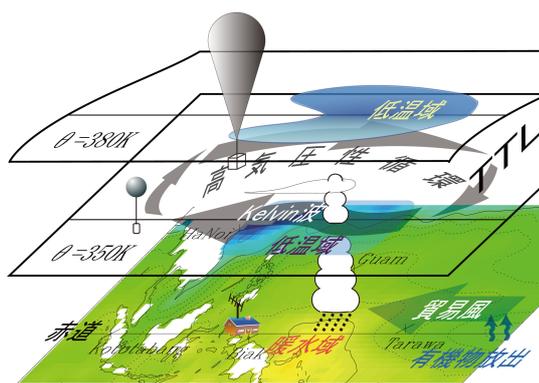


図 1: プロジェクトの概念図

の観測所があり SOWER 観測点として 10 年間の実績のある Biak (1.2°S, 136.1°E) を選択する。

#### 3.1. 準備状況

1. ATTREX 等との連携: 協同研究の円滑な遂行と学生・PD の教育を目的に、2012 年 10 月に日米 TTL Workshop (<http://scholar.valpo.edu/ttlworkshop/>) を開催した (Gettelman et al., 2013; Morris et al., 2013)。観測期間中は SOWER から ATTREX 航空機観測の基地 (Guam) に連絡調整員を派遣する。その準備として、2013 年 1 月に Dryden Flight Center で行われた ATTREX 観測に西憲敬 (福岡大学) が参加し、2014 年 1-2 月に向けての連携を確認した。
2. クライオサンプリング: 2013 年 1 月に柴田隆 (名古屋大学)、本田秀之 (宇宙科学研究所)、長谷部文雄 (北海道大学) がインドネシアを訪問し、LAPAN (Bandung) 指導部と面会し口頭での了解を得た。ただし、観測実施には Memory of Understanding (MOU) の交換が必要。1980 年代に LAPAN から三陸大気球観測所に研究者を受け入れ、1992 年に Watukosek で大気球観測をした実績があるが、当時の研究者の多くは退職年齢に達している。上記の LAPAN (Bandung) 訪問後、本田と柴田が Biak 観測所を訪問して現地調査を行った。現地の気象条件は、朝夕になぎ状態が期待でき、昼間の風も雷雲発生時を除いて概ね穏やかであり、問題はないと判断された。放球場と受信点とについてそれぞれ複数の候補地を検討し、それぞれの長所・短所を確認している。
3. エアロゾルサンプリング: 気球につり下げて飛揚し上空から滑空帰還させるタイプの無人機を利用したシステムを林政彦 (福岡大学) らが開発中で、南極上空高度 10 km の大気採取に成功している (朝日新聞ネット版 2013 年 3 月 5 日) が、着陸スペースの確保が困難なためクライオサンプリング用の大気球にサンプラーを搭載して回収する方法を試みる。

#### 3.2. 年次計画

本プロジェクトのミッションの内、ATTREX と同期した 2014 年 1-2 月の観測は既に準備が進行中であるが、本プロジェクト経費で補強を図る。クライオサンプリングは本プロジェクト経費を主たる財源として提案しているが、2014 (H26) 年度以降の水蒸気・オゾンゾンデ観測を含む形で、科学研究費も申請している。科研費が不採択の場合には、観測計画の一部を断念しつつ、本プロジェクト経費で実現可能な範囲で科学目的の達成を期す。

クライオサンプリング実施には、いくつかの外部条件への柔軟な対応が必要で、次のように計画している。

1. 2014 (H26) 年度の夏実験が大樹町で実施できる場合: 日本上空における観測の連続性を優先するためクライオサンプリングは大樹町で実施し、2015 年 1 月のインドネシアにおける観測は 1 年延期する。

2. 2014 (H26) 年度の夏実験が大樹町で実施できない場合: 本提案もしくは前記科研費が採択された場合は、2015年1月にBiakでクライオサンプリングを実施する。本提案も科研費も採択されなかった場合は2014 (H26) 年度の観測データが得られないこととなり、クライオグループにとって大きな損失となる。さらに、2015 (H27) 年度の観測を大樹町で行うべきかインドネシアで行うべきか、科学的に難しい判断を迫られることとなり、現時点では決定できない。

2015年1月を目標に実施するBiakクライオサンプリングでは、観測期間中に4機の飛揚を行い成層圏内8高度の試料を得る。ただし、Biakでの海上回収は未経験なため、2014年度前半にBiakで回収予備試験を実施する。この試験では、ゴム気球で飛揚した回収試験用機材を追尾し、落下地点の予測と小型船による回収を実際に行うことにより、落下地点予測に必要な気象場の精度を確認するとともに現場海域の様子や回収船の航行性能を調査し、本観測におけるサンプラー回収に万全を期す。

