

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 4月30日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22540457

研究課題名（和文）スペクトル取得型オゾンゾンデによるオゾン、二酸化窒素、二酸化塩素、一酸化臭素観測

研究課題名（英文）Observation of ozone, nitrogen dioxide, chlorine dioxide, and bromine monoxide by the optical ozonesonde with spectrometer

研究代表者

村田 功 (MURATA ISAO)

東北大学・大学院環境科学研究科・准教授

研究者番号：00291245

研究成果の概要（和文）：

新たに開発した、二酸化窒素、OCIO, BrO も測定可能な観測器を用いてオゾンと二酸化窒素の実証観測を行うことを目的としたが、2010年度の観測直前に新型観測器のデータ書き出しが停止する問題が発生し、2011年度には原因をほぼ解明し、回路等の改修を行った。2012年度に再度観測準備を進めたが気象条件により観測を断念した。研究期間内に気球観測は行えなかったため、二酸化窒素については地上で日出時と南中時に測定したデータを用いて模擬的に解析を行い、成層圏コラム量は導出出来そうであることを確認した。

研究成果の概要（英文）：

The purpose of this research was the validation of our new instrument that can measure NO₂, OCIO, and BrO with O₃. We prepared for the balloon experiment in 2010 but quitted due to the trouble of CPU in the instrument. We checked and improved the instrument in 2011 and again prepared for the balloon experiment in 2012 but no balloon launched in this year due to the unusual meteorological condition. Therefore, test measurements were performed at ground on the sunrise and culmination. We confirmed that at least the stratospheric column of NO₂ can be derived.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・超高層物理学

キーワード：地球惑星上層大気、オゾン、気球観測

1. 研究開始当初の背景

南極オゾンホールが発見以来オゾン層破壊は広く一般の関心を集める問題となり、またオゾン減少により紫外線強度が増加すると皮膚ガンの危険性が増すなど人類及び生命への影響が大きいことから地球規模の環境問題として注目されている。人類の多くが

住む中緯度においてもオゾンの減少傾向が観測されていたが、オゾン破壊の主な原因であるフロンを撤廃したことによるオゾン量の復活傾向が見られ始めたという報告もあり、'Ozone Recovery'が研究者の間で話題となっている。一方で、オゾンホールで重要な役割を果たす ClOOCl の光解離が従来考

えられていたより遅いという論文[Pope et al., 2007]が契機となり、オゾンホール反応系が再注目されていた。von Hobe et al. [2007]によればオゾンホール反応系の塩素化合物の化学反応には観測と実験や理論との不一致があり、我々の理解はまだ不十分である。

大規模なオゾン破壊は主に成層圏のエアロゾルの表面における不均一反応が元になって起こるが、上部成層圏においては大気中の酸素原子濃度が大きくなるため気相中の反応でもオゾン破壊が起こる。このような観点から我々の研究室では上部成層圏のオゾン直接観測する光学オゾンゾンデを開発し、宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所によって開発された高度40km以上まで観測可能な薄型高高度気球と組み合わせて三陸におけるオゾン高度分布観測を1994年から行ってきた。また、2004年からは超薄型気球を用いて高度50km前後までの観測を数回行っており、上部成層圏のオゾンを直接測定可能な唯一の観測である。

しかし、オゾン破壊問題を研究する上ではオゾンのみでなくオゾン破壊物質である塩素化合物や窒素酸化物を同時に測定することが非常に重要である。そこで、我々は平成19-21年度に採択された基盤研究C「スペクトル取得型光学オゾンゾンデの開発」により二酸化窒素、OCIO, BrOも測定可能な小型分光計を搭載した新型観測器を開発した。ただし、ちょうど宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所の大気球観測所が三陸から北海道大樹町に移設されその立ち上げ時期に当たったことから実際の観測を行うまでには至らなかった。また、日本のような中緯度では二酸化窒素は観測可能だが、OCIOやBrOは極域のオゾン破壊進行時のみ増加すると考えられるため中緯度では通常観測は不可能である。そこで、本研究ではまず大樹町での観測によりオゾンと二酸化窒素の同時観測を実証した上で、再注目されているオゾンホール反応系の解明に資するデータ取得を目的として南極昭和基地あるいは北極ニューオースン基地での観測を目指していた。

Reference:

- Pope, F. D. et al., Ultraviolet absorption spectrum of chlorine peroxide, ClOOCl, J. Phys. Chem., 111(20), 4322-4332, 2007.
von Hobe, M. et al., Understanding the kinetics of the ClO dimmer cycle, Atmos. Chem. Phys., 7, 3055-3069, 2007.

