

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：11302

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340136

研究課題名(和文)成層圏大気年代のグローバル観測

研究課題名(英文)Global observation of the stratospheric air age

研究代表者

菅原 敏 (SUGAWARA, Satoshi)

宮城教育大学・教育学部・教授

研究者番号：80282151

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,900,000円、(間接経費) 4,770,000円

研究成果の概要(和文)：日本、赤道太平洋東部、南極昭和基地において実施された成層圏大気のカイオサンプリング実験によって採集された大気サンプルを用いて、二酸化炭素、メタン、一酸化二窒素、六フッ化硫黄のそれぞれの濃度と、各種同位体比の測定を行い、二酸化炭素と六フッ化硫黄の濃度から成層圏大気の平均年代を推定した。その結果、平均年代の緯度分布が明らかになったことに加えて、日本上空では平均0.04年/年の割合で平均年代が増加傾向にあることが判った。同時に測定された重力分離の大きさと数値モデルを組み合わせることで、長期的に成層圏循環が弱まっており、平均年代は増加する傾向であることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：Collections of stratospheric air samples have been carried out over Japan, the eastern equatorial Pacific, and Syowa station, Antarctica, using a balloon-borne cryogenic sampler. The air samples were analyzed for various gas concentrations, such as CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, and SF<sub>6</sub>, and their isotopes. The CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub> concentrations increased from year to year at all heights in the stratosphere. The CO<sub>2</sub>-age and SF<sub>6</sub>-age of stratospheric air were estimated by comparing the observed concentrations with the CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub> variations at Mauna Loa. The average change rate of the mean age in the mid-stratosphere was 0.04 (±0.01) years/year. Recent model studies suggest that the global warming should have strengthened the Brewer-Dobson circulation by an enhanced mass flux from the tropical troposphere into the stratosphere, which should result in decreasing of the mean age. However, our result shows no decreasing trend of the mean age in the mid-stratosphere for the last 25 years.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・気象・海洋物理・陸水学

キーワード：成層圏過程 平均年代

## 1. 研究開始当初の背景

大気中における二酸化炭素などの温室効果気体の増加に伴い、地球温暖化が急激に進行しつつある。この地球温暖化が気候システムに与える影響は、海水面の上昇や、雪氷の減少など、多岐にわたり、人類にとって極めて深刻な問題となっている (IPCC 第4次報告書)。危惧されている様々な気候変動の中でも、海水面の上昇などのように観測事実として既に明らかにされている現象がある一方、起こり得る可能性が予想されながら、未だに確固たる観測事実によって実証されていないものがある。その未解決課題の一つが、温暖化に伴う成層圏の変化である。なかでも、成層圏における物質輸送を支配している子午面循環 (ブリュウ・ドブソン循環) が、どのように応答するのかという問題が、極めて重要と考えられている。その理由は、成層圏における物質循環が、地球温暖化とオゾン層破壊の両者に対して大きなインパクトを持つためである。すなわち、二酸化炭素に次いで重要な温室効果気体であるメタンと一酸化二窒素は、対流圏から成層圏に流入し、成層圏内の大気の運動によって輸送されながら光化学反応によって消滅することが知られている。したがって、成層圏の子午面循環の盛衰が、これらの温室効果気体を大気中から除去する速度をコントロールしている。また、フロンに代表されるオゾン破壊物質も未だに大気中に残存しており、成層圏における子午面循環がそれらの除去速度を決めている。これまでに破壊が進んだ成層圏オゾンが将来回復する時期は、成層圏の子午面循環の盛衰によって左右されると考えられている (Butchart and Scaife, 2001, Nature)。このように、地球温暖化とオゾン層破壊が成層圏の大気循環の変化を通じて密接に関わっており、両者の将来予測のためには、成層圏における子午面循環の変化を解明することが必要となる。成層圏の子午面循環の強さを調べるために最も適した方法は、微量成分の濃度から成層圏大気の平均年代を推定することである (Waugh and Hall, 2002, Rev. Geophys.)。成層圏の平均的な子午面循環は、対流活動が盛んな熱帯域において対流圏から成層圏へ空気が持ち上げられることに始まり、その後中緯度域を極側へと徐々に輸送され、高緯度域において対流圏へ下降することで終わる。したがって、熱帯域において対流圏から成層圏へ流入した時点の時刻を起点とした経過時間を空気塊の平均年代と定義すると、低緯度側では一般にその空気の平均年代は「若く」なり、高緯度になるにしたがって平均年代は「古く」なる。対流圏内において濃度が単調に変化する微量成分に着目すると、成層圏の空気塊を分析し、その濃度を知ることによって、その空気の平均年代を推定することができる。この目的に合致した微量成分は、二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) と六フッ化硫黄 ( $\text{SF}_6$ ) である。この原理に基づいて、成層圏大気の

