

成層圏 NO₂ 高度分布の気球観測*

柴崎和夫**・鈴木勝久**・小川利紘**

概要

気球に搭載した分光器によって、波長域 427 ~ 451 nm の太陽スペクトルを観測した。太陽天頂角の小さい時（太陽天頂角 35°、測定高度 24 km）に観測したスペクトルを基準スペクトルとして、吸光スペクトル統計分析法を応用し、太陽天頂角が 90° 近くで得られたスペクトルより NO₂ 量を求めた。NO₂ 量の太陽天頂角に対する変化から、成層圏高度 14 ~ 35 km における NO₂ 密度分布を決定した。NO₂ 密度は高度 26 ~ 29 km で最大値 $(3.7 \pm 0.6) \times 10^9$ 分子・cm⁻³ を示す。高度 35 km の値は $(1.3 \pm 0.3) \times 10^9$ 分子・cm⁻³、14 km で $(1.1 \pm 0.5) \times 10^9$ 分子・cm⁻³ であった。得られた高度分布は可視域における他の観測結果と良く一致するが、赤外観測結果よりも約 2 倍大きい密度を与える。この違いは測定波長領域の違いに由来する系統的なものと思われる。

1. 序

上層大気中の NO_x (NO と NO₂) が成層圏オゾンを破壊する物質であることが指摘されてからほぼ 10 年になる。この間、反応機構の理論的な解明とともに、上層大気中の NO_x 分布の観測も行われてきた [1] ~ [6]。しかしながら、数少ない実測データは種々の時期・場所で得られたものであり、その上測定誤差もかなり大きく、大気中 NO_x 分布の動態を十分把握するにいたっていない。

我々は、1977 年以来地上から予備観測を続けてきた結果、高精度で大気 NO₂ 全量を測定する方法をほぼ確立することができた [7]。今回の気球観測は次の二つを目的として行った。すなわち、(1) 地上における大気 NO₂ 全量測定をより高精度で行うため、NO₂ 吸収のない高度における観測によって、基準となる太陽スペクトルデータを得ること、(2) 日没時の観測によって成層圏 NO₂ の高度分布を測定すること、である。

2. 観測装置

図 1 は観測装置の構成概念図である。観測装置は主としてサン・フォロワーと分光器より成る。

サン・フォロワーは田形に組んだ 4 枚の太陽電池をセンサーとし、2 枚の回転鏡を使って高度・方位の 2 軸で太陽追尾を行う。太陽光球全体の放射スペクトルを測定するので、追尾