2. 研究の目的

二酸化窒素は成層圏のオゾン破壊に関わる重要な成分であるが、上部成層圏での観測例は少なく、化学反応の卓越するこの領域で

のオゾンとの同時観測は興味深い。本研究ではまずオゾンと二酸化窒素の同時観測を北海道大樹町にて行い、その観測精度を実証した上で相関を調べる。次にオゾンホール進行時期をねらって南極昭和基地または北極ニューオースン基地での観測を行い、成層圏全域におけるオゾン、二酸化窒素、OCIO, BrOの導出を試みる予定であった。

3. 研究の方法

2010年度は宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所の大気球観測として北海道大樹町にて5月に観測を行い、オゾンと二酸化窒素の高度分布を導出して精度を検証する予定であった。また、南極昭和基地あるいは北極ニューオースン基地での観測可能性を国立極地研究所、宇宙科学研究本部と協議し、2011あるいは2012年度に実施する予定であった。なお、二酸化窒素、OCIO, BrOの解析には地上分光観測などで用いられ実績のある差分吸光法(DOAS)の解析手法を応用して使用する。

4. 研究成果

2010年度は開発したスペクトル取得型光学オゾンゾンデによる観測を5月に宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所の大気球観測として北海道大樹町にて行う予定で実際に観測準備を行ったが、観測予定日当日の放球直前にCPUからのデータ書き出し命令がストップするトラブルが発生し、5月の観測は断念して観測器を持ち帰った。その後原因究明のため、長時間動作テスト等を繰り返したが現象は再現しなかったため、8-9月の観測時期には従来型のフィルター型光学オゾンゾンデによる観測を行い、高度46.8kmまでのオゾン観測には成功した。

図1に2010年9月8日に観測されたオゾンの高度分布を示す。青が光学オゾンゾンデ、赤が同時に観測したECCオゾンゾンデである。光学オゾンゾンデは紫外線量からオゾンを導出するため高度20km以下の紫外線の弱い領域では精度はよくないが、この観測では30km以下(気圧ではおよそ10hPa以下)で光学オゾンゾンデの結果がECCの結果より小さいのがわかる。2010年の観測では放球時刻の制限から低高度の観測時には太陽天頂角が80°前後となっており、紫外線強度が非常に弱かったためにうまく測れなかったようである。高度30kmに達する頃には太陽天頂角は60°前後になっており光量も十分だったため、これ以上の高度での結果には問題はない。

図2に2010年の結果を2007年の三陸での結果と比較したものを示す。前述のように2010年は30km以下では精度がよくないので、30km以上だけを見ると、ほぼ同程度のオゾン

