

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。2019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 HCHO, NH₃ の経年変化の解析や 2016年に実施した光学オゾンゾンデ観測結果の論文文化などを行った。また、NDACC/IRWG 会議に参加した。

Temporal variations of the total columns of formaldehyde (HCHO) and ammonia (NH₃) were observed with Fourier transform infrared spectrometer (FTIR) at Tsukuba. The paper on the profiles of stratospheric ozone and nitrogen dioxide observed by a balloon-borne optical ozone sensor in 2016 was accepted. We participated in the NDACC/IRWG meeting held in Wanaka, New Zealand, 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 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, CH₄ 等についての論文を共同で発表している。今年は新たに HCHO, NH₃ の解析を行うとともに HCl, HF の解析も継続している。

HCHO はメタンや揮発性有機化合物の酸化過程で生成する中間物質で、オゾンや二次粒子の生成などの大気汚染に関わる指標となる物質である。近年は人工衛星による観測も行われるようになっており、FTIR の観測結果はその検証にも使われている。Fig.1 につくばで観測された HCHO カラム全量の 2001 - 2019 年の経年変化を示す。夏季極大、冬季極小の季節変化が見られるが、経年的な増減は特に見られない。他の観測地との比較では大きめの値であり、関東地域の都市域の排出源の影響を受けていると考えられる。

NH₃ は生物による窒素固定やエアロゾル生成、酸性雨の中和などに関連する成分であり、農地からの発生やバイオマス燃焼の他、自動

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, CH₄, etc. This year, temporal variations in the total columns of HCHO and NH₃ were newly analyzed and the investigation of HCl and HF continued.

HCHO is an intermediate product of the oxidation of CH₄ and the volatile organic compounds, and it is one of the indicators of air quality because it is related to the production of ozone and secondary organic aerosols. There are some satellite measurements and the FTIR measurements are useful for the validation of these satellite products. Fig.1 shows temporal variation in the total column of HCHO observed at Tsukuba from 2001 to 2019. We can see the summer maximum and winter minimum but no significant trend. The columns are larger than those in other NDACC/IRWG sites, indicating emissions from the urban area in Kanto.

Ammonia is related to nitrogen fixation by organisms and affects aerosol formation and neutralization of acid rain. Anthropogenic sources such as agricultural emissions are dominant, but emission from three-way catalysts in cars is also important in the urban area. Fig. 2 shows temporal variation in the total column of NH₃ observed at Tsukuba from 2014 to 2019. We can see the summer maximum and winter minimum, and values larger than 1 x 10⁶ molec/cm² were sometimes observed in summer. Backward

車の三元触媒からも排出されるため都市域からの発生も無視できない。Fig.2 につくばで観測された NH₃ カラム全量の 2014 - 2019 年の経年変化を示す。夏季極大、冬季極小の季節変化のほか、夏季にはしばしば通常の 2 倍前後の大きな値も見られる。これらの高濃度を観測した日について流跡線解析を行ったところ、都市域や農地からのエミッションを示唆する結果が得られている。

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る。一方、HF は HCl 同様フロンが主な発生源であるが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。この 2 つの成分には数年毎に増減を繰り返す経年変化が見られておりこれは成層圏循環の変化の影響であるが、これとフロン規制による効果の関係をここ数年調べている。今年度は、HCl, HF の 2018 年の解析を追加して 2015 年以降の再増加が継続していることを確かめた。全球気象データから計算した質量流線関数などの解析からこの再増加も力学的要因による可能性が高いことが分かったが、一方で 3 次元化学輸送モデルでは再増加が再現されておらず、観測された再増加にはエミッションの影響がある可能性もあり、解析を進めている。

また、南極昭和基地において 2007、2011 年に行った FTIR 観測から極渦境界付近の塩素化合物の分配について調べた論文を地球環境変動学分野 (国立環境研究所) の中島教授と執筆していたが、これがようやく Atmospheric Chemistry and Physics 誌に受理された。

光学オゾンゾンデによるオゾン・二酸化窒素の高度分布観測については、昨年解析方法の改善により高度分解能 3km でオゾン・二酸化窒素ともみずみずの精度で高度分布を求めることが出来たことを報告しているが、今年はこの結果を論文にまとめ宇宙航空研究開発機構研究開発報告に受理された。

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、今年ニュージーランドで 5 月 20 - 24 日に開催され、我々も参加した (Fig.3)。メタン、HCl, HF 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。

12 月にはインドネシアのグラウィジャヤ大学で本研究科が行った東北大学セミナーに土屋研究科長らとともに参加し、研究紹介を行った (Fig.4)。また、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 2 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。

trajectories on these days show that these air masses came from urban surface areas or agricultural fields.

