

# 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。2020 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 HCl, HF の経年変化の解析や、オゾン高度分布の検証などを行った。

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 ozone and validated the results using ozonesonde observation by the aerological observatory, Japan Meteorological Agency (JMA).

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 $\mu$ 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。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, CH<sub>4</sub> 等についての論文を共同で発表している。今年度は新たに O<sub>3</sub> の高度分布検証を行うとともに HCl, HF の解析も継続している。

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、共同研究を行っている名古屋大学宇宙地球環境研究所の北海道陸別における HCl, HF の観測結果とも

In collaboration with the National Institute for Environmental Studies, we have investigated 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, CH<sub>4</sub>, and so forth. This year, ozone profile validations were performed, and the investigation of HCl and HF continued.

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 compared our results with those observed at Rikubetsu, Hokkaido, by the Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University. Here, we show the results of HCl. Fig.1 shows the 4-year trend of HCl for Tsukuba and Rikubetsu. For example, the trend for 2010 means the trend for 4 years from 2008 to 2011. Although the observed periods are different for the two sites, the trends are consistent between the two sites in 2003–2009 and 2016–2018. Fig.2 shows the 4-year trend of HCl at Tsukuba from observation and 3D chemical

比較した。Fig.1 に HCl のつくばと陸別における増加率の経年変化を示す。ここではある年を中心に前後 2 年、計 4 年分のデータにフィッティングした増加率をその年の増加率としている。つくばと陸別では観測期間に違いがあるものの、両者の重なっている 2003–2009 年、2016–2018 年の増減傾向はほぼ一致していることが分かった。次に、つくばについて 3 次元化学輸送モデルの結果と比較したものが Fig.2 であるが、これを見ると観測に見られる 2015–2017 年の増加がモデルでは再現されていないことがわかる。このモデルではフロン規制に従ったフロン類のエミッションを仮定していることから、つくばや陸別で観測された 2015–2017 年の増加は話題となった違法なエミッションの影響と考えられ、引き続き解析を進めている。なお、ここでは図は示さないが、HF についても同様の結果が得られている。

FTIR から導出した高度分布を検証するには気球や人工衛星による観測結果を利用するが、高精度の高度分布観測はオゾン以外ではあまりなく、その点でまずオゾンを用いて高度分布導出手法の妥当性を検討することは重要である。また、つくばの場合はオゾンゾンデ観測を行っている気象庁高層気象台がすぐ隣にあり、観測地の違いをほぼ考慮しなくてよいため高度分布の検証には最適である。Fig.3 に 2019 年 10 月 2 日について FTIR 観測から導出した高度分布とオゾンゾンデの結果とを比較した例を示す。オゾンゾンデ (赤点) は高度分解能が数 m と高く、一方 FTIR (青線) では 10 km 程度と低いため、高度分解能を FTIR に合わせたもの (赤線) と比較することになるが、およそ 18-35 km の高度では 10% 以内で一致している。2019 年に同日観測のあった 15 日 (58 スペクトル) について、0-9.8 km, 9.8-18.3 km, 18.3-27.7 km の 3 層に分けて比較したところ、それぞれオゾンゾンデに対するパーシャルカラムの比が 1.02 $\pm$ 0.05, 1.11 $\pm$ 0.19, 1.03 $\pm$ 0.05 となり、数% から 10% 程度で一致することが確かめられた。昨年報告した HCHO の結果は NDACC/IRWG メンバーによる Sentinel-5 Precursor 衛星搭載 TROPOMI 観測の検証に使用され、論文化された (Vigouroux et al., Atmos. Meas. Tech., 2020)。また、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 の解析を進めていたが、この結果を Atmospheric Measurement Techniques 誌に投稿することができた。

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、今年も 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。また、今年から新たに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。

transport model simulations. The simulation could not reproduce the observed increase in 2015–2017. As this simulation used the emission scenario according to CFCs regulations, the observed increase in 2015–2017 is supposed to occur due to illegal emissions. We will continue to analyze HCl and HF.