* 宇宙研特別事業費による研究論文

** 東京大学理学部

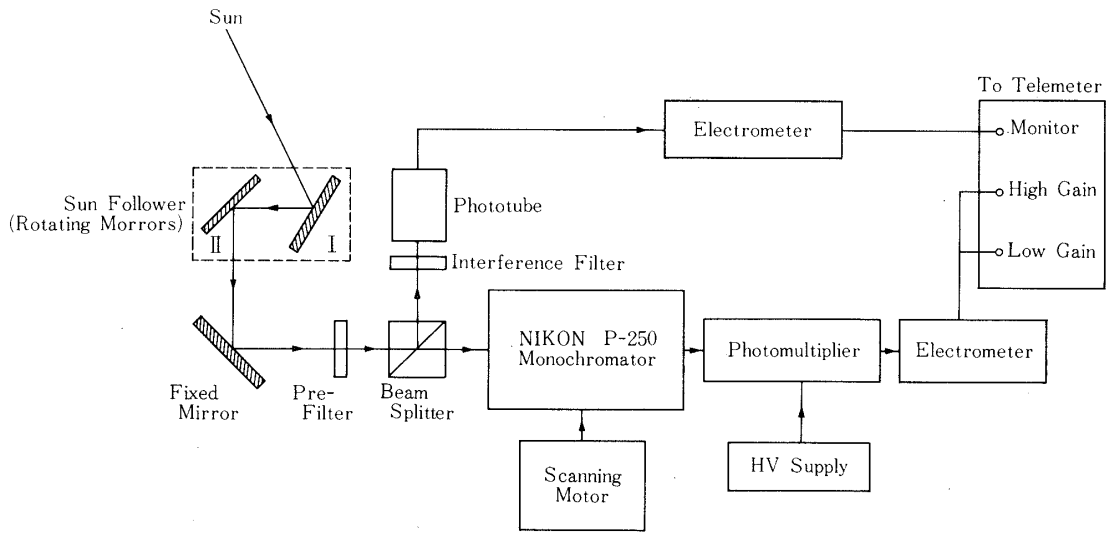


図1 観測装置の構成概念図

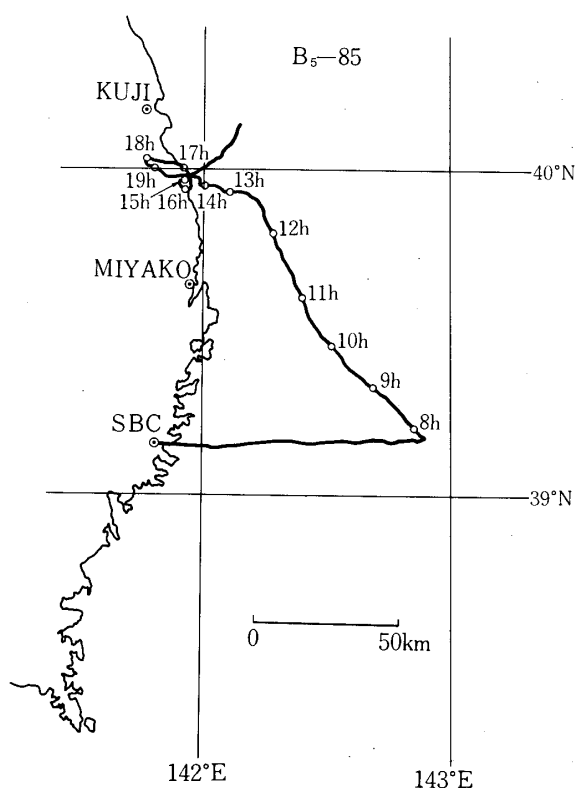
精度は 1° 程度で十分である。採光筒には視野の絞りをつけ、ここから入射した光は2枚の回転鏡によって分光器の入射スリットに導かれる(途中1枚固定鏡が入る)。入射スリットの前には観測波長領域以外の余分な入射光をカットして迷光を抑えるため色ガラスフィルター(B 440)を配置した。分光器の入射スリットの前にはビーム・スプリッターを置いて、入射光強度のモニターを行う。このモニターは干渉フィルターと光電管(R 727)から成り、測定中の太陽光強度変動を監視しサン・フォロワーの動作を確認するためのものである。干渉フィルターの透過波長域は $436 \pm 4 \text{ nm}$ である。

分光器はニコンP-250を使用した。回析格子は刻数1200本/mm、ブレード波長500 nm、刻線面積 $52 \times 52 \text{ mm}$ の標準装備である。スリットの幅、および高さは入射・出口スリットとも0.07 mm、4 mmにセットした。逆線分散は $30 \text{ \AA}/\text{mm}$ であるから、波長純度は 2 \AA である。この値は、地上観測の結果から最適分解能として定めたものである。波長走査機構は観測目的に合うよう改造した。走査域は $427 \sim 451 \text{ nm}$ で $1 \text{ \AA}/\text{sec}$ の速さで連続往復走査する。分光出力の検出には光電子増倍管(R 268)を用いた。この分光出力のほかに、テレメータを通して地上に電送した信号は入射光強度モニターの信号である。

3. 実験経過

観測装置を搭載した気球(B₅-85)は、1978年5月29日063159 JSTに三陸大気球観測所より放球され、偏西風に乗って東に流されながら上昇を続け、08^h JST頃基地東方約90 kmの沖合上空高度約24 kmで水平飛行に入った。気球はその後北西に向きを変えて徐々に陸地に近づき、14^hから20^h JST頃まで久慈市と宮古市の中間地点上空約20 km付近で停留した。ゴンドラは2044 JSTに久慈市東方海上上空で切り離された(図2)。

観測は気球が高度24 kmで水平飛行にはいった直後の0803 JSTから開始した。途中、太

図2 B₅-85 航跡図

陽高度が上って気球の陰に入ったため、サン・フォロワーの動作に異常が起こったので一時観測を中断(0922~1357 JST)したが、その後は1910 JST(太陽天頂角 93.7°)まで正常な観測を続けることができた。

4. データ解析

4.1 NO₂量の決定

NO₂量を求める方法は、吸光スペクトル統計分析法によった[7]。

太陽スペクトルは、太陽大気自身の吸収のために図3に見られるように複雑な構造を持つが、この影響を除き地球大気NO₂による吸収バンド構造を見出すためには、基準の太陽スペクトルとの比を取ってやる。ここで基準の太陽スペクトルとは、NO₂の吸収のない地球大気外で測定した太陽スペクトルである。この比は、次式のように表わせる。

$$\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} = f(\lambda) \exp\{-N \cdot \sigma(\lambda)\} \quad (1)$$

