

南極オゾンホール回復時の輸送・混合過程

富川喜弘^{1,2*}・佐藤 薫³

Transport and mixing processes during the Antarctic ozone increase

Yoshihiro Tomikawa^{1,2*} and Kaoru Sato³

(2010年3月24日受付; 2010年5月7日受理)

Abstract: The 44th Japanese Antarctic Research Expedition (JARE-44) performed intensive ozonesonde observations at Syowa Station (69.0°S, 39.6°E) from June 2003 through January 2004 to clarify the time evolution and mechanism of the Antarctic ozone hole dissipation as well as its formation. From analysis of the ozonesonde and satellite observational data, it was found that ozone concentration inside the Antarctic ozone hole began to increase due to the Brewer-Dobson circulation and the lateral mixing between inside and outside the polar vortex even before its breakup. In addition, the ozone increase was dependent on longitude because of the zonal wavenumber 1 quasi-stationary planetary waves. It is also reported that the ozone enhanced layers frequently observed inside the Antarctic ozone hole mostly originated from the vortex boundary region.

要旨: 第44次日本南極地域観測隊は、南極オゾンホールの形成過程に加え、その消滅過程の時間発展とメカニズムを明らかにすることを目的として、2003年6月~2004年1月にかけて南極昭和基地(69.0°S, 39.6°E)でオゾンゾンデ集中観測を行った。上記オゾンゾンデデータと衛星観測データを用いた解析から、極渦崩壊前からブリューワー・ドブソン循環の下降流と中緯度との大気交換による極渦内のオゾン回復が始まっていることがわかった。また、波数1の準停滞性プラネタリー波の活動により、極渦内のオゾン回復の様相が経度によって大きく異なることがわかった。さらに、オゾンホール内に見られるオゾン増大層の解析から、極渦境界領域起源の空気塊が頻繁にオゾンホール内に流入していたことも明らかとなった。

¹ 情報・システム研究機構国立極地研究所, National Institute of Polar Research, Research Organization of Information and Systems, Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.

² 総合研究大学院大学複合科学研究所極域科学専攻, Department of Polar Science, School of Multidisciplinary Sciences, The Graduate University for Advanced Studies (SOKENDAI), Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.

³ 東京大学大学院理学系研究科, Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033.

* Corresponding author. E-mail: tomikawa@nipr.ac.jp

1. 背景と目的

1980年代に南極オゾンホールが発見されて以来、そのメカニズムを明らかにするための様々な観測と研究がなされ、人為起源のフロンに端を発する化学的オゾン破壊と、オゾン破壊を引き起こす条件を作り出す力学過程の役割が明らかとなった。そして、二次元、または三次元の化学気候モデルや経験的モデルを用いたオゾン破壊の定量的な評価と将来予測が行われなるようになり、南極オゾンホールは2060-2075年に1980年のレベルまで回復するという予測がなされている。一方で、南半球の春から夏にかけて南極オゾンホールがどのように解消するのかはあまり注目されてこなかった。第44次日本南極地域観測隊(以下、第~次隊)は、南極オゾンホールの形成過程に加え、その消滅過程の時間発展とメカニズムを明らかにすることを目的として、南極昭和基地(以下、昭和基地)でのオゾンゾンデ集中観測を行った。本稿では、その観測結果をもとに得られた2件の研究成果を紹介する。

オゾンに代表される化学微量成分の濃度変化は、化学的な生成・消滅と力学的な輸送・混合によって引き起こされる。下部成層圏におけるオゾンの化学的な寿命は数週間以上と長いので、南極オゾンホール内のオゾン濃度の短時間的な増大は力学過程によって引き起こされると考えられている。従来は、極渦の崩壊に伴う中緯度大気との混合により、南極オゾンホール内のオゾン濃度が増大すると考えられていた。しかし、第2章に示すように、第44次隊の観測により、極渦崩壊前からオゾンホール内のオゾン濃度の増大が始まっていることが明らかとなった。

ここで、本稿における輸送と混合の違いを明確にしておく。輸送とは、残差子午面循環等で定義される、一方向の正味の大気運動によって対象とする化学種が運ばれる現象であり、その収束・発散によって化学種の濃度が変化する。それに対して、化学種の濃度差が存在する領域間で、大気交換によって引き起こされる濃度変化を混合と呼ぶ。両者の大きな違いは、輸送が正味の質量輸送を伴うのに対し、大気交換は正味の質量輸送を伴わないこと、そして輸送の効果はどの微量成分に対しても同様に働くが、混合は個々の微量成分の濃度勾配に依存することである。現実大気中では、正味の質量輸送を伴う一方向の循環の上に、砕波や乱流に伴う様々な大気交換過程が重畳^{ちようじょう}している。南極オゾンホール回復時に、これらのメカニズムがそれぞれオゾン回復にどの程度寄与するのかを定量的に明らかにすることが、本研究の目的である。

本稿の構成は以下のとおりである。第2章では、ブリューワー・ドブソン循環によるオゾンの輸送と極渦内外の大気交換によるオゾンの混合が、南極オゾンホール内のオゾン濃度の増大にどれだけ寄与していたかを定量的に評価し、そのメカニズムを調べた結果を報告する。第3章では、南極オゾンホール内で観測されたオゾン増大層を混合過程の一部と捉え、南極オゾンホール内のオゾン増大への影響を定量的に評価した結果を報告する。そ

れぞれの内容の詳細については、Sato *et al.* (2009)、および Tomikawa and Sato (2010) を併せて参照されたい。

2. 気球および衛星観測に基づく南極オゾン層回復過程三次元構造の研究

2.1. はじめに

南極オゾンホールは、人間活動によって作り出されたフロンが原因となってオゾン破壊が起こり、発生する現象である。1980年代始めに、昭和基地、およびハレー基地の観測により独立に発見された (Chubachi, 1984; Farman *et al.*, 1985)。1987年のモントリオール議定書により、フロンの使用規制が行われるようになったが、フロンの寿命は数十年と長いため、オゾンホールはすぐには消滅しないと考えられている (WMO, 2007)。南極の冬は極夜となり、また、南極大陸を取り巻く南極海のおかげでプラネタリー波の発生が北極に比べて少なく、緯度 60 度付近に縁を持つ極渦が発達し、極渦内での成層圏の温度が下がるため、極域固有の雲ができる。春になって太陽光が戻ってくると、この雲の表面での不均一反応により、フロンを原因物質とするオゾン破壊反応が急速に進行し、オゾンホールとなる (Solomon, 1999)。そして、反応物質が消費されつくし、破壊反応は止まり、極渦の崩壊と共に、中低緯度の高濃度なオゾンを含む空気が極域に流れ込んでオゾンホールは消滅すると考えられている。つまり、オゾンホール生成過程は化学過程が重要であり、消滅過程は力学過程が重要となる。しかしながら、消滅過程にかかわる力学は、極渦崩壊だけでなく、常に存在する熱帯から極に向かう非断熱循環 (ブリューワー・ドブソン循環) による物質輸送や、重力波、捕捉波、乱流等の小規模擾乱等の寄与も考えられる。これらの役割は十分に理解されているわけではない。過去最大規模に発達した典型的なオゾンホールが現れた 2003 年に (図 1)、昭和基地で ECC オゾンゾンデによる高高度気球観測 6 回を含む 92 回のオゾン層観測に成功した。また、同時期に ADEOS-II (Advanced Earth Observing Satellite-II) に搭載された、環境省の開発した ILAS-II (Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II) による衛星観測が行われた (Nakajima *et al.*, 2006; Sugita *et al.*, 2006)。これらの高密度な気球および衛星観測データを用いて、南極オゾン層の回復過程に関する力学構造の解析を行った。

2.2. 観測データ

ECC (電気化学式) オゾンゾンデは、オゾンがヨウ化カリウム水溶液と反応して発生する電流を測定し、オゾン濃度を推定する観測器である。ポンプにより空気を吸引し、ヨウ化カリウム溶液の入ったセルに送り込む構造であり、溶液がこぼれないよう、傾けずに打ち上げる必要がある。重さは 1 kg 程度である。通常ゴム気球を用いて打ち上げられ、地上から高度 30 km 程度までの観測が可能である。世界中でオゾン観測に使われている標準的

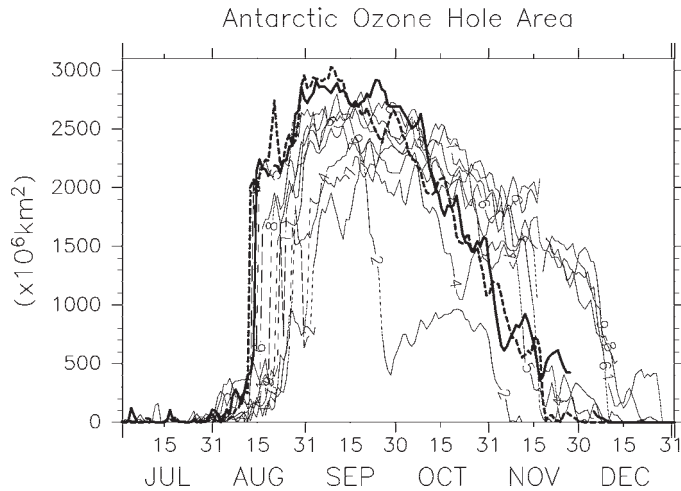


図1 1996-2005年のオゾンホール面積の時間変化 (Sato *et al.*, 2009). 太実線が2003年, 太破線が2000年.

Fig. 1. Time variations in the size of the Antarctic ozone hole from 1996 to 2005 (Sato *et al.*, 2009). Numerals on each curve indicate the last digit of each year (e.g., 6 and 5 indicate the profiles for 1996 and 2005, respectively). The thick solid curve and thick dashed curve show profiles in 2003 and 2000, respectively. Data were provided by the Japan Meteorological Agency.