Balloon and satellite observations are used to validate the retrieved profile from the FTIR observation. However, there are not many accurate profile observations, except for ozone. Therefore, it is important to investigate the validity of profile retrieval with ozone results. Furthermore, the Tsukuba site has an advantage, in that the ozonesonde site (JMA's aerological observatory) is located close to our site. Fig. 3 shows the comparison example of the observed ozone profiles by FTIR and ozonesonde on October 2, 2019. After the height resolution matching, the profile from FTIR agrees within 10% between 18 and 35 km. Comparison for the 15-day (58 spectra) observations in 2019 shows the FTIR/sonde ratio of 1.02 $\pm$ 0.05, 1.11 $\pm$ 0.19, and 1.03 $\pm$ 0.05 for 0–9.8km, 9.8–18.3km, and 18.3–27.7km partial columns, respectively, indicating good agreement within ~10%.

The HCHO results (reported last year) were used for the validation of the TROPOMI instrument on board the Sentinel-5 Precursor satellite and published in Atmospheric Measurement Techniques (Vigouroux et al., 2020). Analysis of the HFC-23 in cooperation with Mr. Takeda and Prof. Nakajima in the Global Environment Division were submitted to Atmospheric Measurement Techniques.

Assoc. Prof. Murata serves as an evaluation committee member for the Center for Health and Environment, Miyagi Prefectural Government, and he attended two committee meetings. This year, he also became a member of the environmental assessment technology examination committee for the Miyagi Prefectural Government and attended more than 10 committee meetings.

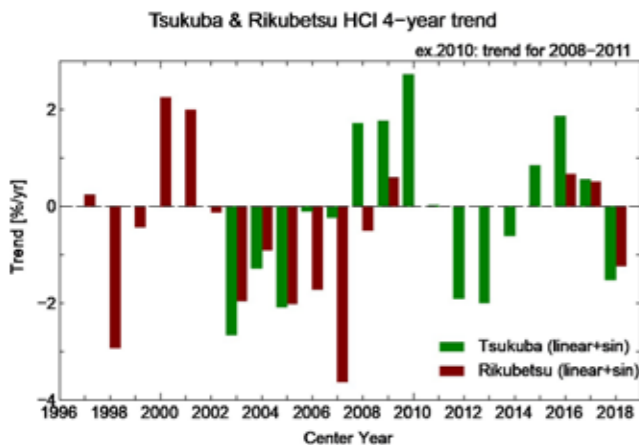


Fig.1 Temporal variation of 4-year trend of HCl for Tsukuba and Rikubetsu.

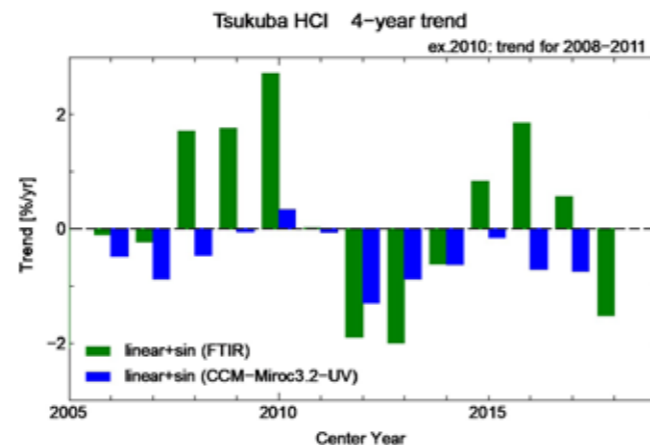


Fig.2 Temporal variation of 4-year trend of HCl at Tsukuba from observation and 3D chemical transport model simulations.

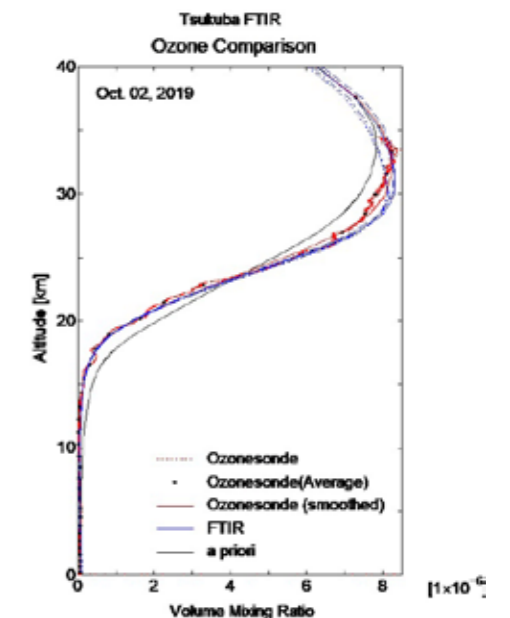


Fig.3 Example of the comparison of the observed ozone profiles by FTIR and ozonesonde on October 2, 2019.