ここで、 $I(\lambda)$: 測定スペクトル強度
 $I_0(\lambda)$: 基準スペクトル強度

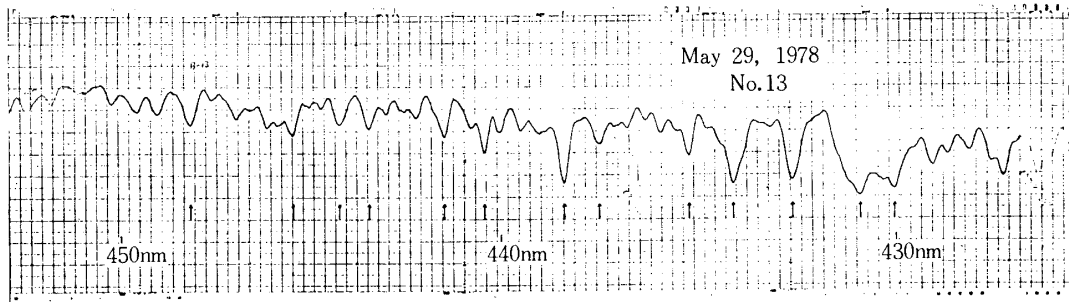


図3 太陽スペクトルの観測例. 図中の矢印は波長同定に用いた太陽吸収線の位置を示す.

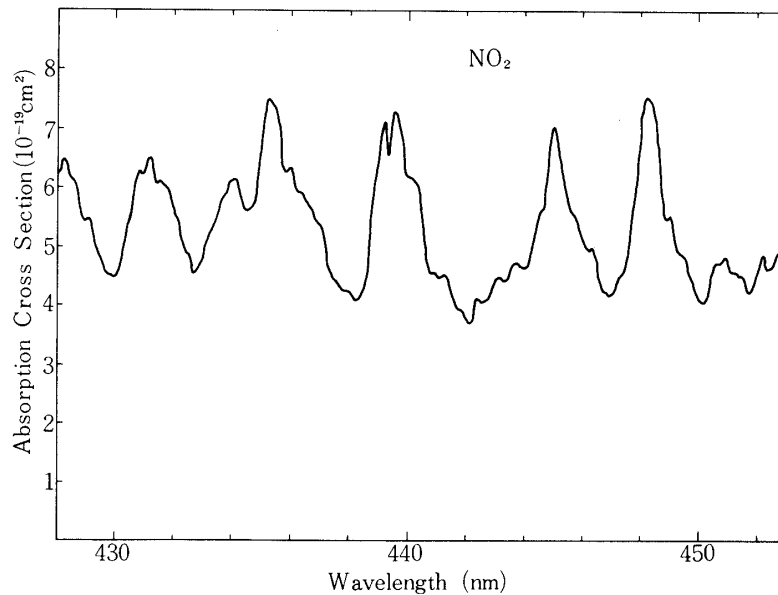


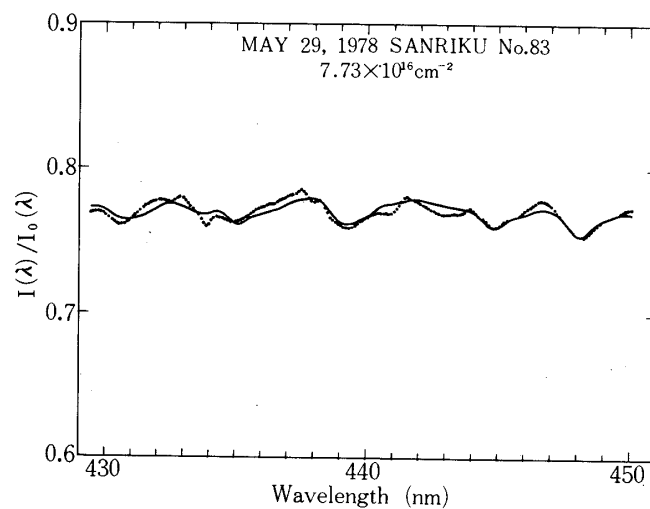
図4 NO₂吸収断面積 (H.S. Johnston未発表データ)

N : 入射する太陽光路に沿って積分したNO₂密度 (cm⁻²)