な測器でもある。昭和基地で行った高高度気球観測では (Yamagami *et al.*, 2004), さらに東北大学を中心に開発された光学式オゾンゾンデ (Murata *et al.*, 2009) による, 紫外線量の高度プロファイルからオゾン量を推定する観測器も同時に打ち上げた。今回は, 下部成層圏を詳細に調べるため, ECC オゾンゾンデのデータのみを用いる (Sato *et al.*, 2009; Tomikawa and Sato, 2010)。ILAS-II 観測は, 掩蔽法により, 極域におけるほぼ同じ緯度円上の14地点の各大気微量成分の鉛直プロファイルを捉えるものである。水平分解能は数百 km であるが, 鉛直分解能は 1 km と気球観測と同程度に優れている。本研究では, オゾンに加え, 下部成層圏では安定したパッシブトレーサーとして N_2O も用いた。すなわち, N_2O の下降速度はそのまま非断熱循環によるラグランジュ的な下降速度と考えることができる (Schoeberl *et al.*, 1995; Kawamoto and Shiotani, 2000; Kawamoto *et al.*, 2004)。

2.3. オゾン層の破壊と回復の季節進行

図2に, 昭和基地データを用いた半月平均のオゾン分圧の高度プロファイルを示す。オゾンホールの極大期である10月上旬までは13-21 kmの高度領域でオゾン層はほぼ同時に破壊されていくが, オゾン回復は21 km以上の上層から始まり, オゾンホールが消滅する12月上旬までオゾン分圧のピーク高度は徐々に下がる様子がわかる。この, 上からの回

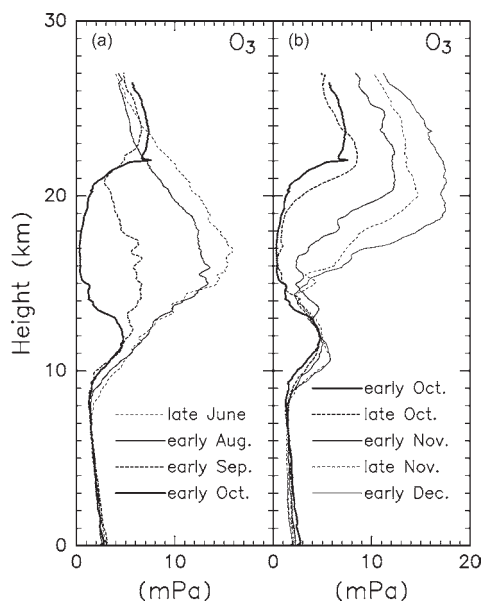


図2 昭和基地における (a) オゾンホール発達期, および (b) 消滅期の ECC オゾンゾンデ観測によるオゾン分圧の鉛直プロファイル (Sato et al., 2009).

Fig. 2. Time variation of vertical profiles of ozone partial pressure averaged over 10 days at Syowa Station in the period of (a) formation and (b) dissipation of the Antarctic ozone hole in 2003 (Sato et al., 2009).

復は一見, 南極での極渦崩壊が上方から進むことと対応すると考えられるが, それだけではない. その回復は, 極渦が安定した下層ではオゾン破壊の進む9月上旬にはすでに始まっていることが見て取れるからである. 図3は, 高度約20 kmに対応する500 Kの温位面での渦位と接線風速の時間等緯度断面図である. 接線風速とは, 渦位の等値線に平行な水平風速の平均値である. 接線風の強さ, および渦位の分布から, 極渦は11月下旬までは存在していたことがわかる. オゾン等大気微量成分の混合比は生成・消滅がない場合, ラグランジュ的に保存される. そこで, オゾン混合比の時間高度断面図を作成した(図4). 8月中旬~11月上旬にかけてオゾン混合比の等値線が高度20 km付近で下がっているのがわかる. たとえば, この研究で着目する9月26日~10月24日(これはILAS-IIの観測期間の最後の1カ月に対応)の, 高度20 km付近のオゾン混合比(1.0 ppmv)の下降速度は 1.1 ± 0.2 km/monthであった. これは主にブリューワー・ドブソン循環による上方からのオゾン輸送を示すと考えられる. しかし, それだけではないことを以下の詳しい解析によって明らかにしていく.

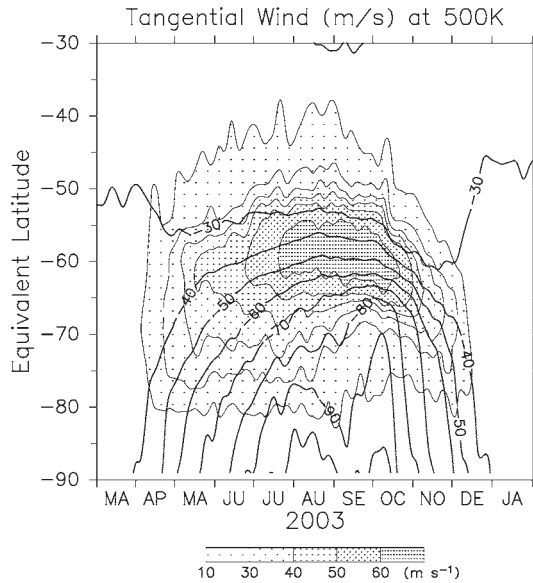


図3 500 K における渦位（等値線）と接線風速（陰影）の時間等緯度断面（Sato *et al.*, 2009）。等値線間隔は 10 PVU ($1 \text{ PVU} \equiv 10^{-6} \text{ K kg}^{-1} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$)。

Fig. 3. A time and equivalent latitude section of the potential vorticity (contours) and tangential wind speeds (hatches) along the potential vorticity contours at 500 K ($z \sim 20 \text{ km}$) (Sato *et al.*, 2009). Contour interval is 10 PVU ($1 \text{ PVU} \equiv 10^{-6} \text{ K kg}^{-1} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$). A low-pass filter with a cutoff length of 10 days was applied.

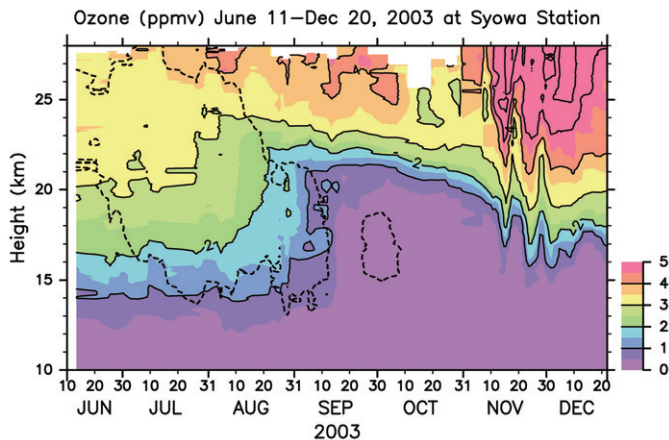


図4 昭和基地での ECC オゾンゾンデ観測によるオゾン混合比の時間高度断面図（Sato *et al.*, 2009）。破線は -80°C の気温の等値線。

Fig. 4. A time-height section of ozone mixing ratio (colors) from ozonesonde observations at Syowa Station in 2003 (Sato *et al.*, 2009). Thick dashed curves show the -80°C isotherms, roughly indicating possible polar stratospheric cloud areas.

2.4. ラグランジュ的下降速度の経度依存性と力学的説明

2.4.1. 下降速度の経度依存性

昭和基地のオゾンゾンデ観測データにみられた、オゾン混合比線の下降速度の経度依存性を調べるために、同時期に観測が行われていた ILAS-II によるオゾン混合比の時間高度断面図を各経度帯に分けて作成したのが図5である。上層からのオゾン回復はいずれの経度帯にも見られるが、その回復速度は経度帯により大きく異なっている。図6aに各経度帯での、オゾンおよび N_2O , CH_4 の等混合比線の下降速度を示す。 N_2O および CH_4 は、この高度では化学的に安定で、大気のラグランジュ的運動を示すトレーサーとして使用することができる。水平の実線は変形オイラー平均 (Transformed Eulerian Mean: TEM) 方程式系を用いて見積もった残差子午面循環での極域での鉛直風である。この図より分かることは、

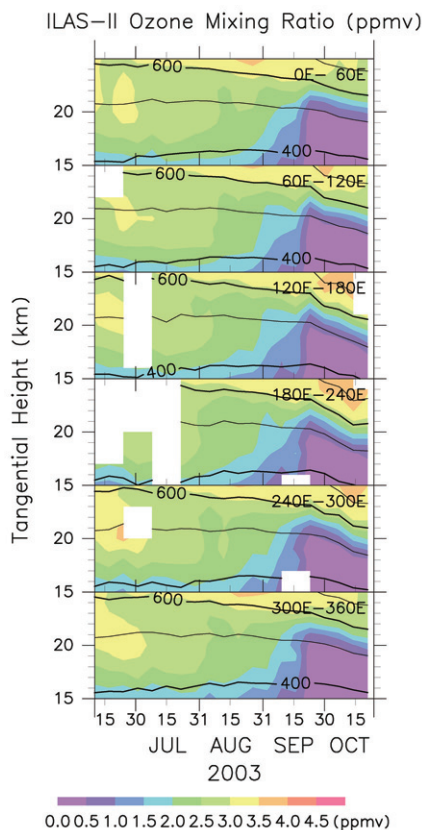


図5 ILAS-II 観測データに基づく各経度帯での極渦内のオゾン混合比(カラー)と温位(等値線)の時間高度断面図 (Sato *et al.*, 2009). 等値線間隔は 100 K.

Fig. 5. Time-height sections of ozone mixing ratio (colors) and potential temperature (contours) inside the polar vortex for six different longitude regions based on ILAS-II observation data in 2003 (Sato *et al.*, 2009). Contour intervals are 100 K.

