

# 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。2021 年は、つくばにおけるフーリエ変換型分光器 (FTIR) 観測によるオゾンの経年変化の解析や、NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O の高度分布導出などを行った。

Temporal variation of the height profile of ozone was observed with a Fourier transform infrared spectrometer (FTIR) at Tsukuba. We also retrieved profiles of NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and N<sub>2</sub>O.

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 μm 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。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、HCHO 等についての論文を共同で発表している。今年では O<sub>3</sub> の経年変化を解析するとともに新たに NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O の解析も行った。

オゾンについては、昨年に 2019 年の観測結果について気象庁高層気象台のオゾンゾンデ観測と比較し、0-9.8 km、9.8-18.3 km、18.3-27.7 km の各高度領域で数 % から 10% 程度で一致することを確かめた。そこで今年では 2014-2020 年について全量および高度領域毎の経年変化を調べた。図 1 に高度毎の経年変化を示す。27.7 km 以上と 9.8-18.3 km で減少傾向が見られ、18.3-27.7 km と 0-9.8 km ではほとんど変化がないことが分かる。これらを積分した全量でも減少傾向となり、これは高層気象台のオゾン全量観測でも同様である。この減少傾向の原因については解析中であるが、世界各地のオゾン全量の経年変化を調べたところ日本を含めた東アジア地域では同様に減少傾向が見られ、大気循環場との関連などを調べているところである。

今年では NO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O の解析を進めたが、ここでは二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) について紹介する。NO<sub>2</sub> は主に成層圏に分布する活性な窒素酸化物のひとつで、オゾン破壊等の反応に関わる重要な成分である。また、都市域では大気汚染成分として地表付近の濃度も高くなり、光化学スモッグの要因となる。図 2 につくばにおける 2 つの高度領域での 2012 - 2020 年の NO<sub>2</sub> の経年変化を示す。地上赤外分光では NO<sub>2</sub> に関しては主に成層圏成分 (上図) に感度があり対流圏成分 (下図) に対する感度は低いため対流圏成分についてはばらつきが大きい、全体としては特に大きな経年変化は見られず、季節変化については成層圏と対流圏で位相が異なることがわかる。このデータは現在ヨーロッパの共同研究者に提供し TROPOMI 衛星の検証に使われている。

村田は今年 11 月から 2022 年 3 月まで第 63 次南極地域観測隊に夏隊員として参加し、スーパープレッシャー気球を用いた大気重力波の観測を行っている。大気重力波は、大気中の運動量輸送を担い、中層大気の子午面循環の駆動を通じて成層圏・中間圏の温度・物質分布の

In collaboration with the National Institute for Environmental Studies, we have been investigating the temporal and spatial variations of atmospheric trace species with solar infrared spectroscopy using FTIR at Tsukuba since 1998. 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, HCHO, and so on. In 2021, temporal variation of ozone profile was analyzed and NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and N<sub>2</sub>O profiles were newly analyzed.

In 2020, we have compared the retrieved ozone profiles by FTIR with ozonesonde observations by JMA's aerological observatory for 2019 and confirmed the good agreements within ~10 % for 0 - 9.8 km, 9.8 - 18.3 km, and 18.3 - 27.7 km partial columns. The temporal variations of total and partial columns from 2012 to 2020 were investigated in 2021. Fig. 1 shows temporal variations of partial columns for ozone at Tsukuba. We can see decreasing trends for over 27.7 km and 9.8-18.3 km and almost no trends for 18.3-27.7 km and 0-9.8 km. Total ozone shows a decreasing trend and agrees with the results by the aerological observatory. We also investigated total ozone data in the world and many stations in East Asia including Japanese stations show decreasing trends. We are investigating the relation with atmospheric circulation, etc.

NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and N<sub>2</sub>O profiles were analyzed. The results for NO<sub>2</sub> are shown here. NO<sub>2</sub> is one of the active nitrogen species and it is mainly distributed in the stratosphere. It is important for the chemical reactions of ozone depletion. It also shows high concentrations in the urban troposphere as a pollutant and causes photochemical smog. Fig.2 shows temporal variations of partial columns for NO<sub>2</sub> at Tsukuba. The fluctuation is high for the tropospheric column (lower panel) because the sensitivity to NO<sub>2</sub> by ground-based infrared spectroscopy is low for the tropospheric column but there are no significant trends for both partial columns, and the phases of seasonal variation are different between the stratosphere and troposphere. These NO<sub>2</sub> results are used for the validation of the TROPOMI instrument on board the Sentinel-5 Precursor satellite.

Associate Professor Murata is participating the 63rd Japanese Antarctic Research Expedition as a summer member from November to next March and carrying out the observation of atmospheric gravity waves with a super-pressure balloon. Atmospheric gravity waves transport momentum in the atmosphere and play an important role in determining temperature and material distribution through driving the meridional circulation in the middle atmosphere. However, the observational constraint on the momentum transport due to gravity waves is insufficient in the Antarctic. The super-pressure balloon can stay at a certain altitude (19 km at this time) for more than 10 days and observe momentum transport due to gravity waves in all frequency bands, and its horizontal distribution is clarified as well. By