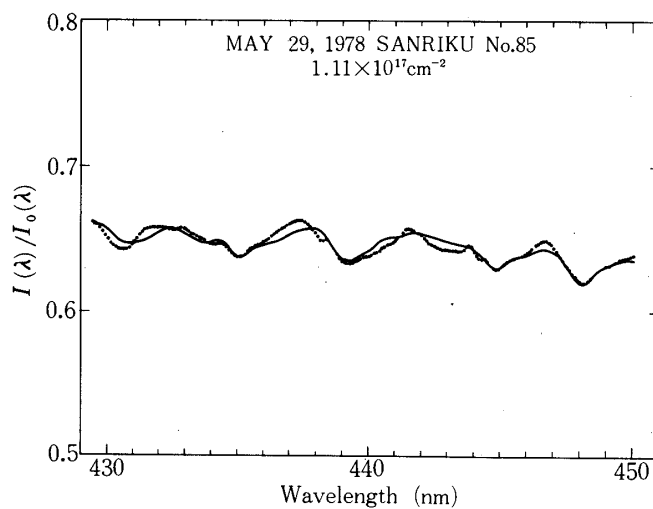
$\sigma(\lambda)$: 波長 λ でのNO₂吸収断面積 (cm²) (図4)

$f(\lambda)$: 装置特性関数 (装置の分光感度特性, レーリー散乱およびミー散乱等NO₂吸収以外の大気減光を含む)

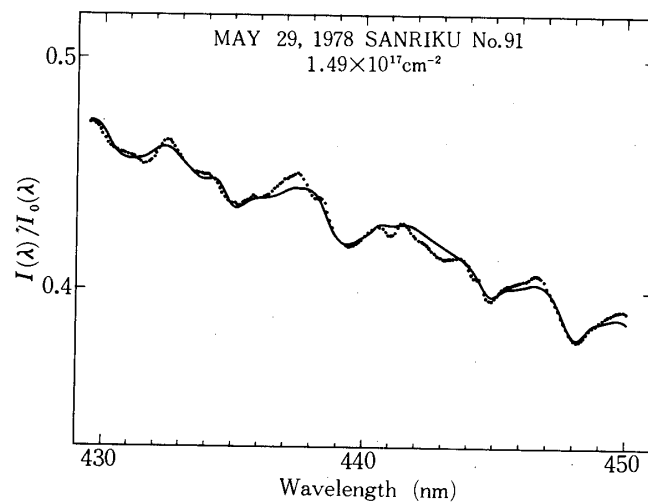
427 - 451 nmの波長域ではNO₂以外の分子吸収は無視してよい. したがって, この波長域においては $f(\lambda)$ は λ とともに緩やかに変化する関数であろう. 一方, NO₂の吸収量は小さいので(1)式の指数部はほぼ1に等しい. そこで, まず大体のスペクトル傾向を表現するために, (1)の代わりに $I(\lambda)/I_0(\lambda) = f_1(\lambda) = A + B\lambda + C\lambda^2 + D\lambda^3$ と置き, A, B, C, D の値を最小2乗法で求めて, 大まかな傾向を与える関数 $f_1(\lambda)$ を決めてやる. 次に, $f(\lambda)$



a) 183130-183526 JST, 太陽天頂角 87.6°



b) 184008-184404 JST, 太陽天頂角 89.7°



c) 184845-185241 JST, 太陽天頂角 90.5°

図5 吸光スペクトル統計分析法による解析結果例。点線が実測値，実線は最適曲線である。この最適曲線を与える NO_2 量 N は図に表示してある。

$= f_1(\lambda) \cdot \exp(a + b\lambda + c\lambda^2)$ として、(1)式を用いて再び最小2乗法によって a , b , c , および N を決める. $I(\lambda)/I_0(\lambda)$ のデータは 1 \AA 間隔にサンプリングした約200点のデータを使う. ただし, 実際のデータ解析に当っては, スペクトル強度を 0.2 \AA 間隔でサンプリングした後に平滑化を行って分解能を 5 \AA に落して処理している. これに対応して NO_2 の吸収断面積も 5 \AA の分解能に落したものを使う. 波長の同定は測定波長域内に見られる13本の太陽吸収線を選んで行った(図3中に矢印で示した). これにより, データ解析に伴う誤差を最小に抑えることができたと思われる.

図5 a), b), c) は解析結果の実例である. a) から c) にかけて太陽天頂角が大きくなるにつれて, 見かけの NO_2 量は 0.773 , 1.11 , $1.49 (\times 10^{17} \text{ cm}^{-2})$ と増大する様子が見られる. なお分散は, 各々 11.9 , 10.0 , 8.74% である.