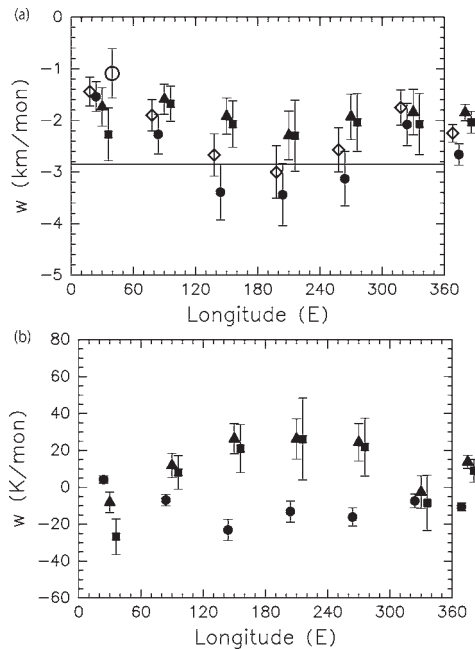


図 6 各経度帯での高度 20 km 付近のラグランジュの下降速度 (Sato *et al.*, 2009). (a) 鉛直座標として高度をとったときの鉛直風, (b) 鉛直座標として温位をとったときの鉛直風. ●がオゾン, ▲が N_2O , ■が CH_4 . (a) の◇は等温位線の下降速度, ○は昭和基地におけるオゾンゾンデ観測から求めたオゾン等混合比線の下降速度.

Fig. 6. Descent rates ($km\ month^{-1}$) in the polar vortex interior estimated using ILAS-II data as a function of longitude around a height of 20 km by taking the geometric height as the vertical coordinate in the period of focus from 26 Sep. to 24 Oct. 2003 (Sato *et al.*, 2009). Negative values show descent. Closed circles, closed triangles, and closed rectangles represent ozone (1.0 ppmv), N_2O (30 ppbv), and CH_4 (0.6 ppmv), respectively. Data points on the right (outside the box) show the zonal means. The horizontal line is the vertical component of diabatic circulation averaged for 70° – $85^{\circ}S$. Open diamonds show the descent rates of the 500 K isentropic surface ($z \sim 20$ km). The marks except for N_2O are shifted slightly rightward or leftward for easier comparison. An open circle indicates the estimate from ozonesonde observations at Syowa Station. Error bars show 70% confidence limits.

- N_2O と CH_4 の下降速度はほぼ一致すること
- 下降速度は大きな波数 1 の経度依存性があること
- オゾンの下降速度は N_2O より大きいこと

である. N_2O , CH_4 の値がブリューワー・ドブソン循環の下降流速を表しているとするれば, オゾンはそれ以上の速度で回復していることになる.

2.4.2. 力学場との対応

下降速度の経度依存性は, この時期に見られるプラネタリー波の増幅に対応する可能性があるため, 力学場の解析を行った. 図 7a, b に 2003 年 9 月 26 日~10 月 24 日の 50 hPa に

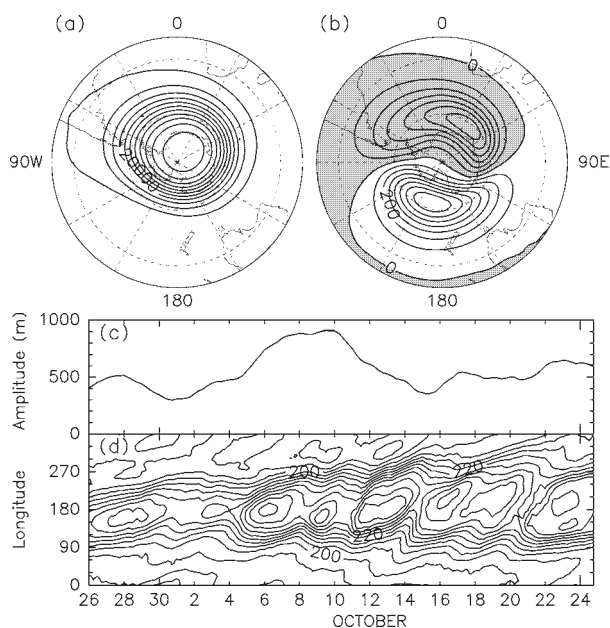


図7 50 hPa 面における (a) ジオポテンシャル高度分布, (b) 東西平均からの偏差分布, (c) 波数1成分の振幅の時系列, (d) 温度の時間経度断面図 (Sato et al., 2009).

Fig. 7. Polar stereographic projection maps of (a) geopotential height and (b) anomaly from its zonal mean at 50 hPa averaged over 26 Sep.-24 Oct. 2003. (c) Time series of amplitude of the zonal wavenumber-1 geopotential height component. (d) A time-longitude section of temperature at 70°S and 50 hPa (Sato et al., 2009). Contour intervals are 200 m in (a), 100 m in (b) and 5 K in (d). The regions with negative values are shaded in (b).

におけるジオポテンシャル高度の期間平均と、東西平均からの偏差を示す。極渦が存在しているが、その中心が30°Eの方向へずれている。これに対応して、波数1の構造が偏差場に見られる。これは準停滞性プラネタリー波と考えられる。波数1成分の高度振幅の時系列を図7cに、温度の時間経度断面図を図7dに示す。振幅は増減を繰り返しながら全体として大きくなっている。また、位相は緩やかに東に動いているのがわかる。このような波が存在する場合、物質面（温位面）も波により変形を受け、時間と共に徐々に変化すると考えられる。図8はその概念図である。非断熱加熱の存在により物質面での温位は時間的に一定ではないが、瞬間的には温位面と一致する。物質は、この波動により変形を受けた物質面上で運動する（小さな矢印）。春から夏への季節進行により物質面は下降し、その下降速度は経度ごとに異なって見えることになる（太い下向き矢印）。実際、等温位線の下降速度を見積もると図6aの◇のようになり、下降速度の経度依存性をうまく説明できる。N₂Oに見られる下降速度の経度依存性はこのように、波動によって変形を受けた物質面の下降で、位相的にも説明が可能である。

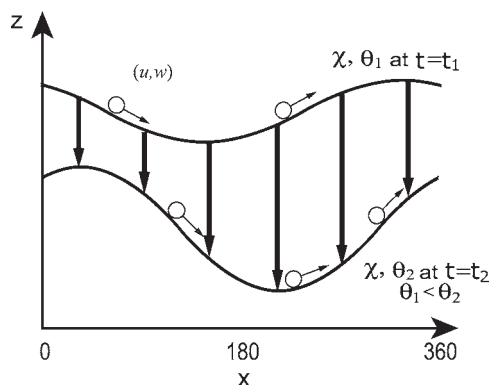


図8 波数1のプラネタリー波の増幅および東向き位相移動に伴う、等温位面(物質面)の変化を表す図(Sato et al., 2009)。時刻 $t=t_1$ に温位 θ_1 の温位面上にあった混合比 χ の物質面が、時刻 $t=t_2$ には温位 θ_2 の温位面上に移動している。

Fig. 8. A schematic illustration of the downward movement of a material surface (two thick curves for $t=t_1$ and $t=t_2$, respectively) modified by an $s=1$ quasi-stationary planetary wave, which is amplified and phase-shifted eastward as observed (Sato et al., 2009). Thick downward arrows indicate the descent rates of the material surface of mixing ratio χ at respective longitudes in a month. Thin arrows with open circles illustrate Lagrangian motion with zonal and vertical velocity components of u and w on a meandering material surface. Potential temperature of the material surface is shown as θ_1 for $t=t_1$ and θ_2 for $t=t_2$. Note that $\theta_2 > \theta_1$ because of the increase in solar heating in spring. See text for details.

2.5. 等温位面での物質濃度の経度依存性

2.5.1. 下降速度としての見え方

それでは、温位を鉛直座標とした時に、物質の下降速度は一定なのだろうか。これを調べてみると必ずしも一定ではないことがわかる。図6bは図6aと同様であるが、縦軸が温位座標系での下降速度を表す。これにも大きな経度依存性が表れていることがわかる。すなわち、 CH_4 と N_2O の等混合比線は温位面に対して上昇しており、その上昇速度は経度210度付近で最大となる。これに対し、オゾンは下降となっており、下降速度は経度150度で最大である。 CH_4 と N_2O はこの高度領域で生成も消滅もしないことから、この経度依存性は力学過程により生じていることが考えられる。

2.5.2. 粒跡線解析

そこで、ILAS-IIで観測された空気塊がどこから来たのかを調べるため、後方粒跡線解析を行った。粒跡線の計算には国立極地研究所粒跡線モデルを用いた(Tomikawa and Sato, 2005)。図9左は、2003年10月6-15日にILAS-II観測点のうち経度0-60度にたどり着いた5日前までの粒跡線を示す。高緯度にとどまっているものがほとんどである。これに対し、図9右に示す180-240度に到達した空気塊の粒跡線は大きく弧を描き、かなり低緯度を通して来たことがわかる。つまり、経度180-240度に到達した空気塊は低緯度のオゾン

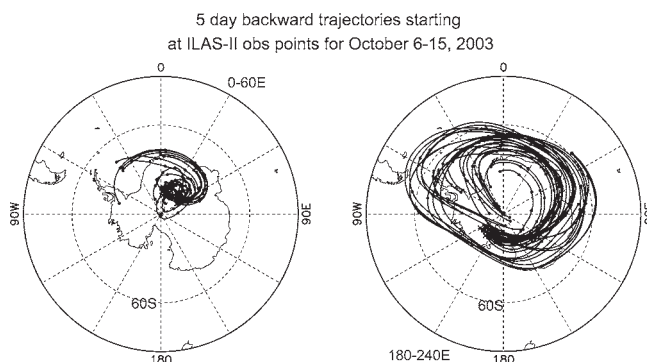


図9 ILAS-IIで観測された地点での空気塊の後方粒跡線 (Sato *et al.*, 2009). 左は経度 0-60 度到達のもの、右は経度 180-240 度到達のもの。

Fig. 9. Backward trajectories (solid curves) over 5 days starting at ILAS-II observational points (cross marks) in the sectors (left) 0° - 60° E and (right) 180° - 240° E over the period 6-15 Oct. 2003 on the 500 K isentropic surface (Sato *et al.*, 2009). Dots are plotted for each day. The star shows the location of Syowa Station.

