



准教授 村田 功  
Associate Professor  
Isao Murata

# 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

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。2022 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 ClONO<sub>2</sub>、メタン同位体等の高度分布導出を行った。また、南極・昭和基地における大気重力波の気球観測を行った。

Height profiles of ClONO<sub>2</sub> and some isotopes of methane were retrieved from the spectra observed with a Fourier transform infrared spectrometer (FTIR) at Tsukuba. Balloon measurements for atmospheric gravity wave were performed at Syowa station, Antarctica.

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。今年も OCS の経年変化に関する論文 (Hannigan et al., 2022) が出版された。また、ClONO<sub>2</sub> やメタン同位体の解析を行った。

ClONO<sub>2</sub> は HCl とともに塩素のリザーバー分子と呼ばれる比較的安定な成分である。中緯度の成層圏では両者の和がほぼ塩素化合物の総量となり、フロン規制による成層圏塩素量の減少傾向のモニタリングに重要である。ClONO<sub>2</sub> の吸収線は 12.8 μm 付近にあるが非常に吸収が弱く解析が難しいため、つくばではこれまで解析してこなかった。今回、ベルギーの研究グループの協力で解析パラメータの最適化を行い、カラム全量を導出した。図 1 に 2021 年 1 月 25 日に観測したスペクトルのフィッティングの例を示す。ClONO<sub>2</sub> の吸収は 780.2 cm<sup>-1</sup> 付近にかなり弱いですが、上部に示した残差を見ると比較的精度良くフィッティングできていることが分かる。今後 ClONO<sub>2</sub> の導出は継続的に進めていく予定である。

大気中の分子の水素、炭素、酸素等の同位体比は、その発生源や経由した化学反応によって異なる。そのため同位体比を観測することでその成分の履歴に関する情報が得られる。ただし、同位体比を求めるには高精度な観測が必要で、これまで大気中の同位体を利用

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 2022, a paper on the temporal variation of OCS (Hannigan et al., 2022) was published. ClONO<sub>2</sub> and some isotopes of methane were newly analyzed.

ClONO<sub>2</sub> is a reservoir of chlorine containing species together with HCl. The sum of the two species almost becomes the total abundance of the chlorine-containing species in the stratosphere of the mid-latitudes and is important to the monitoring of the decrease of the stratospheric chlorine according to the Montreal protocol. Absorption lines of ClONO<sub>2</sub> exist at 12.8 μm, but they are very weak. The retrieval was performed using parameters for Jungfraujoeh (E. Mahieu, personal communication) as a reference. Fig. 1 shows a fitting result for ClONO<sub>2</sub> from the spectrum at 779.30–780.60 cm<sup>-1</sup> observed on January 25, 2021. The weak absorption of ClONO<sub>2</sub> can be seen at 780.2 cm<sup>-1</sup> and the residuals show that the spectrum was fitted well. We will continue the retrieval in the future.

Atmospheric species from different sources have different isotope ratios due to bioactivity, etc. In addition, chemical reactions sometimes cause isotopes to fractionate. Therefore, we can obtain information for sources or chemical processes from observed isotope anomalies. Usually, the isotope anomalies are very small (in the order of permille) and accurate measurements such as sampling are needed. There are few measurements with infrared spectroscopy because the uncertainties of the absorption intensities are usually as large as percent or more. But the variations of isotope anomalies sometimes show values in the order of percent or more and the uncertainty of the absorption intensity does not affect

用した研究は主にサンプリングデータの高精度な分析によって発展してきた。一方、赤外分光では絶対量の少ない同位体でも吸収強度の強い吸収線を用いれば解析は可能であるが、吸収線の強度などに数 % 程度の不確定性があることが多く、% 単位の微小な絶対値を精度よく求めることは難しい。しかし、同位体比の相対的な変動は % オーダーであることも多く、吸収線強度の不確定性はバイアスとして全てのデータに同様に効くため相対変動には影響しない。そこで、相対的な変動であれば赤外分光でも観測可能ではないかと考え、まずはメタンについて検討を始めた。メタンには <sup>12</sup>CH<sub>4</sub> の他に <sup>13</sup>CH<sub>4</sub>、<sup>12</sup>CH<sub>3</sub>D といった安定同位体が存在する。図 2 に 8 μm 帯の波数領域で <sup>13</sup>CH<sub>4</sub> を解析してみたフィッティングの結果を示す。<sup>13</sup>CH<sub>4</sub> の吸収は 1234.2 cm<sup>-1</sup> 付近にある比較的強いものでうまくフィッティングできている。<sup>12</sup>CH<sub>3</sub>D についても解析は始めているが、こちらは強い吸収線がまだ見つかっていないので、解析に適した波数領域の探索から進めていく予定である。

村田は昨年 11 月から今年 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た。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 18 km) を長期間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で、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。今回は観測手法の確立が主目的で、3 回の放球を行い、いずれも 18 km 付近での水平浮遊に成功した。図 3、4 に 1 回目の放球の様子と放球メンバーの写真を示す。

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 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。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 8 回の審査会に出席した。

relative changes. Therefore, we can measure the relative changes of the isotope anomalies with infrared spectroscopy. We recently began the retrieval of isotopes of methane. Methane has isotopes such as <sup>12</sup>CH<sub>4</sub>, <sup>13</sup>CH<sub>4</sub>, and <sup>12</sup>CH<sub>3</sub>D. Fig.2 shows a fitting result for <sup>13</sup>CH<sub>4</sub> from the spectra in the 8-μm region. As for <sup>12</sup>CH<sub>3</sub>D, we are searching for adequate wavenumber regions to fit.

Associate Professor Murata participated in the 63rd Japanese Antarctic Research Expedition as a summer member from November 2021 to March 2022 and carried 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 (18 km at this time) for a long duration and observe momentum transport due to gravity waves in all frequency bands, and its horizontal distribution is clarified as well. By 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 future predictions made by the climate model. Three balloons were successfully launched from Syowa Station in January and February, followed by a level flight at an altitude of 18 km. Fig. 3 and 4 show the first launch on January 6 and a group photo of the launch members, respectively.

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

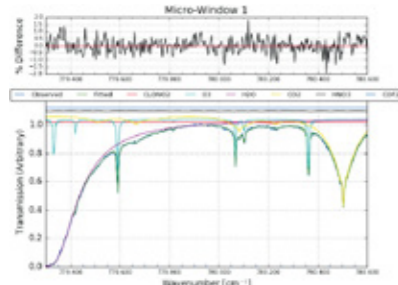


Fig.1 Fitting result for ClONO<sub>2</sub> from the spectrum observed on Jan. 25, 2021.

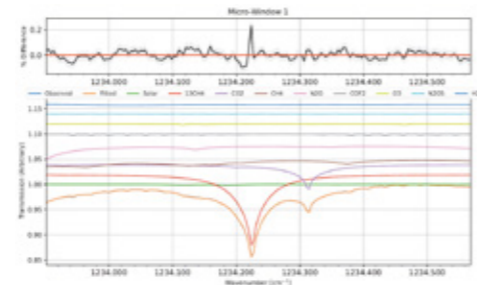


Fig.2 Fitting result for <sup>13</sup>CH<sub>4</sub> from the spectra observed in 2021.



Fig.3 The first launch on January 6. (Photo by Noriyuki Takeyoshi, JARE63)



Fig.4 Group photo of the launch members. (Photo by Kentaro Baba, JARE63)