この解析で用いた基準の太陽スペクトルは, 高度 24 km , 太陽天頂角 35° の条件で取得したものである. NO_2 は高度 24 km 以上にも存在するので, このスペクトルを基準とすることに疑問があるかもしれない. 高度 24 km 以上に存在する NO_2 量は $4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 程度で, これ

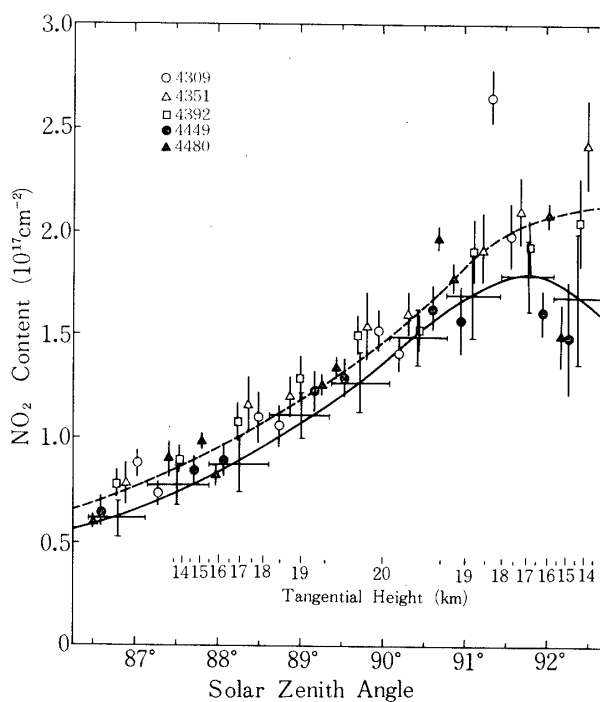


図6 太陽天頂角に対する NO_2 量の変化. 天頂角に対応する接線高度 (太陽光線の地表への最近接点高度) も示してあるが, これは大気屈折効果を考慮に入れて計算したものである. 横に引いた棒線は $429-451 \text{ nm}$ 全域をまとめて取扱った場合の NO_2 量で, この値に対する最適曲線が実線で与えてある. 各点は五つの吸収帯ごとに求めた NO_2 量で, 対応する吸収帯のピークの波長で示してある. 破線がこれらの点に対する最適曲線である. 縦の棒線は統計誤差を与える.

は0.15～0.3%の吸収を与えることになる。一方、実際に問題としている吸収量は5～10%程度であるから、この寄与を無視しても10%の精度は十分保障される。

この観測では、所定の波長領域を走査するのに4分間必要である。日没時にはこの間に太陽天頂角が約1°変化するので、大気に入射する太陽光の幾何学的関係も相当変化する。したがって、求めたNO₂量の空間分解能は悪くなる。幸いなことに、日没時は有効光路長が長く吸収量も十分大きいので、図4に示されたNO₂の吸収帯ごとに波長域を分けて前述と同様な解析を行っても十分な精度が得られるはずである。実際、4292–4335 Å, 4315–4389 Å, 4369–4428 Å, 4408–4477 Å, 4457–4500 Åの五つの波長域に分けて解析する方法も試みた。ただし、この場合には $f(\lambda) = \exp(a + b\lambda + c\lambda^2)$ と置いた。

求めたNO₂量を太陽天頂角に対してプロットしたのが図6である。スペクトル全域をひとまとめとして求めた値は、区分した波長帯ごとに求めた値に比べて小さ目である。常識的には、区分波長帯ごとの値の平均値が全域に対する値となりそうなものである。実際にそうになっていないのは、恐らく次のような理由によるものであろう。すなわち、データに不規則な誤差がある場合には波長全域で見るとNO₂の吸収曲線の構造がつぶれて見えるのに対し、個々の吸収帯を取り出して見た場合には吸収帯の中心部が強調されることになるからだと思う。

4.2 NO₂高度分布の決定

大気が球面成層分布をしており、その層内ではNO₂密度は一様だと仮定する。 i 番目の層のNO₂密度を n_i (cm⁻³)、太陽天頂角 χ のときに i 番目の層を通過する太陽光の光路長を $l_i(\chi)$ とすると、光路に沿って積分したNO₂量は

$$N(\chi) = \sum_i l_i(\chi) \cdot n_i \quad (2)$$

と表わせる。異なった太陽天頂角に対するNO₂量の測定値のセットが得られれば、その測定値の数 k に対応した数だけ大気層を分割し、

$$\begin{pmatrix} N(\chi_1) \\ \vdots \\ N(\chi_k) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} l_{11} & l_{12} & \cdots & l_{1k} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ l_{k1} & l_{k2} & & l_{kk} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_1 \\ \vdots \\ n_k \end{pmatrix} \quad \text{ここで, } l_{ij} = l_j(\chi_i) \quad (3)$$