濃度の高い空気と混合しやすく、経度 0-60 度に到達した空気塊はそうではなかったことがわかる。したがって、経度 180-240 度に到達した空気塊は、ブリューワー・ドブソン循環の下降流により上から高濃度オゾンが輸送される以上に、低緯度との混合により高濃度になっていた可能性がある。これは、この経度帯において、図 6b の温位面に対して下降速度となっていた事実と調和的である。一方で、 N_2O と CH_4 はオゾンと同様に低緯度で高濃度になっているが、鉛直には上層ほど低濃度になっているため、低緯度との混合が大きければ、温位面に相対的な鉛直風は上昇となるはずである。これも図 6b の結果と一致する。以上の結果は、極渦の内側においても物質濃度は一様ではないことを示しており、極渦崩壊以前にも、極渦境界領域を空気塊が通る際に低緯度の空気塊との混合が起きていることを示唆している。

2.5.3. N_2O - O_3 相関の時間変化

図 10 は N_2O と O_3 の相関図である。上から期間 A: 9 月 26 日~10 月 5 日、期間 B: 10 月 6 日~10 月 15 日、期間 C: 10 月 16 日~10 月 24 日の結果であり、各期間とも温位面ごとに色分けしてある。期間 A では、ほぼ一つの曲線に乗るような分布を示している。しかし、期間 B および期間 C ではこの曲線からはずれる分布が見える。ここでは N_2O 、 O_3 とも期間 A の曲線に比べて大きな値をとるようにはずれており、低緯度の空気との混合が考えられる。そして、はずれたところが、経度 210 度を中心とする領域のデータであることも確認されている。以上のことから、ブリューワー・ドブソン循環の下降流を示しているのは、中緯度との混合をしにくい経度 30 度付近、さらには、昭和基地付近の下降流であることがわかる。この経度では、 N_2O 、 CH_4 、 O_3 とも同様の下降速度を示しており、その速度は約

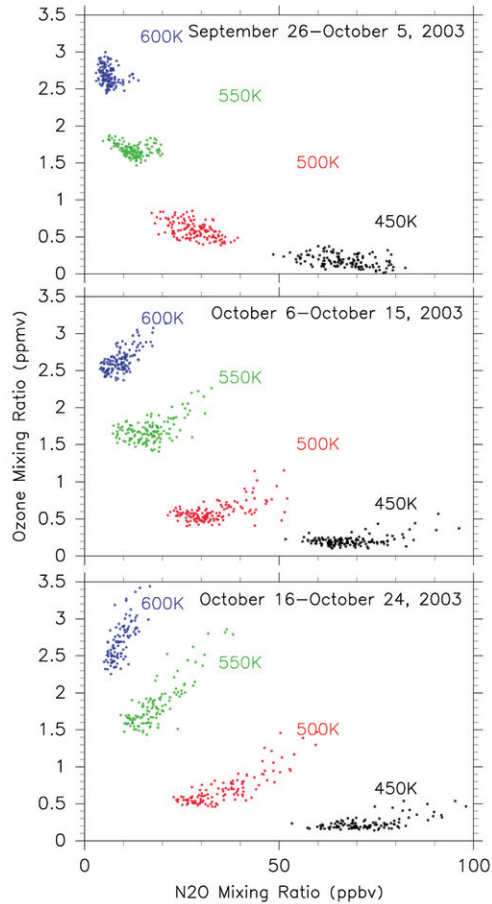


図 10 オゾンと N_2O の混合比の散布図 (Sato *et al.*, 2009)。上から下に時間進行。また各温位面ごとに色分けしてある。

Fig. 10. Scatter diagrams of O_3 and N_2O mixing ratios for 10-day periods (Sato *et al.*, 2009). Different colors show results at isentropic levels of 600, 550, 500, and 450 K.

1.5 km/month であることが確認された。これは、変形オイラー平均方程式系で推定した下降風の約半分速度であることがわかった。

2.6. まとめ

2003 年の昭和基地におけるオゾンゾンデ集中観測データ、ILAS-II のオゾン、 N_2O 、 CH_4 観測データを用いて、オゾンの時間高度変化を調べたところ、極渦崩壊による大規模な中緯度との混合が起きる以前の期間においても、極渦内においてオゾンは回復していることがわかった。高度 20 km 付近に着目して、その回復の経度依存性を詳しく調べた。また、解析は ILAS-II 観測が行われた最後の 1 カ月間に注目した。高度を鉛直座標にとったとき

のオゾンの等混合比線の下降速度を調べてみると、大きな経度依存性が見られた。昭和基地での値は ILAS-II とオゾンゾンデ観測とで一致していた。下降速度の経度依存性は、解析した期間に卓越していた波数 1 の準停滞性プラネタリー波の振幅の増幅と、位相の緩やかな移動に伴う、季節変化する温位面の変調により説明できることがわかった。さらに、トレーサーと見なせる N_2O 、 CH_4 でも同様に解析したところ、下降速度にはオゾンと同様、経度依存性が見られるが、その大きさはオゾンより小さいことがわかった。さらに興味深いのは、この経度依存性が温位を鉛直座標にとった場合でも見られることである。すなわち、経度 210 度を中心に、オゾンは温位面に対して下降、 N_2O 、 CH_4 は上昇という結果であった。これは、極渦の内側で、物質は温位面に対して一様に分布しているのではなく、不均一をもたらす力学過程が働いていることを意味している。そこで、経度ごとに後方粒跡線解析を行った。すると、経度 30 度付近の空気塊は、高緯度を主に通ってきているのに対し、経度 210 度付近の空気塊は大きく低緯度を回る経路をとっていることがわかった。この結果は、経度 210 度付近の空気塊はオゾン濃度、 N_2O 濃度、 CH_4 濃度が高い低緯度の空気と混合している可能性があることを示しており、温位座標をとったときの下降速度の符号や経度依存性とも調和的である。すなわち、極渦崩壊以前でも、流れ場がプラネタリー波により変形を受けることで、極渦内の空気塊の経路が経度によって大きく異なり、低緯度空気と混合しやすい領域とそうでない領域があることが明らかとなった。このことから、 N_2O とオゾンの散布図の時間変化の特徴も説明できる。

3. 南極オゾンホール内オゾン増大層の解析

3.1. はじめに

下部成層圏におけるオゾンは、数週間かそれ以上の光化学寿命を有する（オゾンホール発生時の極渦内を除く）ため、下部成層圏で観測されるオゾン層状構造は、一般に力学的な作用で形成される。また、オゾンは対流圏界面や極渦縁辺といった境界領域で大きな濃度勾配を持つため、オゾン層状構造は境界領域近傍に形成されやすい。過去の研究では、ロスビー波の活動が活発な冬から春にかけての極渦境界領域や、傾圧波活動が活発な亜熱帯ジェット近傍で、オゾン層状構造の出現頻度が高くなることが報告されている (Dobson, 1973; Reid and Vaughan, 1991)。

オゾン層状構造を形成する力学過程として、一般に次の 2 つのメカニズムが考えられている。1 つは、(慣性) 重力波によるオゾンの濃度面の変形 (Teitelbaum *et al.*, 1994, 1996; Eckermann *et al.*, 1998)、もう 1 つは、ロスビー波と背景風の鉛直シアの複合的な効果 (差分移流) による、異なる起源を持つ空気塊の重ね合わせである (Newman and Schoeberl, 1995; Tomikawa *et al.*, 2002)。重力波による形成の場合、オゾン層状構造の鉛直・時間スケールは重力波の鉛直波長 (~数 km)・周期 (~1 日) と一致する。差分移流による形成の

場合、オゾン層状構造の鉛直スケールはロスビー波の鉛直波長よりもずっと小さくなり、しばしば重力波起源のオゾン層状構造の鉛直スケールと同程度になる。一方で、差分移流で形成されるオゾン層状構造の時間スケールは、構造自体が数日程度の時間スケールを持つだけでなく、その形成にはロスビー波の周期（～数日）程度の時間を要する (Tomikawa *et al.*, 2002)。そのため、重力波起源のオゾン層状構造は背景風の鉛直シアの効果をあまり受けないが、差分移流で形成されるオゾン層状構造は、背景風の鉛直シアに強く影響される (Haynes and Anglade, 1997)。また、差分移流で形成されるオゾン層状構造は、重力波起源のオゾン層状構造よりも大きなオゾン濃度偏差を持つことが多い (Reid *et al.*, 1994; Gibson-Wilde *et al.*, 1997; Tomikawa *et al.*, 2002)。

南極オゾンホール発生時、南半球極渦内の高度 14-20 km 付近のオゾンはほぼ完全に破壊される (e.g., Solomon, 1999)。一方で、南極オゾンホール内の下部成層圏にしばしばオゾン増大層が現れることが報告されている (Moustaoui *et al.*, 2003)。1997, 1998 年に Neumayer 基地 (南緯 70.7 度, 西経 8.2 度) で観測されたオゾン層状構造は、2 km 程度の鉛直スケールを有し、ロスビー波砕波に伴って極渦境界領域の大気が極渦内部に輸送されることで形成されていた (Moustaoui *et al.*, 2003)。このような極渦内部への大気の流れは、オゾン濃度の高い気塊をオゾンホール内に供給するだけでなく、オゾン破壊反応を抑制する NO_x を供給し、オゾンホール内のオゾン破壊物質の濃度を希釈する効果があるため、オゾンホールの回復に寄与する可能性がある (Edouard *et al.*, 1996; Konopka *et al.*, 2003)。