Taiki Observed Ozone Profiles

Sep. 8, 2010

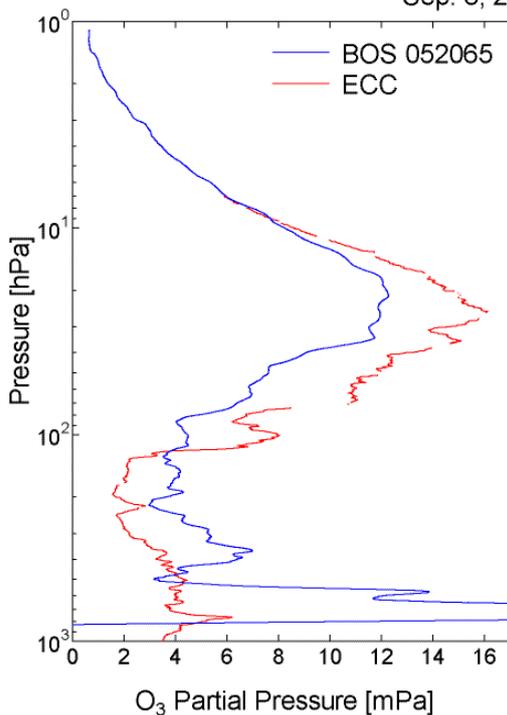


図1. 2010年9月8日の観測結果

Sanriku & Taiki Observed Ozone Profiles

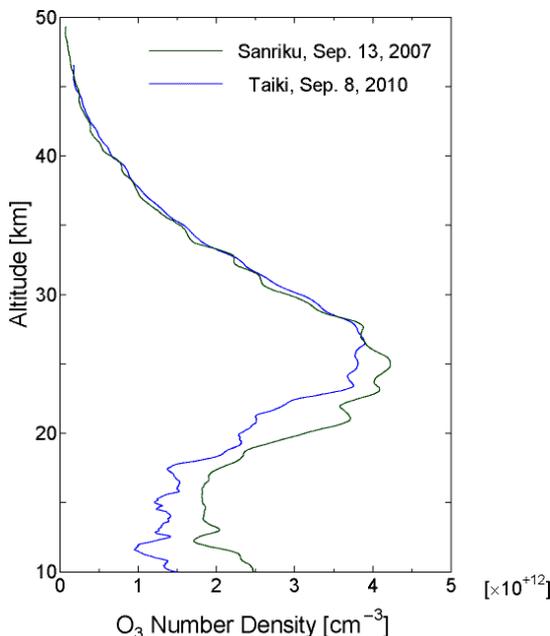


図2. 三陸と大樹の観測結果の比較

数密度である。三陸と大樹では緯度が 3° ほど違うが、その影響は少ないようである。これにより、2007年まで観測していた三陸での結果との比較から三陸と大樹の観測場所の違いによるオゾン高度分布の違いは少なく、一連の時系列データとして扱っても問題な

さそうであることが分かった。

スペクトル取得型光学オゾンゾンデについては宇宙科学研究所気球グループと協議し、不具合が再現しないものそのままもう一度観測を行うのは確実性に欠けるため、同仕様の観測器を予備機としてもう一台製作し、再び観測に挑戦することとなった。そのため、スペクトル取得型光学オゾンゾンデをもう一台製作した。

2011年度には引き続きトラブルの原因究明のため装置の長時間動作試験、低温・高湿度下での動作試験等を行ったが一度も装置は止まらず、トラブルは再現しなかった。しかし、温度試験用にキセノンランプを点灯したところ、その高圧電源の立ち上がり時にデータ書き出しがストップするというトラブルが再現した。そこで、観測器をメーカーに持ち込み、キセノンランプ用高圧電源およびノイズ発生装置を用いて試験したところ、高周波の電磁ノイズが発生した際にこのトラブルが起きることが確認された。ようやく原因が分かったのでシールドによるノイズ遮断を考えたが、強烈な電磁ノイズが発生した場合には装置の停止を回避できないことが分かったため、万一装置が停止した場合は数秒後に自動的に再起動するよう回路等の改修を行った。

2012年度は、まずノイズ発生器等を用いて試験を行い、装置が停止しても確実に再起動することを確認した。その後、宇宙科学研究所の真空チャンバーや恒温槽を使用して装置の温度・気圧試験を行い、観測器に若干の改修をして観測に備えた。9月に北海道大樹町での放球が予定されていたので、8月末から大樹町で観測準備を進めた。準備は問題なく進んだが、この年は太平洋高気圧が例年になく長く勢力を保ったせいか大樹町付近の風向が全く観測に適した状況にならず、結局9月後半まで待った結果観測を断念した。今回は我々の気球のみならず予定した気球観測は全て中止となったが、これは初めてのことで、かなり特殊な気象条件であったようである。

結局本課題の研究期間内に気球観測は行えなかったため、二酸化窒素観測可能性については、地上観測用に購入した同仕様の分光器とデータ取得用PC、レンズ等を用いて、大学構内にて太陽光が仙台市街地上空を通る日の出直後および大気中を通過するパスの光路長が最も短くなる南中時にテスト観測を行った。

二酸化窒素や OClO 、 BrO などの吸収量はオゾンに比べて非常に小さいため、実際の観測スペクトルからこれらの高度分布を導出するには高度方向にある程度積分するなどの工夫が必要と考えられる。そこで、地上において日出時と南中時に測定した太陽スペ

クトルを気球観測の低高度および高高度での観測スペクトルと見なして、その差分から成層圏の二酸化窒素コラム量を求めてみた。この測定は差分吸光法 (DOAS) の手法に近いことから、DOAS 用の解析プログラムを応用し解析を行った。解析プログラムは、ドイツ・ブレーメン大学で開発された NLIN_D [Richter, 1997] である。

