

## クライオサンプリングによる成層圏大気の長期観測と今後の展開

菅原敏<sup>1</sup>, 青木周司<sup>2</sup>, 森本真司<sup>2</sup>, 本田秀之<sup>2</sup>, 中澤高清<sup>2</sup>, 豊田栄<sup>3</sup>, 石戸谷重之<sup>4</sup>,  
後藤大輔<sup>5</sup>, 梅澤拓<sup>6</sup>, 長谷部文雄<sup>7</sup>, 石島健太郎<sup>8</sup>, 飯嶋一征<sup>9</sup>, 福家英之<sup>9</sup>, 吉田哲也<sup>9</sup>

<sup>1</sup>宮城教育大学, <sup>2</sup>東北大学大学院理学研究科, <sup>3</sup>東京工業大学物質理工学院, <sup>4</sup>産業技術総合研究所,  
<sup>5</sup>国立極地研究所, <sup>6</sup>国立環境研究所, <sup>7</sup>北海道大学大学院地球環境科学研究院, <sup>8</sup>気象研究所,  
<sup>9</sup>宇宙科学研究所

### 1. 過去35年間のクライオサンプリング実験

成層圏大気のクライオジェニック・サンプリング気球実験（以下、クライオ実験）が国内において本格的に開始されたのは1985年である(Honda et al., 1996, Nakazawa et al., 1995, 2002)。成層圏大気年齢の解明を主な目的とした昨年度（2020年度）の気球実験の成功をうけて、それまでの過去35年間の期間に実施されたクライオ実験は延べ33回となった（図1）。このうち、国内の実験は、旧大気球観測所があった三陸（SBC）において22回、現在の大樹航空宇宙実験場（TARF）において3回、合計25回であり、そのうちの21回の実験において大気のサンプリングに成功している。1997年以降は、国内実験に加えて、海外での観測を展開し、北極圏の冬季極渦内観測のためのスウェーデン・キルナでの実験（Aoki et al., 2003）を皮切りに、南極昭和基地、熱帯域へと範囲を拡大し、合計8回の海外実験を実施し、その全てで大気採取に成功している。南極実験では、4～6年の間において、合計4回の南極観測隊行動において実施された（Goto et al., 2017, Ishidoya et al., 2018）。初期の2回は、国内でのクライオ実験で使用しているものと同じ、液体ヘリウムを使用する大型サンプラーを使用した。2007年頃より、液体ヘリウムを使用しない新たな小型サンプラー（JT サンプラー）の開発を進め（Morimoto et al., 2009）、液体ヘリウムの入手が困難である南極実験において、2007年12月～2008年1月に初めて使用された。その成功をうけて、2012年には、同様に液体ヘリウムの入手が困難である赤道太平洋上の観測船・白鳳丸での船上からの放球による実験（Fuke et al., 2014）、2013年には南極でのJT サンプラーを用いた2回目の観測、さらに2015年にはインドネシアのビアク島での熱帯大気統合観測キャンペーン（CUBE/Biak, Hasebe et al., 2018; Sugawara et al., 2018）が実施され、いずれも大気採取に成功し、成果をあげている。この35年間の期間の前半（1985～2002年）は、大気採取が不成功だった実験も含めて、年に1回の頻度で実験を実施していたが、後半の期間では様々な事情により3～5年間に一度程度の頻度になっている。国内における長期観測と、積極的な海外観測の展開により、論文発表などの成果は現在も活発に行われている。この35年間に発表された研究論文（査読付き）は、クライオ実験の観測データを直接用いている主要なものだけでも36件あり、国際的な共同研究の成果も含まれている。クライオ気球実験そのものは成層圏大気を採取することが実験の目的であり、それ自体は35年間変わらないが、大気サンプルの分析結果から得られる科学的な知見は分析項目に応じて多岐にわたり、常に複数の研究テーマを内包しながら実験が進められてきた。同時に、新たな気体分析技術の発展に伴って分析項目を徐々に増やしてきており、それに伴って新たな研究テーマも加えられてきた。さらに、気球実験の実施ごとに一部の気体サンプルをアーカイブとして保管しているため、新たな分析技術を過去の気体サンプルにも応用できるという利点も生かしてきた。このように、クライオ実験は、長期のモニタリングのための継続的な研究と、分析技術の発展に伴う新しい研究の両者を同時に進められるという大きな利点を有する。

### 2. 長期観測の成果と課題

クライオ実験による成層圏大気の研究は、主に温室効果気体やオゾン層破壊関連気体の濃度や同位体比を中心に始められた。これらの気体成分は、人為的な活動によって対流圏において経年的に