平均年代を推定する研究が幾つか行われてきた。我々の研究を含む日本・ドイツ・アメリカの気球観測データから、成層圏大気の平均年代が長期的に変化していないことが報告された (Engel et al., 2009, Nature Geosci.)。この結果は、近年の化学気候モデル (CCM) を用いた理論的研究の結果と食い違っており (Austin and Li, 2006, GRL)、論争となっている。この相反する研究結果について、その原因を明らかにし、平均年代の変化について結論を導くためには、第一に、気球観測の拡充と、第二に、平均年代データの高精度化が不可欠である。前者については、これまでの気球観測のほとんどが中高緯度に集中しており、成層圏への大気の流入域である熱帯での観測が決定的に不足している。熱帯成層圏の平均年代が、どの程度の「若さ」であり、どのような高度分布を示すのか、未だ明らかにされていない。また後者では、これまでの年代推定誤差が 1.0 年以上であるものが多く、平均年代の長期変化を検出するための精度が十分ではない。これらの問題を解決するためには、新たに熱帯域での成層圏大気の採取実験を実施すると同時に、高精度の濃度分析システムを新たに構築することが不可欠である。

## 2. 研究の目的

成層圏は、一酸化二窒素やメタンなどの地球温暖化物質の消滅源であると同時に、フロンに代表されるオゾン破壊物質の消滅源の働きをも持っている。そのため、成層圏の子午面循環 (ブリュウ・ドブソン循環) の長期的な変動は、地球温暖化とオゾン層回復過程の両者に対して大きなインパクトを有する。しかし、成層圏の子午面循環が地球温暖化の進行に対してどのように応答しているのかについては、前述のとおり、相反する研究結果が報告されており、未だに解決していない。本研究では、国内と海外で実施する気球実験によって観測される六フッ化硫黄と二酸化炭素のそれぞれの濃度を用いて、対流圏から成層圏に流入した空気の「古さ」、すなわち成層圏大気の平均年代を、広域的に、かつ高い精度で決定し、成層圏大気の子午面循環の長期変動を明らかにする。本研究によって明らかにしようとするのは、成層圏大気の平均年代の広域的な分布と長期変化である。そのためには、これまで観測の空白域であった熱帯域において、新たな気球実験を実施し、同時に、過去に得られている成層圏大気試料をも高精度で分析する必要がある。申請者はこれまで 10 年以上にわたって気球実験に携わり、国内のみならず、北極や南極における気球実験においても実績を重ねてきた。これらの実験で得られている過去の試料は、その一部が長期保管されている。したがって、本研究によって構築する高精度分析システムを用いることで、約 20 年間にわたる平均年代データを得ることができる。これら

の全てのデータを、新たな熱帯域での観測結果と統合することによって、成層圏大気の平均年代の広域分布と長期変化、すなわち成層圏子午面循環の挙動を明らかにすることが本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