HCl is a good indicator of the potential for ozone depletion, and its concentration in the atmosphere decreased in the 2000s after chlorofluorocarbon (CFC) regulations were introduced. CFCs are also an HF source, and HF is a good tracer of atmospheric transport because it is chemically stable. These two species have shown increasing and decreasing trends due to short-term dynamical variability in the northern stratosphere. We are investigating the relation between the trends and the effect of CFC regulation. This year we extended the analyses of HCl and HF to 2018 and confirmed that the upward trend continues after 2015. Mass stream function showed that this trend is also due to dynamical variability. On the other hand, there is some possibility of emission change because 3D chemical transport model simulations could not reproduce the upward trend. We will continue to analyze HCl and HF.

The paper on the chlorine partitioning near the polar vortex boundary observed with FTIR at Syowa station, Antarctica, in 2007 and 2011 was submitted to *Atmospheric Chemistry and Physics* by Prof. Nakajima in the Global Environment Division, and it was accepted.

The paper on the profiles of stratospheric ozone and nitrogen dioxide observed by a balloon-borne optical ozone sensor in 2016 was accepted by *JAXA Research and Development Report*.

NDACC/IRWG holds an annual meeting where scientists from more than 20 groups discuss observational results, new plans, and measurement techniques. The 2019 meeting was held in Wanaka, New Zealand, from May 20 to 24, 2019 (Fig.3). We participated in the meeting and presented the results of our CH₄, HCl, and HF observation.

Tohoku University Environmental Studies Seminar 2019 was held at Brawijaya University, Indonesia, on Dec. 18. Assoc. Prof. Murata participated and presented the introduction of our research (Fig.4).

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

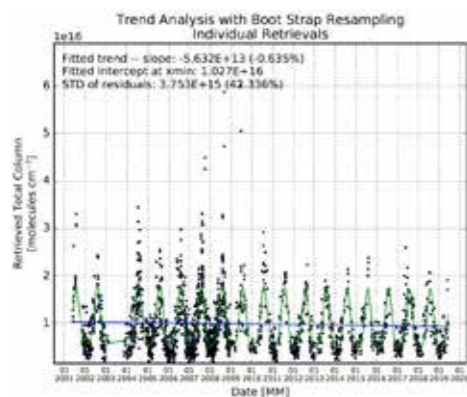


Fig.1 Temporal variation in the total column of HCHO observed at Tsukuba from 2001 to 2019.

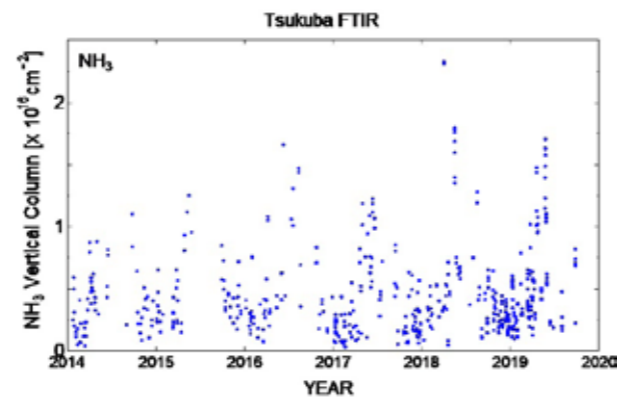


Fig.2 Temporal variation in the total column of NH₃ observed at Tsukuba from 2014 to 2019.



Fig.3 NDACC/IRWG meeting held in Wanaka, New Zealand.



Fig.4 Tohoku University Environmental Studies Seminar 2019 at Brawijaya University.