変化しているものが多いため、対流圏・成層圏間の大気輸送に伴って、成層圏においても経年的な変化が起こることが予想される。したがって、対流圏と同様に、長期間にわたってその変化をモニターするための観測が不可欠である。クライオ実験では主要な温室効果気体である  $\text{CO}_2$ 、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{N}_2\text{O}$  の日本上空の濃度を長期間観測しており (Nakazawa et al., 2002)、成層圏において安定な  $\text{CO}_2$ 、 $\text{SF}_6$  については、それぞれ 35 年間および 32 年間のレコードを有する。それらの濃度は、対流圏での濃度増加に対して時間遅れを伴って変化しており、その性質から大気の年齢を推定するトレーサーとして用いられてきた (Engel et al., 2009, Ray et al., 2014, Sugawara et al., 2018)。一方、 $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  はともに成層圏において消滅するため、日本上空の高度 30 km 以上では、それぞれの濃度は 600~800ppbv、および 50ppbv 以下にまで低下する。そのため、濃度の変動に対する化学過程の寄与が大きく、一定の高度におけるそれぞれの観測濃度を単純な時系列データとして扱っても長期傾向は検出できない。そこで、Rohs et al.(2006)の手法にならって、 $\text{N}_2\text{O}$  濃度の対流圏値からの減少を化学過程の進行度の指標と考へて、高度の代わりに  $\text{N}_2\text{O}$  濃度減少割合で  $\text{CH}_4$  濃度を平均することで、成層圏  $\text{CH}_4$  濃度の長期的な増加傾向が検出できる。この手法を、過去 35 年間の実験結果に適用した結果、対流圏における  $\text{CH}_4$  濃度の変動が成層圏に時間遅れを伴いながら伝搬している様子が明瞭となった。特に 2000 年前後の対流圏における  $\text{CH}_4$  濃度増加傾向の鈍化と、その後の再増加の傾向が成層圏でも見られることが明らかになった。温室効果気体の濃度のみならず、それらの同位体についても同様な長期変化の研究が可能である。同位体の分析結果からは、それらの化学過程に関する重要な情報が得られるため、化学過程の長期的な変化を明らかにできる可能性がある。すでに、 $\text{CO}_2$  の炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) では明瞭な長期変化が検出できており、大気年齢の研究への応用や、 $\text{CH}_4$  の消滅過程における同位体効果と重力分離の影響などと合わせた解析が進められている。今後は  $\text{CH}_4$  の炭素と水素の同位体比、 $\text{N}_2\text{O}$  のアイソトポマー (Toyoda et al., 2001, 2004, 2018) の長期変化の研究を進める予定である。近年の新しい研究テーマである重力分離と大気輸送過程の研究への応用についても、今後の長期観測やアーカイブの活用などが期待される。特に、成層圏の重力分離の発見、さらにその長期変動が対流圏の  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比の長期変動に与える影響については、世界に先駆けて本グループが報告してきた (Ishidoya et al., 2006, 2008, 2013, 2018, 2021)。この研究は、成層圏のブリューワー・ドブソン循環の長期変動に関して重要な知見を与えるだけでなく、対流圏の  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比の長期トレンドの正確な把握を通じて地球温暖化の研究に革新的な成果をもたらすと期待されている。(その研究の詳細は、本シンポジウムの石戸谷らの発表を参照されたい。) これらの新しい研究をさらに発展させるためにも、クライオ実験による成層圏の長期観測は継続しなければならない。

### 3. クライオ実験の今後の展開

長期観測に関する様々な成果は出始めているが、大気年齢、 $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  の化学過程、重力分離などの長期変化の詳細は未だ未解明である。今後は、特に成層圏の輸送過程と化学過程の両者の長期変動の解明に着目して研究を進めていく必要がある (図 2)。そのためには、これまでと同様に高精度分析に耐えうる質の高い成層圏大気サンプルが必要となる。クライオ実験に代表される Whole Air Sampling (WAS) は、一般に観測機が大型になるため、大気球を用いた実験になり、観測頻度を向上させることは困難である。また、冷媒に液体ヘリウムや液体ネオンを必要とするため、観測機の準備や費用の面でも長期間の観測の継続・維持は容易ではない。前述のとおり、後者のデメリットを解決するために、JT サンプラーを開発し、主に海外実験で使用してきた。2 台の JT サンプラーを連結し、異なる 2 高度で採取が可能な 2 連 JT サンプラーでは、重量がおよそ 40 kg であり、大型サンプラーに比べれば格段に小型軽量化されている。しかし、11 高度でのサンプリングが可能であり、かつ、高高度でも十分な量のサンプリングが可能である大型サンプラーに比