本論文では、2003 年の南極オゾンホール回復期に、昭和基地、および Neumayer 基地で観測されたオゾンホール内のオゾン増大層について、その成因を調べ、オゾンホール回復への寄与を議論する。

3.2. データと手法

3.2.1. データ

第 44 次隊による南極地域観測事業、および南極におけるオゾンゾンデネットワーク (Match) 観測の一環として、2003 年 6 月～2004 年 1 月にかけて、昭和基地 (南緯 69 度, 東経 39.6 度) において週 2-3 回、計 92 回の ECC オゾンゾンデ観測が行われた (Sato *et al.*, 2009)。本研究では、南極オゾンホールの面積が最大となった 2003 年 9 月 24 日以降の 1 カ月間、計 10 回のオゾンゾンデデータを解析に用いた。併せて、World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre (WOUDC: <http://www.woudc.org/>) で取得した、2003 年 9 月 26 日～10 月 24 日までの Neumayer 基地 (南緯 70.7 度, 西経 8.2 度) における計 12 回のオゾンゾンデデータを用いた。使用したオゾンゾンデデータの鉛直分解能は、約 100 m (昭和基地) と約 50 m (Neumayer 基地) で、本研究で対象とする鉛直スケール 500 m 以上の層状構造の解析には十分である。

後方粒跡線，および渦位等の各種物理量の計算には，1日4回(0000, 0600, 1200, 1800 UTC)の欧州中期予報センター(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts: ECMWF)客観解析データを用いた。水平分解能は2.5度×2.5度，鉛直には1000-1 hPaの23層で，下部成層圏における鉛直分解能は約5 kmである。

3.2.2. オゾン増大層の検出

本研究では，以下の条件によりオゾン増大層を定義する(図11参照)。

- 高度13-22 kmに存在するオゾン分圧の極大で，上下500 m以内によりオゾン分圧の高い高度はない。
- 上下それぞれ500 m以内のオゾン分圧の極小よりも，極大におけるオゾン分圧が0.5 mPa以上高い場合，その層をオゾン増大層と定義。
- オゾン増大分(図11の領域A)のバックグラウンド(図11の領域B)に対する比が最大になるようにオゾン増大層の上端と下端を定義。
- オゾン増大層の上端が22 km以上，あるいは下端が13 km以下の場合，オゾン増大層とはみなさない。

3.2.3. 等価緯度と極渦境界領域の定義

渦位は，断熱，および摩擦無しの流れにおいてラグランジュ的に保存される。また，渦位分布は下部成層圏においてオゾン混合比の分布と高い正相関を示すため，しばしばオゾンのトレーサーとして用いられる。オゾンホール内では両者の相関関係は崩れるが，オゾンホール外起源の空気塊の指標として本研究では渦位を用いる。

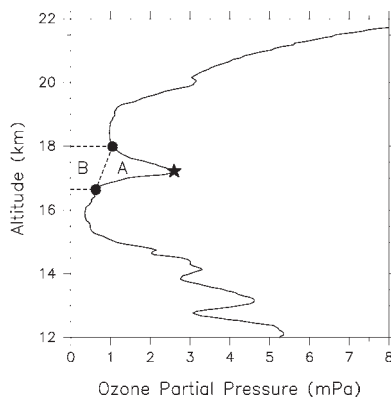


図11 2003年10月16日の昭和基地におけるオゾン分圧の高度分布(Tomikawa and Sato, 2010)。★はオゾン増大層内のオゾン極大，●はオゾン増大層の上端と下端。A, Bはオゾン増大層におけるオゾン増大分とバックグラウンド。

Fig. 11. Vertical profile of ozone partial pressure at Syowa Station on 16 October 2003. A star represents an ozone maximum corresponding to the ozone enhanced layer. Circles are the top and bottom of the ozone enhanced layer. Regions A and B represent the ozone enhancement and the background ozone, respectively.

さらに、渦位の等値線に対する相対的な座標として等価緯度座標を導入する (McIntyre and Palmer, 1984; Butchart and Remsberg, 1986)。この時、極渦境界の位置は渦位の等価緯度勾配の極大で、極渦境界領域の内側、および外側の境界は渦位の等価緯度に関する 2 階微分の極大、極小でそれぞれ定義する (Nash *et al.*, 1996)。極渦境界領域の内側の境界よりも極側の領域を極渦内部と呼ぶ。

図 12 は、解析期間中の 435 K の温位面における渦位(等値線)、および渦位勾配(カラー)の時間等価緯度断面である。解析期間を通して、渦位勾配の大きな領域が南緯 60 度の等価緯度付近にあり、極渦境界領域の内側(青実線)、および外側(赤実線)の境界が、それぞれ -36 PVU、および -18 PVU の渦位にほぼ対応することがわかる。また、オゾンゾンデ観測が行われたときの昭和基地(○)、および Neumayer 基地(×)は常に極渦内部に位置していた。380 K、および 500 K 付近の温位面においてオゾン増大層が観測されたときも、それぞれの温位面上で昭和基地、および Neumayer 基地は極渦内部に位置していた(図省略)。

3.2.4. Reverse Domain Filling (RDF) 法

渦位の鉛直分解能は、計算に用いる客観解析データの鉛直分解能(~ 5 km)に依存する。本研究では、より高い鉛直分解能(< 1 km)を持つ渦位分布を得るため、Reverse Domain Filling (RDF) 法で再構成した渦位分布を使用する (Sutton *et al.*, 1994; Tomikawa *et al.*, 2002)。RDF 法では、高分解能渦位分布を得たい領域に配置した空気塊の後方粒跡線を計

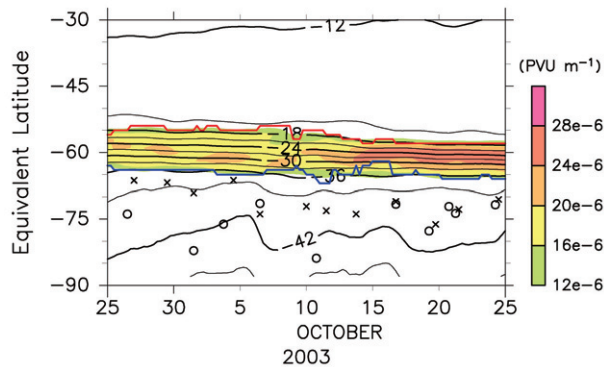


図 12 435 K の温位面における渦位 (等値線)、および渦位勾配 (カラー) の時間等価緯度断面 (Tomikawa and Sato, 2010)。青・赤実線は、それぞれ渦位の等価緯度に対する 2 階微分の極大・極小で定義した極渦境界領域の内側・外側の境界。○、×は、オゾンゾンデ観測が行われたときの昭和基地、および Neumayer 基地の等価緯度。

Fig. 12. Time-equivalent latitude section of potential vorticity (contours) and its gradient with respect to equivalent latitude (colors) at 435 K. Blue and red lines represent inner and outer edges of the vortex boundary region. Circles and crosses represent the equivalent latitudes of Syowa and Neumayer Stations, respectively, at the times of observations with (red) and without (black) ozone enhanced layers around 435 K. Contour intervals are 3 PVU.

算し、7日前の位置における渦位を現在の位置における渦位とみなす。この際、下部成層圏では渦位が1-2週間程度ラグランジュ的に保存されること、断熱的な差分移流によって渦位偏差の空間スケールが時間と共に指数関数的に減少することを仮定している。後方粒跡線の計算には、国立極地研究所粒跡線モデルを用いた (Tomikawa and Sato, 2005)。

3.3. 結果

3.3.1. オゾン増大層の特徴

図13は、昭和基地、および Neumayer 基地における全オゾンゾンデ観測で得られたオゾン分圧の高度分布である。3.2.2. の定義に基づき、昭和基地で10観測中7例、Neumayer 基地で12観測中10例のオゾン増大層が検出された (図13の★)。

このようなオゾン増大層の形成メカニズムの1つとして、重力波の寄与が考えられる。重力波によって形成されたオゾン層状構造の場合、同じ鉛直スケールを持ち、位相のずれた構造が、気温、および水平風の鉛直分布に現れる (Teitelbaum *et al.*, 1994, 1996; Eckermann *et al.*, 1998)。しかし、オゾンゾンデ観測で得られた気温、東西風、南北風の鉛直分布には、オゾン増大層に対応する構造が見られないことから (図省略)、これらのオゾン増大層は重力波起源ではないと考えられる。

昭和基地、および Neumayer 基地で観測された計17例のオゾン増大層について、その特徴を表1にまとめた。オゾン増大層は、温位 380 K 付近、435 K 付近、および 500 K 付近で観測されることが多い。観測されたオゾン増大層は、全て高度幅 2.1 km 未満の薄い構造をしていた。また、オゾン極大の混合比は 380 K、および 435 K 付近では2例を除いて 0.3-0.5 ppmv、500 K 付近では 0.3-1.2 ppmv であった。ILAS-II の観測によれば (Nakajima *et al.*, 2006)、本解析期間中の極渦内部のオゾン混合比は、ほぼ 0.2 ppmv 以下である。したがって、大部分のオゾン増大層は極渦内部を起源とする空気塊では作り出すことができない。また、極渦外に位置する Lauder (南緯 45 度) における本解析期間中のオゾンゾンデデータでは、380 K、435 K、および 500 K におけるオゾン混合比は、それぞれ 0.5 ppmv、1 ppmv、および 3 ppmv 以上であることから、極渦外からの流入の可能性も低い。したがって、オゾン増大層を構成する空気塊は、大部分が極渦境界領域に由来すると考えられる。

