

大気中のオゾン等微量成分の変動の研究

Variations of ozone and related trace species in the atmosphere



准教授 村田 功
Associate Professor
Isao Murata

当研究室では、「グローバルな大気環境変動」をキーワードに、オゾン減少問題や地球温暖化など、地球規模の環境変動に関わる大気中の微量成分の観測的研究を行っている。2018年は、つくばにおけるフーリエ変換型分光器 (FTIR) による HCl, HF 観測の経年変化の解析や 2016 年に実施した光学オゾンゾンデからの成層圏オゾン・二酸化窒素高度分布導出などを行った。また、NDACC/IRWG 会議、iCACGP-IGAC 2018 の二つの国際会議に参加した。

Temporal variations of the total columns of Hydrogen chloride (HCl) and Hydrogen fluoride (HF) were observed with Fourier Transform Infrared Spectrometer (FTIR) at Tsukuba. We also retrieved profiles of stratospheric ozone and nitrogen dioxide from spectra taken from a balloon-borne optical ozone sensor in 2016. We participated in the NDACC/IRWG meeting held in Cocoyoc, Mexico, and iCACGP-IGAC 2018 held in Takamatsu, Japan, and presented the results of our HCl and HF observation.

我々は国立環境研究所との共同研究として、つくばにおける FTIR による観測を 1998 年より行っている。FTIR では太陽光の 2-15 μ m の赤外領域のスペクトルから大気中の多くの微量成分の高度分布等を調べることができる。FTIR を用いた同様の観測を行っている国際的な研究グループ NDACC/IRWG (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change/Infrared Working Group) では、各観測ステーションの結果を総合して地球規模の変動要因を解明する研究を進めており、これまでも HCl、CH₄ 等についての論文を共同で発表している。今年 HCl の近年の結果を解析するとともに、新たに HF の経年変化を解析した。

HCl は成層圏オゾン破壊の指標となる成分で、フロン規制によって大気中への塩素の放出量が減少したのに伴い 2000 年頃から減少傾向にあったが、2007-2011 年頃に増加傾向が見られた。ベルギーのグループを中心とした NDACC/IRWG の 8 カ所の観測結果と 3 次元化学輸送モデルを用いた解析から、今回の再増加は北半球の短期的な大気循環の変動によることが分かり、2014 年に Nature に発表したことは以前に報告している。HCl 再増加の原因が短期的な大気循環の変動なのであればその後また HCl は減少に転じるはずで、昨年は 2016 年までのデータを解析して確かに 2012 年以降に減少傾向が見

We have been investigating the temporal and spatial variations of atmospheric trace species with solar infrared spectroscopy using FTIR at Tsukuba since 1998 in collaboration with the National Institute for Environmental Studies. We have contributed to the activity of the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change/Infrared Working Group (NDACC/IRWG) and collaborated on HCl, CH₄, etc. This year, temporal variations of the total columns of HCl and HF were analyzed.

HCl is the main chlorine reservoir species in the stratosphere. The amount of HCl is a good indicator of the potential for ozone depletion. HCl decreased in the 2000s after the chlorofluorocarbons (CFCs) regulation but showed an increase from 2007 to 2011. A Belgian group investigated this increase and attributed it to short-term dynamical variability in the northern hemisphere from FTIR observations and 3-D chemical transport model simulations (Mahieu et al., 2014). Fig. 1 shows temporal variation in the HCl vertical column at Tsukuba extended to 2017. HCl decreased again after 2012 but increased after 2015. Fig. 2 shows temporal variation in the HF vertical column at Tsukuba from 2011 to 2017. The main source of HF is also CFCs, but HF is chemically stable. Therefore, HF is a good tracer of atmospheric transport. HF also increased from 2007 to 2011 and decreased again after 2012. The decrease almost stopped after 2015. On the other hand, mass stream function didn't show clear circulation changes from acceleration to deceleration after 2015. We will continue to analyze HCl's and HF's trends.

られ、これと成層圏循環の加速が対応していることを報告した。ところが、その後 2017 年の解析を追加してみると、Fig.1 に示すように 2015 年以降には再び増加に転じているという結果となった。そこで、HCl 同様フロンが発生源でただし化学的には安定なため力学輸送のトレーサーによく使われる HF も解析してみたところ、Fig.2 に示すように、こちらも 2015 年以降減少傾向が弱まっているという結果となった。一方、成層圏循環の変化は気象データをみてもあまりはっきりしない。HCl や HF が本当に増加に転じたのかも含め、引き続き解析を進めているところである。