決定に重要な役割を果たす。しかし、南極地域では大気重力波の観測情報が不十分である。スーパープレッシャー気球は一定高度 (今回は 19km) を 10 日以上浮遊することが可能で、2 次元風速と気圧の観測により重力波の運動量輸送を全周波数帯域で定量的に測定でき、その水平分布もとらえることができる。これを昭和基地の PANSY レーダー観測および最新の気象再解析データと組み合わせることにより、大気重力波による運動量輸送の 3 次元的描像を捉えることが目的である。今回は 3 回の観測を計画しているが、12 月中には天候その他の理由で放球・観測は行えず初回は 1 月となった。ここでは図 3 に南極観測船「しらせ」から撮影した「沈まぬ太陽」の写真を掲載しておく。中央から左にかけて見えるのが長頭山とラングホブデ氷河、手前に見えるのはしらせが海氷を砕いて進んだ航跡である。

成果発表としては、地球環境変動学分野 (国立環境研究所) 博士課程の武田君、中島教授と HFC-23 の解析結果を昨年 Atmospheric Measurement Techniques 誌に投稿していたが、無事受理され掲載された (Takeda et al., 2021)。

村田は 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、今年も 1 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。また、2020 年から宮城県環境影響評価技術審査会委員となり、近年申請の増えている風力発電事業を中心に 10 回以上の審査会に出席している。

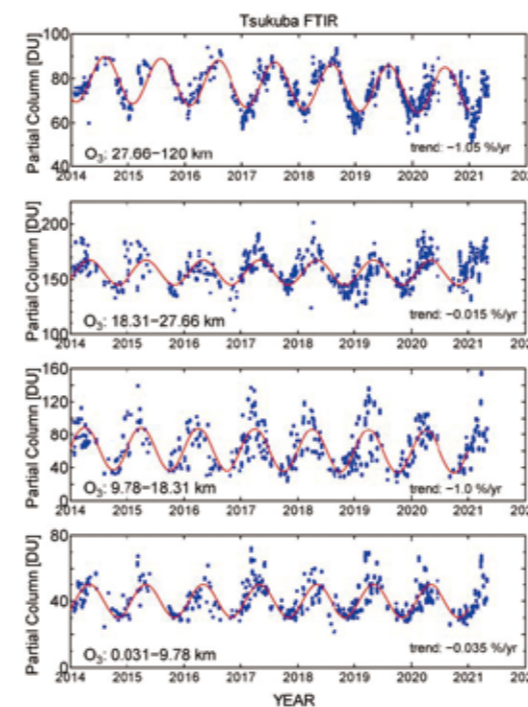


Fig.1 Temporal variations of partial columns for ozone at Tsukuba.

combining it with the PANSY radar observation at Syowa station and the state-of-the-art meteorological reanalysis data, a 3D picture of momentum transport due to gravity waves is acquired, which contributes to the improvement of the future prediction by the climate model. A maximum of three balloon observations will be carried out at Syowa Station in the Antarctic. A photograph from Antarctica is shown in Fig.3. It is the multiple exposure of the midnight sun taken from the ice-breaker ship SHIRASE near Syowa station. One can see Mt. Choto-zan and the Langhovde glacier in the center and left side. One can also see the trajectory of SHIRASE in the lower side.

Analysis of the HFC-23 in cooperation with Mr. Takeda and Professor Nakajima in the Global Environment Division was published in Atmospheric Measurement Techniques (Takeda et al., 2021).

Associate Professor Murata serves as an evaluation committee member for the Center for Health and Environment, Miyagi Prefectural Government, and he attended one committee meeting. He also serves as a member of the environmental assessment technology examination committee, Miyagi Prefectural Government, and he attended more than 10 committee meetings.

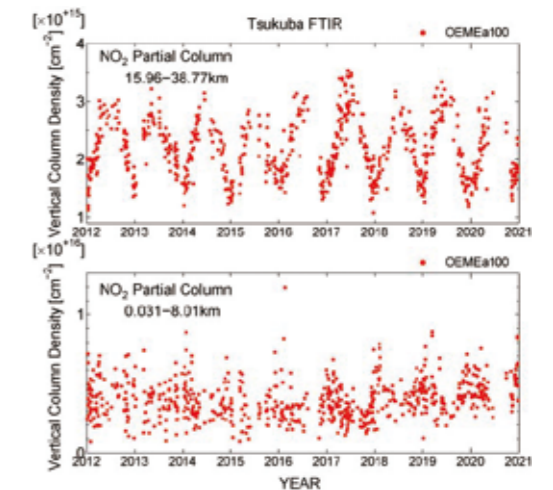


Fig.2 Temporal variations of partial columns for NO<sub>2</sub> at Tsukuba.

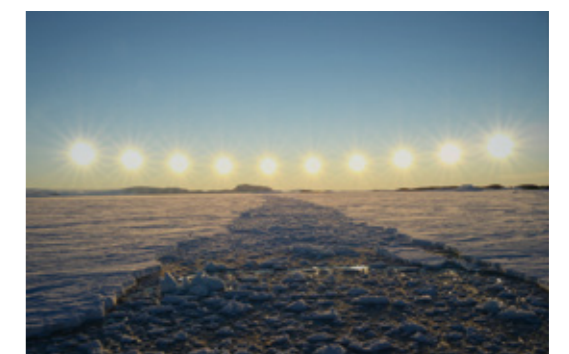


Fig.3 Multiple exposure of the midnight sun taken from the ice-breaker 'SHIRASE' near Syowa station, Antarctica.