3.3.2. オゾン増大層の起源

オゾン増大層の起源を明らかにするため、オゾン極大が観測された高度に近い温位面 (435 K または 380 K) における ECMWF 客観解析データの渦位分布、および RDF 法で再構成した高分解能渦位分布を図14に示す。ただし、ここではオゾン増大層の鉛直幅が 1 km 以上の場合についてのみ示している。RDF 法で再構成した渦位分布の格子間隔は、緯度 0.5 度、経度 1 度である。左段の ECMWF 客観解析データの渦位分布を見ると、いずれの場合も昭和基地、および Neumayer 基地は青色で示した極渦内部 (435 K では -36 PVU 以下、

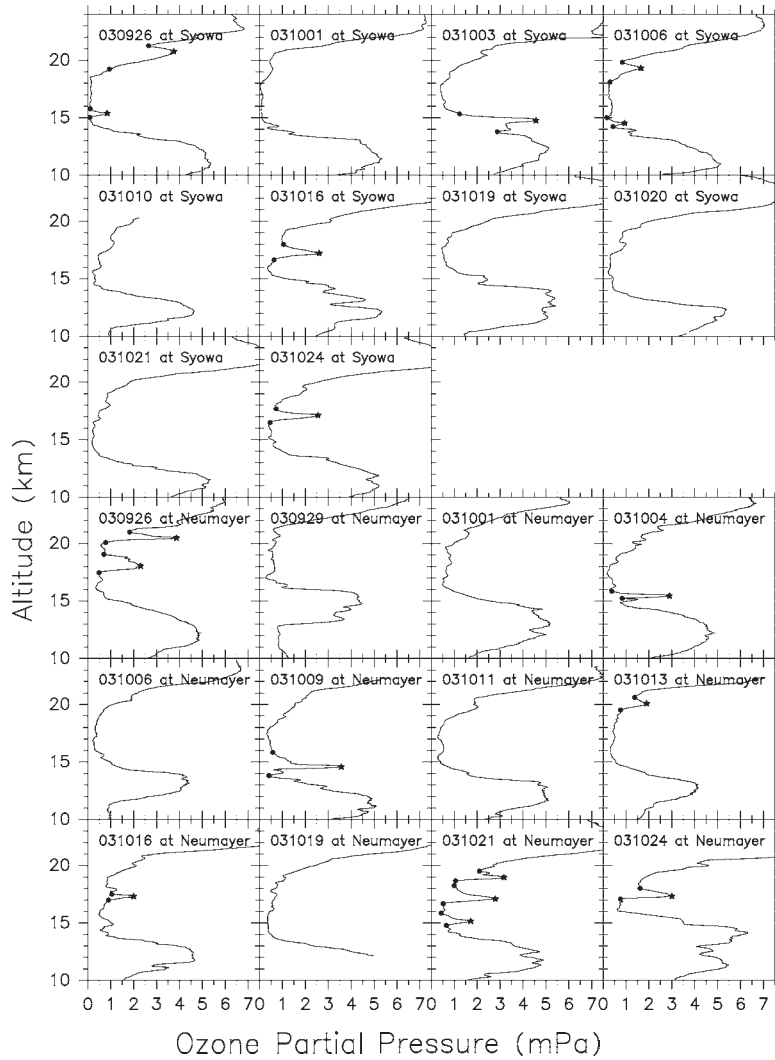


図 13 昭和基地, および Neumayer 基地におけるオゾン分圧の高度分布 (Tomikawa and Sato, 2010). ★はオゾン増大層内のオゾン極大, ●はオゾン増大層の上端と下端。

Fig. 13. Vertical profiles of ozone partial pressure obtained by ozonesonde observations at Syowa and Neumayer Stations. Stars represent ozone maxima corresponding to the ozone enhanced layers. Circles are tops and bottoms of the ozone enhanced layers.

380 K では -15 PVU 以下)に位置している。それに対して, 右段の高分解能渦位分布を見ると, 図 14a-b, d-e では極渦境界領域の渦位を示す緑色のフィラメント状構造が基地近傍に達している。図 14c, および図 14g においても, 極渦境界領域から基地近傍に伸びるフィラメント状の構造が見てとれる。以上の結果から, 昭和基地, および Neumayer 基地で観測された下部成層圏のオゾン増大層の大部分は, 極渦境界領域に起源を持つと考えられる。

表 1 昭和基地(S), および Neumayer 基地(N)で観測されたオゾン増大層の特徴 (Tomikawa and Sato, 2010). コラム量は, オゾン増大層内のオゾンコラム増大量 (図 11 の A に相当). DU は Dobson Unit. オゾン全量は基地に最も近い位置における Earth Probe/Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) の観測値.

Table 1. Characteristics of the ozone enhanced layers observed at Syowa (S) and Neumayer (N) Stations. z is height, P pressure, θ potential temperature, PO_3 ozone partial pressure, χO_3 ozone mixing ratio, δz and $\delta \theta$ thicknesses in z and θ , respectively, δO_3 ozone column enhancement in the ozone enhanced layer, and DU a Dobson Unit ($1 \text{ DU} \equiv 2.687 \times 10^{16}$ molecules of ozone per cm^2). Total ozone is a value at the location nearest to Syowa or Neumayer Station obtained by Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) onboard the Earth Probe.

Site	Date	Ozone maximum					Ozone enhanced layer			Total O ₃ (DU)
		z (km)	P (hPa)	θ (K)	PO_3 (mPa)	χO_3 (ppmv)	δz (km)	$\delta \theta$ (K)	δO_3 (DU)	
S	9/26	15.4	85.6	389	0.84	0.098	0.75	12	0.34	137
S	9/26	20.8	32.9	521	3.75	1.140	2.03	61	2.44	137
S	10/3	14.8	99.1	374	4.57	0.461	1.55	26	2.65	161
S	10/6	14.5	101	374	0.94	0.093	0.78	15	0.24	134
S	10/6	19.3	43.5	476	1.65	0.379	1.72	43	0.97	134
S	10/16	17.2	65.5	431	2.60	0.397	1.35	34	1.36	173
S	10/24	17.1	67.4	437	2.55	0.378	1.19	24	1.29	152
N	9/26	18.1	55.1	438	2.30	0.417	1.58	41	2.44	134
N	9/26	20.5	35.5	496	3.87	1.090	0.90	30	1.37	134
N	10/4	15.5	87.2	385	2.90	0.333	0.60	9	0.90	141
N	10/9	14.6	98.7	375	3.57	0.362	2.02	33	2.36	138
N	10/13	20.1	39.6	502	1.90	0.480	1.09	33	0.62	139
N	10/16	17.3	63.6	434	2.00	0.314	0.52	12	0.40	143
N	10/21	15.2	93.7	390	1.72	0.184	1.06	21	0.68	153
N	10/21	17.2	66.7	435	2.79	0.418	1.57	37	1.72	153
N	10/21	19.0	49.0	482	3.17	0.647	0.84	28	0.97	153
N	10/24	17.3	68.0	439	3.00	0.441	0.92	27	1.31	186
Mean		17.3	67.8	434	2.60	0.449	1.20	29	1.30	147

これは, Moustouai *et al.* (2003) の結果とも整合的である. 一方で, 極渦外 (435 K では -18 PVU 以上, 380 K では -11 PVU 以上) からの大気の流れは全く見られない.

昭和基地, または Neumayer 基地までの 7 日間の後方粒跡線を見ると, 極夜ジェットによる東向き移流が卓越する一方で, 必ずしも極を中心とする同心円状の軌道にはなっていない. 通常, 波数 1 のロスビー波が卓越する場合, 軌道は極を離れ, 波数 2 のロスビー波が卓越する場合, 極を中心とする楕円に近い軌道となる.

図 15 は, 南緯 70 度, 70 hPa における東西波数 1-3 のロスビー波の振幅の時間変化である. 本解析期間中, 波数 1 の準停滞性ロスビー波が常に存在し, 特に 10 月 9 日頃に大きな振幅を持っていた. この波数 1 の準停滞性ロスビー波の活動の結果, 極渦の中心はほとんど常に東経 30 度側にシフトしていた. 波数 1 のロスビー波の振幅が大きいほど極渦の移動の度合いも大きくなるため, 波数 1 の振幅が大きい 10 月 9 日頃の粒跡線 (図 14e) は, 移