熱帯における成層圏大気の微量成分の分析によって平均年代を推定するために、新たな気球実験を実施した。成層圏大気採取は、気球搭載型小型クライオジェニックサンプラーを大気球によって放球し、気球の上昇時に実施した。この観測システムは、連携研究者・研究協力者である国立極地研究所・森本、JAXA・宇宙科学研究本部・本田らが開発したものであり、これまでに国内だけでなく、南極においても成層圏大気採取の実績がある。気球実験は、海洋研究開発機構、およびJAXA・宇宙科学研究本部大気球実験グループと協力し、学術研究船・白鳳丸や、海洋地球研究船「みらい」の研究航海に合わせて実施した。小型クライオジェニックサンプラーは、圧縮ネオンガスによるジュール・トムソン効果により寒冷を発生し、極低温において大気を固化して採集する。本研究では、研究船の航海中に計4機のサンプラーを放球し、いくつかの異なる高度における大気を採取した。サンプラーはガス導入部、バッテリー、コントロールユニット、試料容器、空圧作動バルブ、気密容器などから構成されている。試料空気の採取は、対流圏界面直上のおよそ20 km から最高到達高度30 km 付近までを、高度幅数 km ごとに区切り、合計4つの高度において実施した。それぞれの高度において、試料容器に取り付けられた電磁弁をコントロールし、各高度で最低でも5~8 L (0、1気圧)の試料空気を採取した。新たな気球実験により成層圏大気サンプルを採集する一方で、成層圏大気試料の六フッ化硫黄濃度分析に特化した新しいシステムを開発した。検出器には六フッ化硫黄に優れた感度を持つ電子捕獲検出器(ECD)を採用し、ガスクロマトグラフ法によって六フッ化硫黄を分離した。これまで大気中の六フッ化硫黄濃度の分析を行っている主な研究機関では、1台のECDガスクロマトグラフを用いて、一酸化二窒素と六フッ化硫黄を同時に分析している。しかし、多成分分析や、低濃度から高濃度までの広い濃度レンジの分析のために、六フッ化硫黄に最適なガスクロマトグラフの条件を犠牲にしており、精度を悪化させる要因になっている。本研究では、成層圏大気平均年代に完全にターゲットを絞り込み、キャリアガスの種類や分離カラムの長さ、流量、オープン温度など、様々な分析条件を六フッ化硫黄に最適になるように調整した。過去の低濃度の気球サンプルについても高精度を保つために、低濃度専用のガスクロマトグラフシステムを開発した。本研究において分析の対象となる試料は三つ

に分類され、本研究期間に行われた気球実験によって得られる熱帯成層圏でのサンプル、南極において採取されたサンプル、長期保存されている過去の日本上空成層圏大気サンプルである。本研究によって得られる最新のサンプルについては、その一部を東北大学、国立極地研究所、東京工業大学などに分配し、六フッ化硫黄濃度以外の微量成分について詳細な分析をした。また、国立極地研究所を中心として実施されている南極昭和基地での気球実験でも成層圏大気が採取されている。これらの実験で得られたサンプルの一部を使用して、二酸化炭素および六フッ化硫黄濃度の分析を行った。これにより、日本付近の北半球中緯度だけでなく、南極上空における成層圏大気平均年代の変化を調べた。北極、日本上空(北半球中緯度)、熱帯、南極の4カ所の観測結果を総合し、成層圏平均年代のグローバルな分布を明らかにした。さらに、平均年代の長期変化を検出するために、過去から保存されているおよそ20年間をカバーする日本上空の成層圏大気サンプルの分析を試みた。ただし、開発した六フッ化硫黄の分析システムでは、1ppt以下の低濃度サンプルの分析精度が十分ではなかったため、過去に分析されている二酸化炭素濃度から平均年代の推定を行った。六フッ化硫黄濃度から平均年代を推定するためには、対流圏内の長期にわたる直接観測データが必要になる。しかし、対流圏内の系統的なモニタリング観測ですら、十数年程度のレコードしかないため、より過去に遡って対流圏内の濃度を決定する必要がある。そこで、極域氷床のフィルン層から採取した過去の空気を分析し、過去30年間の対流圏における六フッ化硫黄濃度の変化を再現した。HallとPlumbら(JGR,1994)の年代分布関数の理論に基づき、対流圏の濃度変化が成層圏大気にどのように伝播するかを数値計算によって求め、成層圏において観測された六フッ化硫黄濃度に対応した平均年代を求めた。年代分布関数を用いた平均年代の決定手法は、二酸化炭素濃度についても同様に適用可能である。さらに、最近の我々の研究結果により、六フッ化硫黄と二酸化炭素の両者について、濃度や平均年代に対する重力分離の効果が無視できないことが明らかになっている(Ishidoya et al., 2008, GRL)。そのため、大気主成分である酸素と窒素のそれぞれの同位体比の鉛直分布から、重力分離効果の大きさを求め、六フッ化硫黄と二酸化炭素の両濃度から決定された平均年代を、それぞれの分子量を考慮して補正した。