の形の連立方程式を作り、これを解くことによって原理的には $\{n_1, \dots, n_k\}$ を求めることができる。しかしながら、実際の数値計算を試みしてみると係数行列 $\{l_{ij}\}$ は非正則に近い形をしており、(3)を一意的に解くことは極めて難しいことがわかる。太陽天頂角が90°より大きい場合には、(2)、(3)式の形が異なるので、この場合には容易に一意的解法が可能である。

そこで我々は、便宜上太陽天頂角が90°以上の場合と以下の場合とを分けて取扱う。日没時の観測は20kmの高度で行われたので、太陽天頂角が90°より小さい場合は高度20km以上を、90°以上の場合は20km以下を対象とすることになる。

4.2.1 高度20 km以上

太陽天頂角が 90° より小さい場合は(3)を解くことをあきらめて、試行錯誤的に NO_2 密度の高度分布を決めることにした。すなわち、20km以上の NO_2 密度分布の相対的な形を仮定すれば、測定値 $N(\chi)$ に最もよく合うような絶対値のスケール・ファクターは容易に決めることができる。 NO_2 の分布の形を適当に変えてみて、その中から $N(\chi)$ を最も良く再現できるものを選ぶわけである。 NO_2 の分布の形としては今までに得られた実測データを参考にした。

高度20km以上の NO_2 密度分布は一意的な解とはいえないが、感応テストを試みてみると、 $N(\chi)$ の値は与える NO_2 分布の形に敏感である。結果的には50%程度の精度で密度分布が定まるものと期待される。図7には、感応テストの実例を示す。 NO_2 密度分布を仮定し、対応する $N(\chi)$ の曲線を求める、という手順の繰返しにより高度分布を決めるのである。

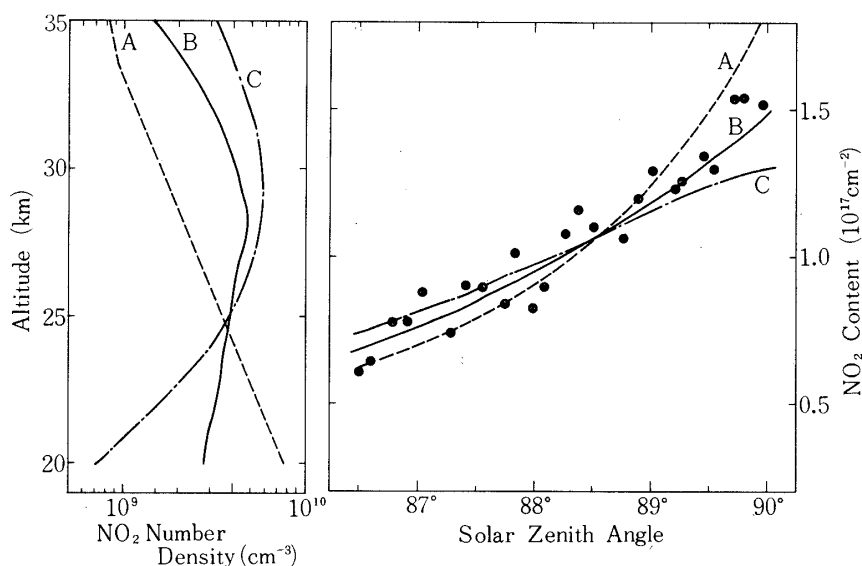


図7 30km以上の NO_2 分布型に対する感応テスト例. 左図のA, B, Cの高度分布を仮定すると、これに対して右図の NO_2 量曲線A, B, Cが得られる。黒丸は測定値でBが最適曲線であることがわかる。

4.2.2 高度14~20 km

太陽天頂角が 90° より大きい場合には測定高度以下の分布に関する情報が得られる。この場合(2)式は、

$$N(\chi_k) - N(180^\circ - \chi_k) = \sum_{i=1}^k l_{ki} \cdot n_i \quad (2)'$$

の形に書き換えられる(図8参照)。ここで、 k は観測高度から下方に向って数えた大気層の番号である。 χ_k は接線高度が k 番目の層に来るように決める。 $N(180^\circ - \chi_k)$ は、太陽天頂