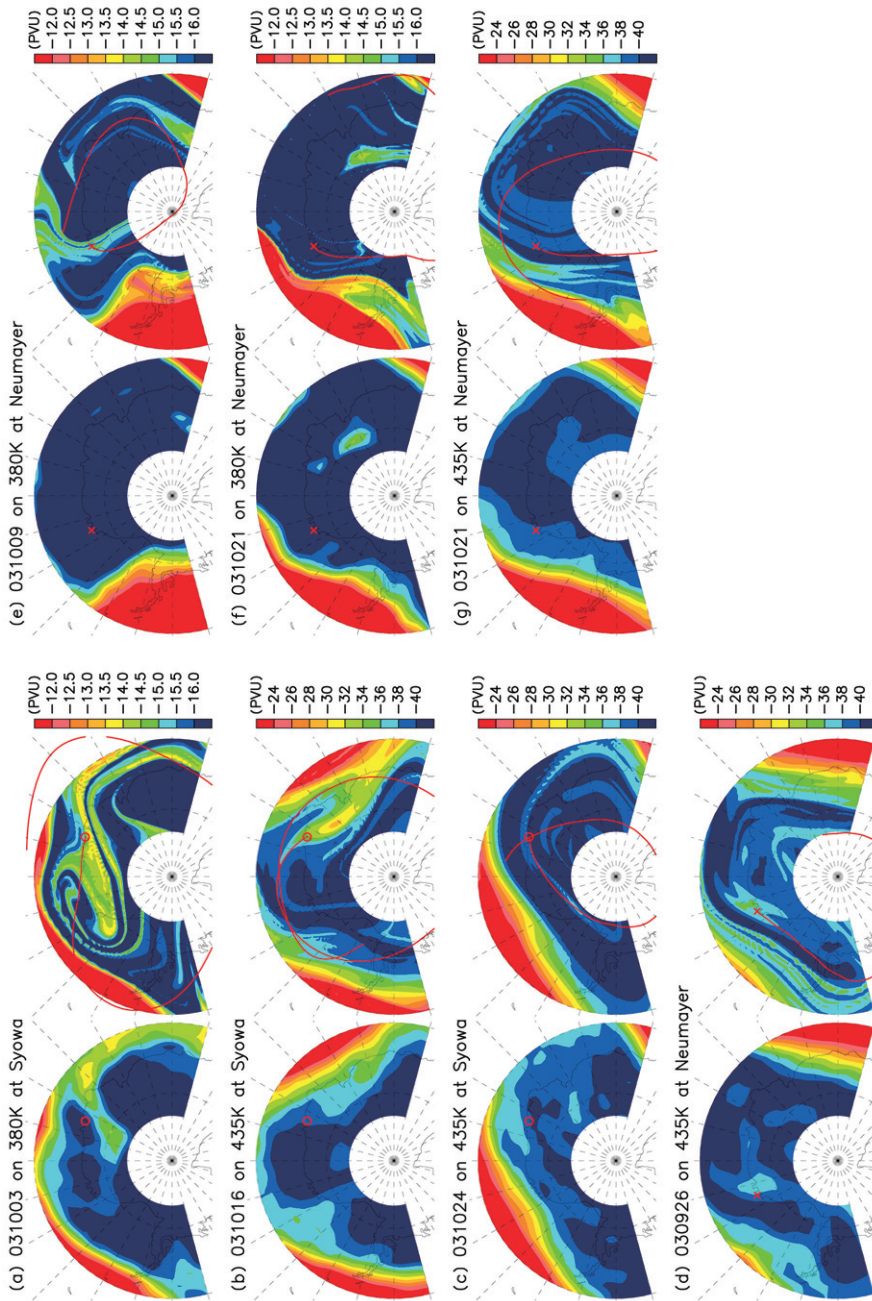


図 14 昭和基地 (a-c), または Neumayer 基地 (d-g) でオゾン増大層が観測されたときの 435 K (b-d, g), または 380 K (a, e, f) の温位面における ECMWF 客観解析データの渦位分布 (左段), および RDF 法で再構成した高分解能渦位分布 (右段) (Tomikawa and Sato, 2010). ○は昭和基地, ×は Neumayer 基地, ×は Neumayer 基地に達する 7 日間の後方粒跡線.

Fig. 14. Polar projection maps of potential vorticity at 435 (b-d, g) and 380 K (a, e-f) computed from the ECMWF data (left) and reconstructed by the RDF method (right) when the ozone enhanced layers were observed at Syowa (a-c) or Neumayer (d-g) Station, respectively. Red circles and crosses represent the locations of Syowa and Neumayer Station, respectively. Red solid lines show 7-day backward trajectories from Syowa or Neumayer Station.

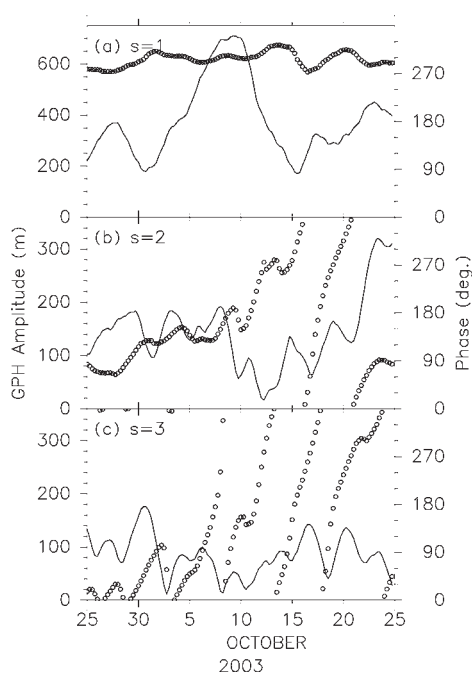


図 15 南緯 70 度, 70 hPa におけるジオポテンシャル高度の東西波数 (a) 1, (b) 2, および (c) 3 成分の振幅 (実線), および位相 (○) の時間変化 (Tomikawa and Sato, 2010).
 Fig. 15. Time variations of geopotential height amplitude (lines) and phase (circles) of zonal wavenumber (a) 1, (b) 2, and (c) 3 at 70°S and 70 hPa.

動した極渦の中心を回る小円を描いている。一方で, 10月20日以降には波数2のロスビー波が大きな振幅を持っており, その前後の粒跡線(図14c, f-g)は, 極を中心とした楕円に近い軌道となっている。つまり, 渦位分布に見られるフィラメント構造がロスビー波の空間スケールよりもずっと小さなスケールを持つのに対して, フィラメント内の空気塊の運動はロスビー波に支配されていたことがわかる。

また, このような水平スケールの小さな構造は, 背景風の鉛直シアによって薄層化しやすい(Haynes and Anglade, 1997)。図16は, 2003年10月6日~9日にかけてのNeumayer基地の緯度におけるRDF法で再構成した渦位の経度温位断面である。ただし, 渦位の高度依存性を消すために, 渦位に温位の関数を掛けた修正渦位を用いている(Lait, 1994)。図16を見ると, オゾン増大層に対応すると思われるフィラメント構造が極渦境界領域から剝離し, 東向きに移流されながら, 時間とともに構造が傾いて薄層化していることがわかる。

3.4. 議論

本章では, オゾン増大層によるオゾン回復への寄与を定量的に議論する。表1で示したように, オゾン増大層が含むコラムオゾン量は平均で1.3 DUであった。また, 極渦内部で

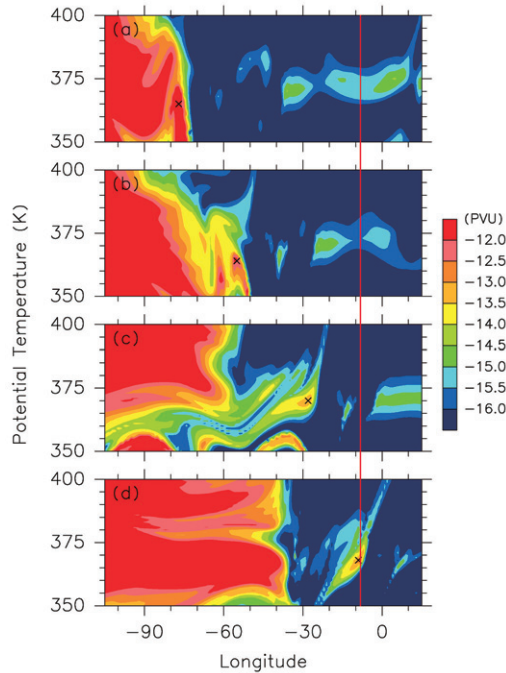


図 16 2003 年 10 月 6 日 (a), 7 日 (b), 8 日 (c), および 9 日 (d) の南緯 70.7 度における RDF 法で再構成した修正渦位の経度温位断面 (Tomikawa and Sato, 2010). 赤線が Neumayer 基地の経度, × がフィラメントの位置を表す.

Fig. 16. Longitude-potential temperature sections of modified PV reconstructed by the RDF method along 70.7°S on (a) 6, (b) 7, (c) 8, and (d) 9 October 2003. Crosses represent the locations of the PV filaments. The red line represents the longitude of Neumayer Station.

オゾン増大層が存在する領域は, 昭和基地, および Neumayer 基地での出現頻度から, 約 80% 程度と考えられる. オゾン増大層の寿命が 2 週間程度とすると (cf. Reid *et al.*, 1998), オゾン全量の回復に対する寄与は

$$1.3 \text{ DU} \times \frac{80}{100} \times (0.5 \text{ month})^{-1} \approx 2.1 \text{ DU/month},$$

となる. 一方, 同期間中の極渦内で平均したオゾン全量の回復量は 30-50 DU と見積もられている (Huck *et al.*, 2007). したがって, オゾン増大層による極渦境界領域からのオゾンの流入は, オゾンホールへの回復にはあまり寄与しない. 一方で, オゾン増大層の寄与は, 南極オゾンホール極大時の同高度領域のバックグラウンドのオゾンコラム量 (3-6 DU) の約半分に相当する.