図 3 に二酸化窒素のフィッティング結果を示す。測定は 2012 年 2 月 6 日日出直後 (SZA = 86.6 - 84.8°) と南中前後 (SZA = 54.11 - 54.08°) で、それぞれ 10 回の測定スペクトルを足し合わせて S/N を向上させている。この解析では温度変化による波長ずれの較正、ピクセル毎の感度補正、拡散板の影響と思われるフラウンホーファー線のリングエフェクト補正などを行ったが、その結果 $9.8 \times 10^{16}/\text{cm}^2$ と日出時のスラントコラムとしてはほぼ妥当な値が得られた。ただし、グラフから分かるようにまだ S/N は不足しているので実際の気球観測時にはもっと積分する必要がある。また、現在の波長分解能は FWHM (半値全幅) = 1.34nm でこれでも解析は可能だが、これはもう少し高い方がよいようなので、その後分光器の分解能を FWHM = 0.7 nm に変更し、それに合わせて積分時間を増やして S/N を向上させるよう改良した。

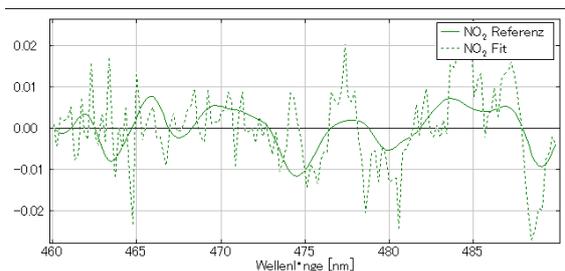


図 3. 地上試験観測スペクトルからの二酸化窒素コラムフィッティング結果 (NLIN_D による)

以上のテスト観測の解析から、二酸化窒素に関しては少なくとも成層圏コラム量は導出できそうであることを確認した。本課題の研究期間は 2012 年度で終了したが 2013 年度の宇宙科学研究所の気球観測には採択されているので、今後は実際の気球観測によるデータ取得とその解析により二酸化窒素の観測精度を実証し、その後極域での観測を行いたいと考えている。

Reference:

- A. Richter, Absorptionsspektroskopische Messungen stratospha"rischer Spurengase u"ber Bremen, 53° N, PhD-Thesis, University of Bremen, June 1997 (in German).

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 3 件)

- ① 村田 功, 佐藤 薫, 富川 喜弘, 野口 克行, 橋本 優希, スペクトル取得型光学オゾンゾンデによる成層圏オゾン観測の検証、平成 24 年度大気球シンポジウム講演集、査読無、isas12-sbs-035、2012 年
- ② 村田 功, 佐藤 薫, 富川 喜弘, 岡野 章一, スペクトル取得型光学オゾンゾンデおよび ECC オゾンゾンデを用いた成層圏オゾン・重力波観測、平成 23 年度大気球シンポジウム講演集、査読無、isas11-sbs-034、2011 年
- ③ 村田 功, 佐藤 薫, 富川 喜弘, 岡野 章一, 高麗正史, 三陸 および 大樹 における上部成層圏オゾン観測、平成 22 年度大気球シンポジウム報告書、査読無、73-75、2010 年

[学会発表] (計 3 件)

- ① 村田 功, 佐藤 薫, 富川 喜弘, 野口 克行, 橋本 優希, スペクトル取得型光学オゾンゾンデによる成層圏オゾン観測の検証、平成 24 年度大気球シンポジウム、2012 年 10 月 16 日～2012 年 10 月 17 日、宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所
- ② 村田 功, 佐藤 薫, 富川 喜弘, 岡野 章一, スペクトル取得型光学オゾンゾンデおよび ECC オゾンゾンデを用いた成層圏オゾン・重力波観測、平成 23 年度大気球シンポジウム、2011 年 10 月 7 日、宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所
- ③ 村田 功, 佐藤 薫, 富川 喜弘, 岡野 章一, 高麗正史, 三陸 および 大樹 における上部成層圏オゾン観測、平成 22 年度大気球シンポジウム、2010 年 10 月 1 日、宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村田 功 (MURATA ISA0)

東北大学・大学院環境科学研究科・准教授
研究者番号：00291245

(2)研究分担者

笠羽 康正 (KASABA YASUMASA)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：10295529

中川 広務 (NAKAGAWA HIROMU)
東北大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号：30463772

藤原 均 (FUJIWARA HITOSHI)
東北大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：50298741

(3)連携研究者

野口 克行 (NOGUCHI KATSUYUKI)
奈良女子大学・研究院自然研究系・助教
研究者番号：20397839