光学オゾンゾンデは、本研究室が開発した紫外線強度の変化から成層圏オゾンの高度分布を観測する気球観測用の観測装置で、オゾン以外に二酸化窒素等も観測できるように小型分光器を用いて 280-500 nm のスペクトルを測定している。この観測は宇宙科学研究所の大気球実験として以前から行っているが、分光器を用いた初の観測を行った 2013 年には気球上昇中の分光器温度変化により波長シフトが起こるなどいくつか問題点があった。そこで、保冷剤を用いた温度安定機構を構成するなどの改良を行い、2016 年に再び観測を行った。昨年はこの解析の途中経過を報告したが、2013 年より質のよいデータが取れたことから二酸化窒素のカラム量は求めることができたものの、高度分布を求めるにはまだ S/N が不足していた。そこで、今年は生データを積分する前に質の良いデータのみ選んでから積分し直し、S/N を改善したところ、Fig.3、4 に示すように高度分解能 3km であればオゾン・NO₂ ともにまずまずの精度で高度分布を求めることが出来た。

NDACC/IRWG では、毎年世界各国から 20 以上の研究グループが集まって観測手法や最新の結果に関する情報交換を行う会議を行っているが、今年メキシコで 6 月 11-15 日開催された (Fig.5)。我々もこの会議に参加し、HCl の解析結果の発表を行ったほか、解析手法の最適化などについて情報交換を行った。また、24 年ぶりに日本で開催された大気化学系の国際学会 iCACGP-IGAC 2018 にも参加し (Fig.6)、HCl、HF の解析結果の発表を行った。また、村田准教授は 2015 年から宮城県保健環境センターの評価委員をしており、今年度もこれまでに 4 回の評価委員会に出席して県保健環境センターが行っている研究の評価を行った。

We developed a balloon-borne optical ozone sensor in our laboratory to measure the ozone vertical profile in the upper stratosphere from ultraviolet absorption. Recently, a new sensor with a small spectrometer was developed to measure some other species, such as NO₂, as well as ozone from the solar spectra between 280 and 500 nm. Balloon observations have been carried out in collaboration with the scientific balloon group at the Institute of Space and Astronautical Science/Japan Aerospace Exploration Agency (ISAS/JAXA). The first observation with the new sensor was carried out in 2013 in Taiki, Hokkaido, but the instrument presented some problems. The second observation with an improved instrument was carried out on September 5, 2016, in Taiki, and high-quality spectra were taken successfully. The stratospheric profiles of ozone and NO₂ were retrieved this year, and the profiles with a 3-km resolution show good agreements with ozonesonde or model results as shown in Figs. 3 and 4.

NDACC/IRWG holds an annual meeting where scientists from more than 20 groups discuss observational results, new plans, and measurement techniques. The 2018 meeting was held in Mexico from June 11 to 15, 2018 (Fig.5). We participated in the meeting and presented the results of our HCl observation. Discussions on the optimization of the analysis method were also held. We also participated in the iCACGP-IGAC 2018 conference held in Takamatsu, Japan, from September 25 to 29, 2018 (Fig. 6), and presented the results of our HCl and HF observation.

Assoc. Prof. Murata serves as an evaluation committee member for the Center for the Health and Environment, Miyagi Prefectural Government, and attended four committee meetings.

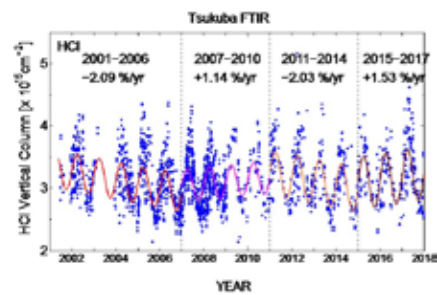


Fig.1 Temporal variation in the total column of HCl observed at Tsukuba from 2001 to 2017.

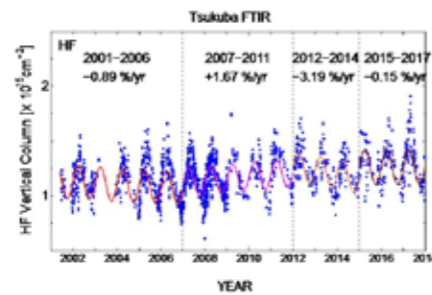


Fig.2 Temporal variation in the total column of HF observed at Tsukuba from 2001 to 2017.

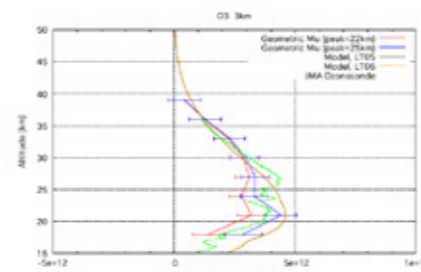


Fig.3 Retrieved profile of ozone observed with balloon-borne optical ozone sensor.

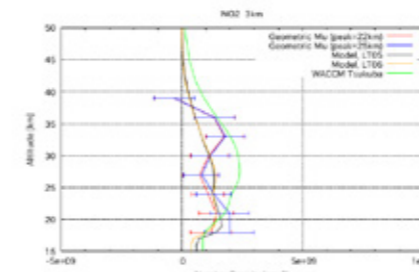


Fig.4 Retrieved profile of NO₂ observed with balloon-borne optical ozone sensor.



Fig.5 Group photo of NDACC/IRWG meeting held in Cocoyoc, Mexico.



Fig.6 Group photo of iCACGP-IGAC 2018 conference held in Takamatsu, Japan.