### 3.3. プロジェクト終了後の発展

本プロジェクトが所期の成果を上げ、西部熱帯太平洋における観測の重要性が確認された場合には、国内における北半球中緯度(三陸/大樹町)、北極域(Kiruna)、南極域(昭和基地)に続く第4の観測拠点としてBiakを位置付け、継続的な観測が可能な拠点として整備することが望ましい。熱帯域では、Madden-Julian振動/TTL内Kelvin波のような短周期現象による循環場・脱水効率の変動、El Nino/Southern Oscillation (ENSO) や成層圏東西風の準2年周期振動(QBO)による経年変動が卓越するため、個々の観測の代表性は必ずしも高くない。したがって、経年変動を精度よく記述するには注意深い継続的な観測が必要である。こうした高精度の長期間にわたるデータは、JAXAの運用する温室効果ガス観測技術衛星GOSATやその後継機GOSAT-2の検証にも貢献するはずである。また、将来、短寿命化学種の分析が可能になることを期待して採取試料の一部は凍結保存する。短期間の航空機観測では実現できないこうした取り組みにより、我が国独自の貢献を行ってゆくのが我々の目標である。なお、こうした長期的な取り組みにはLAPANとの協力関係のさらなる深化が必要と考える。LAPANに限らず、アジア地域では若手研究者育成が急務であるとの認識が共有されており、こうした希望に積極的に応えながら息の長い研究を継続することが必要である。

## 参考文献

Austin et al. (2007), *J. Atmos. Sci.*, *64*, 905–921.  
Brewer (1949), *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, *75*, 351–363.  
Engel et al. (2009), *Nature Geosci.*, *2*, 28–31.  
Folkens et al. (1999), *J. Geophys. Res.*, *104*, 22,095–22,102.

Fujiwara et al. (2010), *J. Geophys. Res.*, *115*, D18304, doi:10.1029/2010JD014179.  
Gamo et al. (1989), *Tellus*, *41B*, 127–133.  
Gettelman et al. (2013), *SPARC Newsletter*, *40*, 37–47.  
Hasebe et al. (1998), *SPARC Newsletter*, *10*, 32  
Hasebe et al. (2007), *Atmos. Chem. Phys.*, *7*, 803–813.  
Hasebe et al. (2013), *Atmos. Chem. Phys.*, *13*, 4393–4411.  
Haynes et al. (1991), *J. Atmos. Sci.*, *48*, 651–678.  
Highwood and Hoskins (1998), *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, *124*, 1579–1604.  
Holton and Gettelman (2001), *Geophys. Res. Lett.*, *28*, 2799–2802.  
Holton et al. (1995), *Rev. Geophys.*, *33*, 403–439.  
Honda et al. (1996), *J. Geomagn. Geoelectr.*, *48*, 1145–1155.  
Hurst et al. (2011), *J. Geophys. Res.*, *116*, D02306, doi:10.1029/2010JD015065.  
Inai et al. (2013), *Atmos. Chem. Phys.*, *13*, 8623–8642.  
Ishidoya et al. (2006), *Geophys. Res. Lett.*, *33*, L13701, doi:10.1029/2006GL025886.  
Ishidoya et al. (2008), *Geophys. Res. Lett.*, *35*, L03811, doi:10.1029/2007GL030456.  
Jensen et al. (2013), *SPARC Newsletter*, *41*, 15–24.  
Krämer et al. (2009), *Atmos. Chem. Phys.*, *9*, 3505–3522.  
Law et al. (2007), in *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006*, Global Ozone Research and Monitoring Project Report No. 50, chap. 2.  
Morimoto et al. (2009), *J. Atmos. Oceanic Technol.*, *26*, 2182–2192, doi:10.1175/2009JTECHA1283.1.  
Morris et al. (2013), *Eos Trans. AGU*, *94*(9), 91.  
Mote et al. (1996), *J. Geophys. Res.*, *101*, 3989–4006.  
Newell and Gould-Stewart (1981), *J. Atmos. Sci.*, *38*, 2789–2796.  
Plumb (1996), *J. Geophys. Res.*, *101*(D2), 3957–3972.  
Shibata et al. (2007), *J. Geophys. Res.*, *112*, D03210, doi:10.1029/2006JD007361.  
Shibata et al. (2012), *J. Geophys. Res.*, *115*, D11209, doi:10.1029/2011JD017029.  
Solomon et al. (2007), *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*.  
Solomon et al. (2010), *Science*, *327*, 1219–1223.  
Thiemens et al. (1995), *Science*, *270*, 969–972.  
Wen and Thiemens (1993), *J. Geophys. Res.*, *98*, 12,801–12,808.  
Yung et al. (1991), *Geophys. Res. Lett.*, *18*, 13–16.  
Yung et al. (1997), *J. Geophys. Res.*, *102*(D9), 10,857–10,866.  
中澤 高清 (2013), *天気*, *60*(3), 145–163.  
長谷部 文雄 (2012), *天気*, *59*(9), 788–796.