べると、JT サンプラーの高度分解能は下がる。そのために、海外実験では JT サンプラーを用いて短期間に複数回の気球実験を実施してきた。このような大型と小型の両サンプラーの長所短所を検討し、国内では液体ヘリウムを使った大型サンプラーを継続して使用することを選択してきた。近年、欧米を中心に WAS を代替する方法として AirCore 観測が盛んに行われている (Engel et al., 2017)。ゴム気球での飛揚が可能であり、観測頻度を高めることができる。AirCore は、主に大気年齢を推定するための濃度観測や、温室効果気体の同位体観測などに使用されている。ただし、陸上回収が容易である実験環境に適しているため、日本国内では困難が予想される。また、AirCore では、大気は長いチューブ内へ現場の大気圧に応じて拡散しながらサンプリングされるため、元の大気の全ての組成を完全に保持し、かつ復元できるわけではない。特に、クライオ実験によって発見された成層圏大気成分の重力分離は、極めて微小な成分や同位体比の差を計測することが必要であるため、拡散によって変質を受けた AirCore の大気サンプルでは重力分離の観測は不可能と考えられる。したがって、クライオ実験による高品質の WAS を継続することは、今後も大きな科学的意義を持つ。そのため、本研究グループは、大型サンプラーと小型サンプラーの両方の基本的な技術を継承しつつ、少ない放球機会に対応できるように観測機のバージョンアップを図る計画を立てている。大型サンプラーについては、従来の真空・排気系・バルブ駆動系のパーツや、回路系などを交換することにより、観測機の準備作業に要する時間や労力を小さくする。小型サンプラーについては、南極観測などの将来的な応用を目指して、弱点である高度分解能を補うために、現在の 2 連から、さらなる多連化を図る。これらの改良された大型サンプラーと多連化小型サンプラーの両方について、今後 5 年間程度の期間をめどに国内実験を実施したいと考えており、そのための予算申請を進めている。

#### 参考文献

- Aoki, S. et al.: Carbon dioxide variations in the stratosphere over Japan, Scandinavia and Antarctica, *Tellus*, **55B**, 178-186, 2003.
- Engel, A. et al.: Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years, *Nat. Geosci.*, **2**, 28-31, doi: 10.1038/ngeo388, 2009.
- Engel, A. et al.: Mean age of stratospheric air derived from AirCore observations, *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 6825-6838, <https://doi.org/10.5194/acp-17-6825-2017>, 2017.
- Fuke, H. et al.: Balloon Launch and Flight Operation from the Research Vessel Hakuho Maru for Stratospheric Air Sampling over the Eastern Pacific Equator, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, **31**, 1540-1548, doi: <https://doi.org/10.1175/JTECH-D-13-00248.1>, 2014.
- Goto, D. et al.: Vertical profiles and temporal variations of greenhouse gases in the stratosphere over Syowa Station, Antarctica, *SOLA* **13**, 224-229, doi:10.2151/sola.2017-041, 2017.
- Hasebe, F. et al.: Coordinated Upper-troposphere-to-stratosphere Balloon Experiment in Biak (CUBE/Biak), *Bulletin of the American Meteorological Society*. **99**. 10.1175/BAMS-D-16-0289.1, 2018.
- Honda, H. et al.: Cryogenic air sampling system for measurements of the concentrations of stratospheric trace gases and their isotopic ratios over Antarctica. *J. Geomagn. Geoelectr.*, **48**, 1145-1155, 1996.
- Ishidoya, S. et al.: Vertical profiles of the O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> ratio in the stratosphere over Japan and Antarctica, *Geophys. Res. Lett.*, **33**, L13701, doi:10.1029/2006GL025886, 2006.
- Ishidoya, S. et al.: Gravitational separation of major atmospheric components of nitrogen and oxygen in the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **35**, L03811, doi:10.1029/2007GL030456, 2008.
- Ishidoya, S. et al.: Gravitational separation in the stratosphere – a new indicator of atmospheric circulation, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 8787-8796, doi:10.5194/acp-13-8787-2013, 2013.
- Ishidoya, S. et al.: Gravitational separation of the stratospheric air over Syowa, Antarctica and its connection with meteorological fields, *Atmos. Sci. Lett.* **2018**;e857. <https://doi.org/10.1002/asl.857>, 2018.
- Ishidoya S. et al.: Secular change in atmospheric Ar/N<sub>2</sub> and its implications for ocean heat uptake and Brewer–Dobson circulation, *Atmos. Chem. Phys.*, **21**, 1357-1373, <https://doi.org/10.5194/acp-21-1357-2021>, 2021.
- Morimoto, S. et al.: A new compact cryogenic air sampler and its application in stratospheric greenhouse gas observation at Syowa Station, Antarctica, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, **26**, 2182-2191, 2009.
- Nakazawa, T. et al.: Measurements of the stratospheric carbon dioxide concentration over Japan using a balloon-borne cryogenic sampler, *Geophys. Res. Lett.*, **22**, No. 10, P. 1229, doi:10.1029/95GL01188, 1995.

Nakazawa, T. et al.: Variations of stratospheric trace gases measured using a balloon-borne cryogenic sampler, *Advances in Space Research*, **30**, 2002,1349-1357, doi:10.1016/S0273-1177(02)00551-3., 2002.

