

J-Tクーラーを用いた小型成層圏大気クライオサンプラーの開発

森本 真司¹, 山内 恭¹, 本田 秀之², 青木 周司³, 中澤 高清³
菅原 敏⁴, 石戸谷 重之³, 飯嶋 一征², 吉田 哲也²

Development of a compact cryogenic sampler for stratospheric air sampling using J-T mini cooler

By

Shinji MORIMOTO¹, Takashi YAMANOUCHI¹, Hideyuki HONDA², Shuji AOKI³,
Takakiyo NAKAZAWA³, Satoshi SUGAWARA⁴, Shigeyuki ISHIDOYA³,
Issei IJIMA² and Tetsuya YOSHIDA²

Abstract: A compact cryogenic whole air sampler was developed using Joule-Thomson (J-T) mini cooler. The J-T cooler could produce cooling through the J-T expansion of high-pressure neon gas. The compact sampler used the cooling, thus produced, to collect stratospheric air samples cryogenically. Our laboratory experiments showed the compact sampler could collect air samples of 2.8 and 7.2 L_{STP} at the sample pressures of 25 and 200 hPa, respectively, in 4 minutes, when the neon gas was supplied from a 2-L cylinder of 19.0 MPa in pressure. Concentrations of CO₂ and CH₄ and carbon isotope ratio of CH₄ of the collected samples were confirmed to be unchanged. A balloon-borne stratospheric air sampling experiment with the compact sampler was conducted at Sanriku Balloon Center on June 4, 2007, resulting that the sampler worked as expected in the stratosphere.

Keywords: stratospheric air, greenhouse gas, cryogenic sampler

概 要

ジュール・トムソン (J-T) ミニクーラーに高圧ネオンガスを供給したときに発生する寒冷を利用して低圧の成層圏大気を固化採取する, 新たな小型クライオサンプラー (J-T サンプラー) を開発した. J-T サンプラーを用いて実験室内で低圧大気採取実験を行ったところ, ネオンガスを 19.0MPa 充填の 2L 高压容器から供給したとき 2.8L_{STP} (試料圧力 25hPa の場合) ~7.2L_{STP} (同 200hPa の場合) の大気試料を採取可能であった. また, J-T サンプラーで採取した大気試料の CO₂, CH₄ 濃度, そして CH₄ の炭素同位体比は変化しないことを確認した. 2007 年 6 月に三陸大気球観測所で J-T サンプラーの飛揚試験を行い, 本サンプラーが成層圏でも正常に機能することを確認した.

キーワード: 成層圏大気 温室効果気体 クライオサンプラー

¹ 情報・システム研究機構 国立極地研究所

² 宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究本部

³ 東北大学大学院理学研究科

⁴ 宮城教育大学

1. はじめに

南極域成層圏における温室効果気体・オゾン破壊関連気体の分布と変動を明らかにするために、1998年と2003-2004年の合計3度にわたって、南極・昭和基地において大気球を用いた成層圏大気クライオサンプリング実験が行われた[1][2]。すでに報告されているとおり、全ての実験で高度10-30kmの成層圏大気試料が採取され、各種気体濃度および同位体比の詳細な鉛直分布と経年変化傾向が明らかになっている。これら過去3回の実験では、国内で使用されている大型クライオサンプラーを昭和基地に持ち込み、満膨張時容積30,000m³の大型気球を用いて成層圏まで飛揚させた。大型クライオサンプラーは、試料容器を液体ヘリウムで4Kに冷却し希薄な成層圏大気を固化採取する方式であり、大量の液体ヘリウムを必要とする。これまでの昭和基地実験では、日本もしくはオーストラリアでの液体ヘリウムの調達と南極観測船「しらせ」による輸送、及び昭和基地での製造によって液体ヘリウムを確保したが、その輸送・製造に多大な労力が必要であった。さらに、サンプラーの重量が350kgであることから、大型気球による放球に気球工学専門家の助力が必要であり、かつ成層圏大気採集後のサンプラー回収も「しらせ」搭載ヘリコプターによるスリング輸送が必要である等、昭和基地で多数回の成層圏大気採取実験を継続することは困難であった。今後、南極域成層圏での温室効果気体観測を継続し、経年変化傾向を追跡するために、昭和基地現地での取り扱いが容易で小型の気球で飛揚させることが可能な、小型の大気サンプラーの開発が求められていた。

我々は、Joule-Thomson ミニクーラー (J-Tクーラー) を用いて、高圧ネオンガスを大気中に放出する際に発生する寒冷を利用してネオンを液化し、生成した液体ネオンを冷媒として成層圏の低圧大気を固化採取する小型クライオサンプラーを開発した。本稿では、開発した小型クライオサンプラーの概要と、2007年6月に三陸大気球観測所で実施した小型サンプラーによる成層圏大気採取予備実験について報告する。