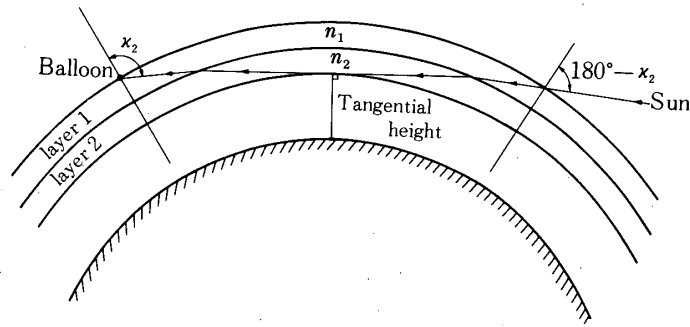


図8 太陽天頂角が 90° より大きいときの太陽光路の幾何配置($k=2$ の場合)

角が 90° より小さい場合の測定値からとってくればよいから、(2)'式は n_1 から順々に解けることになる。

5. 結果と検討

求めた NO_2 密度の高度分布を図9に示す。実線は、測定スペクトル全域をひとまとめにして処理したものである。高度24~29kmに幅広いピークを持ち、その値は $(3.7 \pm 0.6) \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ である。一方、高度34kmでは $(1.6 \pm 0.2) \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 、14kmでは $(1.1 \pm 0.5) \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ となる。破線は五つに区分した波長帯ごとに求めたもので、実線よりやや大きい

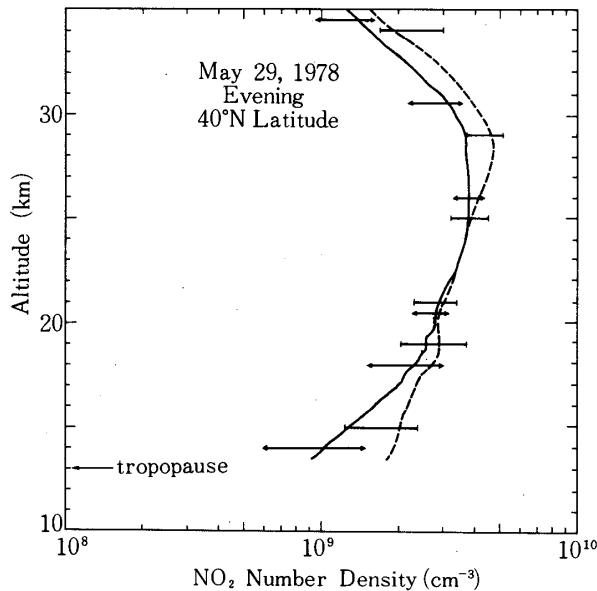


図9 得られた NO_2 高度分布。実線と破線は図6の実線と破線に対応する。水平の棒線は誤差を示す(矢印のついた棒線が実線に対する誤差)

値である。高度14~19kmで両者の差は比較的大きいが、これは図6において太陽天頂角が 91° より大きいところで両者の差が大きくなっていることと対応している。しかし、この両者の差も誤差の範囲内に入っている。スペクトル全域から求めた値の方が分散も少ないので、ここでは一応この値(実線)をこの観測の代表値として採用する。

観測時の対流圏界面高度は13kmであった。下部成層圏で NO_2 密度勾配が正になっているということは、 NO_2 源が上部成層圏にあるという考え方と一致する。対流圏から下部成層圏への NO_2 の供給は、仮にあったとしても、分布を決める主要因ではないことがわかる。この観測で接線高度が14 kmの場合は、能代西方約100 kmの日本海上空を見ることになる。日本附近上空では汚染のため NO_2 濃度が高いものと予想されるが、この影響が成層圏までおよんでいることを示す積極的な証拠は見いだせない。

図10は他の結果と比較したものである。表1にはこれらの観測方法、時期・場所などの違いをまとめて示してある。

図10から、 NO_2 の高度分布は大まかに見ると一定の傾向があることがわかる。しかし、詳細に見れば観測ごとによりかなりの変化がある。表1を参照しながら比較しても、季節や緯度による系統的な違いによるものではなさそうである。また、いずれの観測も日没時に行われているので、日変化の影響も現われてこないはずである。したがって、この違いは、測定誤差によるものか、あるいは NO_2 分布自体が場所や時期で変動することによるものかである。この点について特に注目したいのは、我々の結果が、同じ可視波長域での吸光法を用いた Kerr and McElroy [1]の結果と良く一致している点である。彼らはこの他にも観測を行っているが、すべて良く一致する結果を得ている。一方、Ackermanたち[2]、Fontanellaたち[3]の結果はお互い良く一致している。Ackermanたちには他にもう一つ観測例が