### 4. 研究成果

成層圏大気試料の六フッ化硫黄濃度分析に特化した新しい分析システムを開発した。成層圏大気平均年代推定にターゲットを絞り込み、キャリアガスの種類や分離カラムの長さ、流量、オープン温度など、様々な分析

条件を六フッ化硫黄に最適になるように調整した。特に、キャピラリカラムを採用した結果、これまで12分間程度の測定時間が必要であった1回の分析時間を、精度を維持したまま4分間の短時間で分析できるシステムを構築した。熱帯における成層圏大気微量成分の分析によって平均年代を推定するために、2012年2月に新たな気球実験を実施し、熱帯成層圏大気の採集に成功した。気球実験は、海洋研究開発機構、およびJAXA・宇宙科学研究本部大気球実験グループと協力し、学術研究船・白鳳丸の研究航海に合わせて実施された。成層圏大気採取は、気球搭載型小型クライオジェニックサンプラーを、赤道上を航行する観測船から大気球によって放球することによって行われ、4回の気球実験によって高度20~30kmまでの異なる高度において大気採取を実施した。実験後に国内に輸送された大気試料を用いて、二酸化炭素、メタン、一酸化二窒素、六フッ化硫黄のそれぞれの濃度と、二酸化炭素とメタンの炭素同位体比の測定がそれぞれ行われた。六フッ化硫黄濃度から推定された平均年代は、高度20km付近では1.3年、高度26km付近では2.5年程度であった。これまでの北半球中緯度での観測結果と比較すると、平均年代は予想通りに小さい値を示しており、熱帯域から上昇した大気が対流圏界面を通過して成層圏へ上昇していることを反映していると考えられる。

高精度六フッ化硫黄濃度分析システムにクライオトラップをもつサンプル導入ラインを追加し、低濃度サンプルを高精度で計測できるように改良した。また、低濃度サンプルの場合にもこれまでと同様に高速分析を実現するために、ガスクロマトグラフシステムのキャリヤガスを、従来の窒素ガスから超高純度ヘリウムガスに変更した。これにより、これまでの標準的な六フッ化硫黄濃度分析では、おおよそ15分程度の分析時間を要するが、本研究のシステムでは4分程度まで短縮することに成功した。ただし、繰り返し精度はおおよそ0.2 pptvとなり、1980年代の成層圏における六フッ化硫黄濃度の分析にとっては十分な精度を確保するには至らなかった。新たに相互検定用標準ガスを整備し、既に実績のある東北大からプライマリ標準ガスを借用し、正確な濃度の検定を実施した。国立極地研究所と東北大学との共同研究により、初年度末に実施された熱帯成層圏大気気球実験により、貴重なサンプルの取得に成功している。このサンプルを用いて六フッ化硫黄および二酸化炭素の濃度を分析し、濃度データから熱帯成層圏の平均年代を推定した。その結果、高度20~30kmの熱帯成層圏大気の年代の鉛直プロファイルが明らかになった。特に高度29kmにおける平均年代は3.2年と推定され、これまでに明らかになっている北半球中緯度での年代に比べて著しく小さいことが判った。日本、熱帯に