Ray, E. A., et al., Improving stratospheric transport trend analysis based on SF<sub>6</sub> and CO<sub>2</sub> measurements, *J. Geophys. Res. Atmos.*, **119**, 14,110-14,128, doi:10.1002/2014JD021802, 2014.

Rohs, S. et al.: Long-term changes of methane and hydrogen in the stratosphere in the period 1978-2003 and their impact on the abundance of stratospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, **111**, D14315, doi:10.1029/2005JD006877, 2006.

Sugawara, S. et al.: Age and gravitational separation of the stratospheric air over Indonesia, *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, 1819-1833, https://doi.org/10.5194/acp-18-1819-2018, 2018.

Toyoda, S. et al.: Fractionation of N<sub>2</sub>O isotopomers in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **106**, 7515-7522, 2001.

Toyoda, S. et al.: Temporal and latitudinal distributions of stratospheric N<sub>2</sub>O isotopomers, *J. Geophys. Res.*, **109**, D08308, doi: 10.1029/2003JD004316, 2004.

Toyoda, S. et al.: Vertical distributions of N<sub>2</sub>O isotopocules in the equatorial stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, 833-844, https://doi.org/10.5194/acp-18-833-2018, 2018.

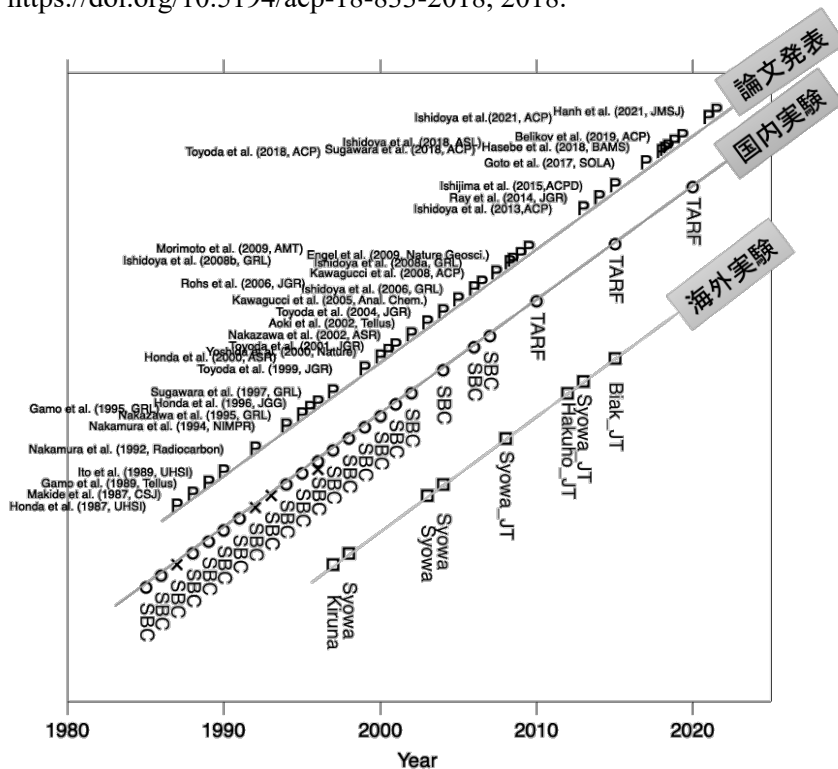


図1. 過去35年間のクライオサンプリング実験と査読付き論文発表の推移。丸と四角は実験成功、バツは不成功の実験を示す。

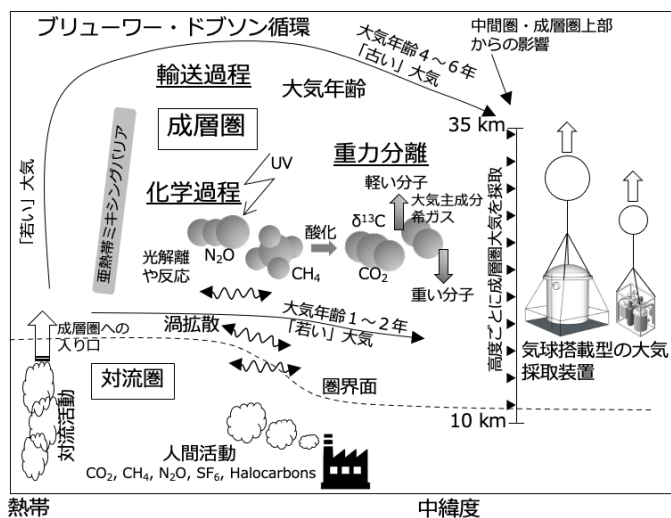


図2. 成層圏における物質循環の描像と気球実験の概略図