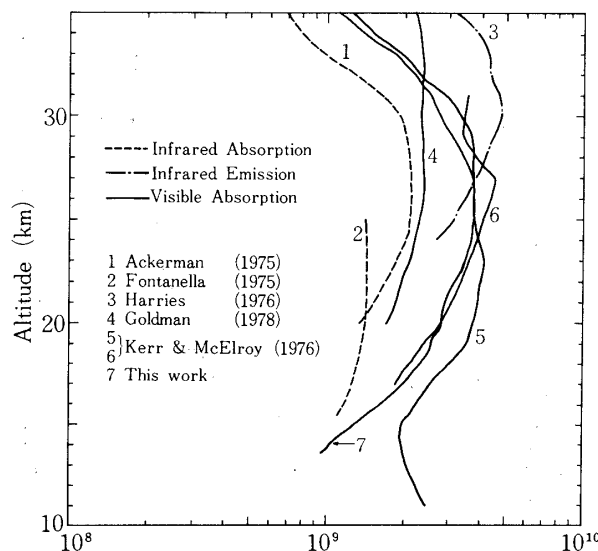


図10 NO_2 観測値の比較

表1 図10に示した観測の地球物理的パラメータ

Number	Date	Latitude	Method	Reference
1	May 13, 1974	44° N	Infrared Absorption	[2]
2	July 4, 17, and 23, 1973	46°-51° N	Infrared Absorption	[3]
3	September 12 and 20, 1974	44° N	Infrared Emission	[5]
4	February 9, 1977	33° N	Visible Differential Absorption	[4]
5	July 22, 1974	58° N	Visible Differential Absorption	[1]
6	August 17, 1975	51° N	Visible Differential Absorption	[1]
7	May 29, 1978	40° N	Visible Absorption	This work

あるが、これもこの図に示されたものと良く合っている。これらの観測値は赤外吸光法によるものであるが、可視域での測定値に比べて全高度で約1/2小さい。Goldmanたち[4]の観測は可視域であるが、誤差が大きいので我々やKerr and McElroyの結果との違いは重要視しない。また、Harriesたち[5]のは赤外発光法であるので一応除外して考えると、可視と赤外の観測では系統的な差が生じているように見える。このような系統的な誤差の原因としては、解析に用いた吸収係数(吸収断面積)の誤差が考えられるが、確かな結論は今後の研究を待って下すべきであろう。

6. 結 語

NO₂ 吸収のない高度で基準太陽スペクトルを取得すること、およびNO₂ 高度分布の観測という二つの所期の目的を十分に達成することができた。幸い、使用した分光器が無事回収されたので、これを基準にして地上観測・航空機観測を行い、日本上空のNO₂ 分布の様相を調べていきたい。

成層圏NO₂の高度分布に関しては、貴重な知見が得られた。特に、測定方法によって系統的な差を生ずるらしいことが明らかになった。これを明確にするために異なった方法による同時比較観測が望まれる。また、成層圏観測の今後の課題として、朝と夕方、あるいは月を光源にした夜間観測によって成層圏NO₂の日変化を明らかにすることもあげられる。

最後に、気球観測にあたってお世話になった宇宙航空研究所西村純教授はじめ研究室のスタッフの皆様に深く感謝致します。

1979年5月9日

参 考 文 献

- [1] Kerr, J.B. and C.T. McElroy: Atmosphere **14**, 166 (1976).
- [2] Ackerman, M., J.C. Fontanella, D. Frimout, A. Girard, N. Louisnard, and C. Muller: Planet. Space Sci. **23**, 651 (1975).
- [3] Fontanella, J.C., A. Girard, L. Gramont, and N. Louisnard: Appl. Opt. **14**, 825 (1975).
- [4] Goldman, A., F.G. Fernald, W.J. Williams, and D.G. Murcray: Geophys. Res. Lett. **5**, 257 (1978).
- [5] Harries, J.E., D.G. Moss, N.R.W. Swann, G.F. Neill, and P. Gildwarg: Nature **259**, 300 (1976).
- [6] Ridley, B.A., J.T. Bruin, H.I. Schiff, and J.C. McConnell: Atmosphere **14**, 180(1976).
- [7] 柴崎和夫, 鈴木勝久, 小川利紘, 等松隆夫: 宇宙研報告 **15**, (1 B), 83 (1979).