先行研究の Sato *et al.* (2009) では, 本研究と同じ期間の ILAS-II データとオゾンゾンデデータを用いて, 同期間中の極渦内外の大気の混合が長寿命化学物質の等値線の見かけの下降速度 0.37 km/month を作り出すことを示した. これは, 高度 14-21 km において, 約

15 DU/month のオゾンが極渦内に流入したことに相当する (Tomikawa and Sato, 2010)。このオゾン流入量は本研究で見積もられたオゾン増大層によるオゾン流入よりも 7 倍程度大きい。したがって、極渦内へのオゾン流入はオゾン増大層とは異なる形で行われている可能性がある。

3.5. まとめ

2003 年の南極オゾンホール回復時に、極渦内の下部成層圏においてしばしばオゾン増大層が観測された。そこで、本研究では南極オゾンホールの面積が最大となった 2003 年 9 月 24 日以降の 1 カ月間の昭和基地および Neumayer 基地におけるオゾンゾンデ観測データを用いて、オゾン増大層の成因とオゾンホールへの影響を調べた。同期間中に昭和基地、および Neumayer 基地で行われた計 22 回のオゾンゾンデ観測中、高度 14-21 km の領域に 17 例 (1 回の観測で最大 3 例) のオゾン増大層が検出された。観測された 17 例のオゾン増大層は、厚さが全て 2.1 km 以下で、大部分が極渦境界領域起源と考えられるオゾン混合比を持っていた。RDF (Reverse Domain Filling) 解析の結果から、非定常なプラネタリー波の活動に伴って極渦境界領域起源の空気塊がフィラメントの形で極渦内部領域に流入し、極夜ジェットの鉛直シアによって薄層化していたことがわかった。一方で、極渦外部から極渦内部への大気の流れは全く見られなかった。また、これらのオゾン増大層によるオゾンホール回復への寄与は、オゾンホールの面積が極大となった後の 1 カ月間で 2.1 DU 程度であった。この値は、同期間中のオゾンホール内のオゾン全量の回復量 (30-50 DU) に比べると小さいが、オゾン増大層が無い場合の高度 14-21 km のオゾンコラム量の約半分に相当する。一方で、先行研究との比較により、極渦外からのオゾン流入はオゾン増大層とは異なる形で行われている可能性があることがわかった。

文 献

- Butchart, N. and Remsburg, E.E. (1986): The area of the stratospheric polar vortex as a diagnostic for tracer transport on an isentropic surface. *J. Atmos. Sci.*, **43**, 1319-1339.
- Chubachi, S. (1984): Preliminary result of ozone observations at Syowa Station from February 1982 to January 1983. *Mem. Natl Inst. Polar Res., Spec. Issue*, **34**, 13-19.
- Dobson, G.M.B. (1973): The laminated structure of the ozone in the atmosphere. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, **99**, 599-607.
- Eckermann, S.T., Gibson-Wilde, D.E. and Bacmeister, J.T. (1998): Gravity wave perturbations of minor constituents: a parcel advection methodology. *J. Atmos. Sci.*, **55**, 3521-3539.
- Edouard, S., Legras, B., Lefèvre, F. and Eymard, R. (1996): The effect of small-scale inhomogeneities on ozone depletion in the Arctic. *Nature*, **384**, 444-447.
- Farman, J.C., Gardiner, B.G. and Shanklin, J.D. (1985): Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClOx/NOx interaction. *Nature*, **315**, 207-210.
- Gibson-Wilde, D.E., Vincent, R.A., Souprayen, C., Godin, S., Hertzog, A. and Eckermann, S.D. (1997): Dual lidar observations of mesoscale fluctuations of ozone and horizontal winds. *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 1627-1630.

- Haynes, P. and Anglade, J. (1997): The vertical-scale cascade in atmospheric tracers due to large-scale differential advection. *J. Atmos. Sci.*, **54**, 1121–1136.
- Huck, P.E., Tilmes, S., Bodeker, G.E., Randel, W.J., McDonald, A.J. and Nakajima, H. (2007): An improved measure of ozone depletion in the Antarctic stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **112**, D11104, doi:10.1029/2006JD007860.
- Kawamoto, N. and Shiotani, M. (2000): Interannual variability of the vertical descent rate in the Antarctic polar vortex. *J. Geophys. Res.*, **105**, 11935–11946.
- Kawamoto, N., Kanzawa, H. and Shiotani, M. (2004): Time variations of descent in the Antarctic vortex during the early winter of 1997. *J. Geophys. Res.*, **109**, D18309, doi:10.1029/2004JD004650.
- Konopka, P., Groöß, J.-U. Günther, G., McKenna, D.S., Elkins, J.W., Fahey, D. and Popp, P. (2003): Weak impact of mixing on chlorine deactivation during SOLVE/THESEO 2000: lagrangian modeling (CLAMS) versus ER-2 in situ observations. *J. Geophys. Res.*, **108**, doi:10.1029/2001JD000876.
- Lait, L.R. (1994): An alternative form for potential vorticity. *J. Atmos. Sci.*, **51**, 1754–1759.
- McIntyre, M.E. and T.N. Palmer (1984): The ‘surf zone’ in the stratosphere. *J. Atmos. Terr. Phys.*, **46**, 825–849.
- Moustaoui, M., Teitelbaum, H. and Valero, F.P.J. (2003): Ozone laminae inside the Antarctic vortex produced by poleward filaments. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, **129**, 3121–3136.
- Murata, I., Sato, K., Okano, S. and Tomikawa, Y. (2009): Measurements of stratospheric ozone with a balloon-borne optical ozone sensor. *Int. J. Remote Sens.*, **30**, 3961–3966.
- Nakajima, H., Sugita, T., Yokota, T., Ishigaki, T., Mogi, Y., Araki, N., Waragai, K., Kimura, N., Iwazawa, T., Kuze, A., Tani, J., Kawasaki, H., Horikawa, M., Togami, T., Uemura, N., Kobayashi, H., Sasano, Y. (2006): Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) on board the ADEOS-II satellite. *J. Geophys. Res.*, **111**, D11501, doi:10.1029/2005JD006334.
- Nash, E.R., Newman, P.A., Rosenfield, J.E. and Schoeberl, M.R. (1996): An objective determination of the polar vortex using Ertel’s potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, **101**, 9471–9478.
- Newman, P.A. and Schoeberl, M.R. (1995): A reinterpretation of the data from the NASA stratosphere-troposphere exchange project. *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 2501–2504.
- Reid, S.J. and Vaughan, G. (1991): Lamination in ozone profiles in the lower stratosphere. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, **117**, 825–844.
- Reid, S.J., Vaughan, G., Mitchell, N.J., Prichard, I.T., Smit, H.J., Jorgensen, T.S., Varotsos, C. and de Backer, H. (1994): Distribution of ozone laminae during EASOE and the possible influence of inertia-gravity waves. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 1479–1482.
- Reid, S.J., Rex, M., von der Gathen, P., Fløisand, I., Stordal, F., Carver, G.D., Beck, A., Reimer, E., Krüger-Carstensen, R., de Haan, L.L., Braathen, G., Dorokhov, V., Fast, H., Kyrö, E., Gil, M., Lityńska, Z., Molyneux, M., Murphy, G., O’Connor, F., Ravagnani, F., Varotsos, C., Wenger, J. and Zerefos, C. (1998): A study of ozone laminae using diabatic trajectories, contour advection and photochemical trajectory model simulations. *J. Atmos. Chem.*, **30**, 187–207.
- Sato, K., Tomikawa, Y., Hashida, G., Yamanouchi, T., Nakajima, H. and Sugita, T. (2009): Longitudinally dependent ozone increase in the Antarctic polar vortex revealed by balloon and satellite observations. *J. Atmos. Sci.*, **66**, 1807–1820.
- Schoeberl, M.R., Liu, M.Z. and Rosenfield, J.E. (1995): An analysis of the Antarctic Halogen Occultation Experiment trace gas observations. *J. Geophys. Res.*, **100**, 5159–5172.
- Solomon, S. (1999): Stratospheric ozone depletion: a review of concepts and history. *Rev. Geophys.*, **37**, 275–316.
- Sugita, T., Nakajima, H., Yokota, T., Kanzawa, H., Gernandt, H., Herber, A., von der Gathen, P., König-Langlo, G., Sato, K., Dorokhov, V., Yushkov, V.A., Murayama, Y., Yamamori, M., Godin-Beekmann, S., Goutail, F., Roscoe, H.K., Deshler, T., Yela, M., Taalas, P., Kyrö, E., Oltmans, S.J., Johnson, B.J., Allaart, M., Lityńska, Z., Klekociuk, A., Andersen, S.B., Braathen, G.O., de Backer, H., Randall, C.E., Bevilacqua, R.M., Taha, G., Thomason, L.W., Irie, H.,

- Ejiri, M.K., Saitoh, N., Tanaka, T., Terao, Y., Kobayashi, H. and Sasano, Y. (2006): Ozone profiles in the high-latitude stratosphere and lower mesosphere measured by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS)-II: comparison with other satellite sensors and ozonesondes. *J. Geophys. Res.*, **111**, D11S02, doi:10.1029/2005JD006439.
- Sutton, R.T., Maclean, H., Swinbank, R., O'Neill, A. and Taylor, F.W. (1994): High-resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using Lagrangian trajectory calculations. *J. Atmos. Sci.*, **51**, 2995–3005.
- Teitelbaum, H., Ovarlez, J., Kelder, H. and Lott, F. (1994): Some observations of gravity-wave-induced structure in ozone and water vapour during EASOE. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 1483–1486.
- Teitelbaum, H., Moustouli, M., Ovarlez, J. and H. Kelder (1996): The role of atmospheric waves in the laminated structure of ozone profiles at high latitude. *Tellus*, **A48**, 442–445.
- Tomikawa, Y. and Sato, K. (2005): Design of the NIPR trajectory model. *Polar Meteorol. Glaciol.*, **19**, 120–137.
- Tomikawa, Y. and Sato, K. (2010): Ozone enhanced layers in the 2003 Antarctic ozone hole. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **88**, 1–14.
- Tomikawa, Y., Sato, K., Kita, K., Fujiwara, M., Yamamori, M. and Sano, T. (2002): Formation of an ozone lamina due to differential advection revealed by intensive observations. *J. Geophys. Res.*, **107**, doi:10.1029/2001JD000386.
- World Meteorological Organization (WMO) (2007): Scientific assessment of ozone depletion: 2006. Geneva, 37 p. (*Global Ozone Res., Monit. Proj. Rep.*; **50**).
- Yamagami, T., Saito, Y., Matsuzaka, Y., Namiki, M., Toriumi, M., Yokota, T., Hirose, H. and Matsushima, K. (2004): Development of the highest altitude balloon. *Adv. Space Res.*, **33**, 1653–1659.