続いて、南極昭和基地において気球実験を実施し、4つの異なる高度における成層圏大気の採取に成功した。それぞれ、標準状態で7~12Lの成層圏大気試料を採取することができた。濃度分析の結果、二酸化炭素濃度と六フッ化硫黄濃度は、1998年、2004年、2008年にそれぞれ実施された南極での気球実験の結果から予想される濃度増加傾向に合致した値を示しており、高精度の平均年代を推定できる良質なサンプルであることが確認された。これらの最新の気球観測データから平均年代を決定するためには、対応する対流圏データが不可欠である。信頼できる熱帯対流圏の濃度データが公表され次第、平均年代の推定を実施する予定である。二酸化炭素や六フッ化硫黄の濃度から得られる平均年代に加えて、同じサンプルの大気主成分質量分析から得られる重力分離データが重要であることが明らかとなった。これまでの研究では、単に平均年代の長期的な推移のみが論じられてきたが、平均年代の時空間的な変動の大きさのために、長期変化傾向の統計的な有意性が疑問視されていた。本研究では、数値モデルを利用して成層圏循環の盛衰によって平均年代と重力分離がどのような相関関係を持つかを理論的に検証し、日本上空の気球観測の結果を照らし合わせたところ、長期的に成層圏循環が弱まっており、平均年代は増加する傾向であることが示唆された。これらの成果は国内・海外の関連学会で発表するとともに、国際科学雑誌の論文としても発表された (Ishidoya et al., 2013, ACP)。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計14件)

石戸谷重之、菅原敏、森本真司、青木周司、中澤高浩、豊田栄、本田秀之、橋田元、村山昌平、山内恭、大気球観測により初めて捉えられた成層圏大気主成分の重力分離とその中層大気循環研究への応用、宇宙航空研究開発機構研究開発報告2013年度、JAXA-RR-13、2013、71-86、査読あり、

<http://repository.tksc.jaxa.jp/help/press.html>

S. Ishidoya, S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa, H. Honda, and S. Murayama; "Gravitational separation in the stratosphere - a new indicator of atmospheric circulation," Atmos. Chem. Phys., 13, pp. 8787-8796, [www.atmos-chem-phys.net/13/8787/2013/](http://www.atmos-chem-phys.net/13/8787/2013/), doi:10.5194/acp-13-8787-2013 (2013) 査読あり

菅原敏、青木周司、本田秀之、稲飯洋一、森本真司、他10名、白鳳丸船上

気球実験により観測された赤道上空成層圏の微量成分と平均年代の推定、2012、平成24年度大気球シンポジウム集録、isas12-sbs、査読なし、  
[http://www.isas.jaxa.jp/j/researchers/symp/2012/1016\\_balloon\\_proc.shtml](http://www.isas.jaxa.jp/j/researchers/symp/2012/1016_balloon_proc.shtml)

菅原 敏, 青木 周司, 中澤 高清, 本田 秀之, 森本 真司, 他4名、2010年クライオサンプリング実験の成果と成層圏メタン濃度の長期トレンド、2011、平成23年度大気球シンポジウム集録、isas11-sbs、査読なし、  
[http://www.isas.jaxa.jp/j/researchers/symp/2011/1006\\_balloon\\_proc.shtml](http://www.isas.jaxa.jp/j/researchers/symp/2011/1006_balloon_proc.shtml)

〔学会発表〕(計8件)

Sugawara, S., S. Aoki, S. Morimoto, T. Nakazawa, S. Ishidoya, S. Toyoda, H. Honda, Vertical CO<sub>2</sub> gradient as an indicator of stratospheric circulation, Dec. 10, 2013, San Francisco, AGU fall meeting.

Sugawara, S., S. Aoki, T. Nakazawa, S. Ishidoya, S. Morimoto, S. Toyoda, H. Honda, Long-term trends of the stratospheric CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub> observed by balloon-borne cryogenic sampler, April 2, 2013, Kyoto, WCRP regional workshop on SPARC.

Sugawara, S., S. Ishidoya, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa, H. Honda, S. Murayama, Numerical simulation of the gravitational separation in the stratosphere, Dec. 3, 2012, San Francisco, AGU fall meeting.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菅原 敏 (SUGAWARA, Satoshi)  
宮城教育大学・教育学部・教授  
研究者番号：80282151

(2) 研究分担者

( )

研究者番号：

(3) 連携研究者

青木 周司 (AOKI, Shuji)  
東北大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：00183129

森本 真司 (MORIMOTO, Shinji)  
東北大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：30270424