2. J-Tクーラーを用いた小型クライオサンプラー

2.1 J-Tクーラーによる寒冷発生

J-Tクーラーは、熱交換器が付加された高圧ガス導入配管とオリフィスで構成され、オリフィス部でJ-T膨張によって冷却されたガスが高圧ガス配管内の膨張前のガスを対流的に冷却するために、熱効率が非常に高い素子である。J-Tクーラーでの質量バランス、エンタルピーバランスを考えると、発生寒冷量 q (W)、流入ガス質量流量 m_0 (g/sec)、流出ガス質量流量 m_2 (g/sec)、高温高圧側ガスエンタルピー H_0 (J/g)、高温低圧側ガスエンタルピー H_2 (J/g)とした場合、次の式で表される。

$$m_0 = m_2, \quad (1)$$

$$m_0 H_0 + q = m_2 H_2, \quad (2)$$

(1), (2) 式より、発生寒冷量は、

$$q = m_0 (H_2 - H_0). \quad (3)$$

と表すことができる。

高圧ガスとして液体窒素温度(78K)に予冷したネオンガスを使用することにより、J-Tクーラーで発生した寒冷によって、導入されたネオンガスを液化点温度(28K)にまで冷却し液体ネオンを製造することができる。液体ネオンは水素とヘリウムを除いた大気成分の中で最も沸点が低いので、大気的全成分を捕集するための冷媒として非常に優れている。また、その蒸発熱は405cal/molと液体ヘリウムと比較して非常に大きいため、少量の液体ネオンを用いて大量の大気を採取することが可能である。図1にJ-Tクーラーの外観図を示す。オリフィス口径は0.12mmであり、流量制御用ニードルを取り外してフィクストオリフィスタイプとしてある。これは、必要寒冷が0.2W程度の少量であれば流量制御を行う必要があるが、大気採取ではできるだけ多くの寒冷を必要とし流量制御は不要となるためである。

まず J-T クーラーの特性を把握するために、J-T クーラーにネオンガスを導入したときの流量特性と冷凍能力を実験的に決定した。図 2 に試験装置の概要を示す。真空槽の内筒部分に挿入された J-T クーラーへ供給される高圧ネオンガスは、液体窒素で 78 K まで予冷され、先端の空間でほぼ大気圧まで膨張し液体ネオンが生成される。低圧となった低温のネオンガスは高圧のネオンガスと熱交換をしながら 78 K 近くまで昇温されて大気中に放出される。ネオンガスの供給圧力はボンベから供給できる最大圧力とし、圧力測定は小型圧力変換器を用いて行った。温度測定には Au/Fe-Cr 熱電対を用い、J-T クーラーの導管部（高圧高温端（J-T 熱交入口）、J-T クーラーの熱交出口（低圧高温端）、液体ネオン生成部真空側（低圧低温端）の温度を測定した。液体ネオン生成部の真空側にはマンガン線ヒーターを巻き付けて DC 電源により入力を行い、液体ネオン生成部の真空側の温度が上昇したときの入力値を冷凍能力とした。高圧ネオンガスの流路にモレキュラーシーブ（MS）吸着剤を挿入した場合としない場合の 2 種類実験を行って、ネオンガスに含まれる水分が J-T クーラーの冷凍能力に影響を与えるかどうかを確かめた。図 3 に J-T クーラーの流量特性を、図 4 に冷凍能力の測定結果を示す。もし水分の凝固があれば MS 吸着材がないときにネオンガス供給圧力の低下と共に流量の減少が見られるはずであるが、図 3 と図 4 に示されている結果にはこのような現象は見られず、水分による冷凍能力低下はないことがわかった。むしろ MS 吸着材を入れたときに高圧側で流量の減少とそれに伴う冷凍能力の低下が見られた。また図 4 には図 3 の流量測定結果を用いて J-T 熱交入口・出口温度を 80 K としたときの冷凍能力の計算値も示してあるが、測定結果と比較すると圧力が高いとき両者はほぼ一致しており、圧力が低くなるにしたがって測定値が計算値より小さな値となっている。これは、ネオンガス供給圧力が高いときには高圧高温端温度（J-T 熱交入口温度）は 80 K 程度であるが、ネオンガス供給圧力が低くなり流量が減少するにしたがって徐々に上昇（5.0MPa で 110K 程度）したこと、および冷凍能力が小さいと侵入熱の影響が大きくなることによると思われる。ここで圧力 5.0MPa、JT 熱交入口・出口温度が 110K として冷凍能力を計算すると、冷凍能力は 80K のときと比べ 0.8W 程度減少し、さらに輻射と内筒を通しての熱伝導による侵入熱が 0.5W 程度と考えられるので、これらを考慮すると計算値と測定値はさらに近づく。以上の結果から J-T クーラーの冷凍能力は MS 吸着材なしの場合で 13.5MPa のとき 22.3W であり、5.0MPa 程度まで有効に利用できる寒冷を発生していることが明らかになった。

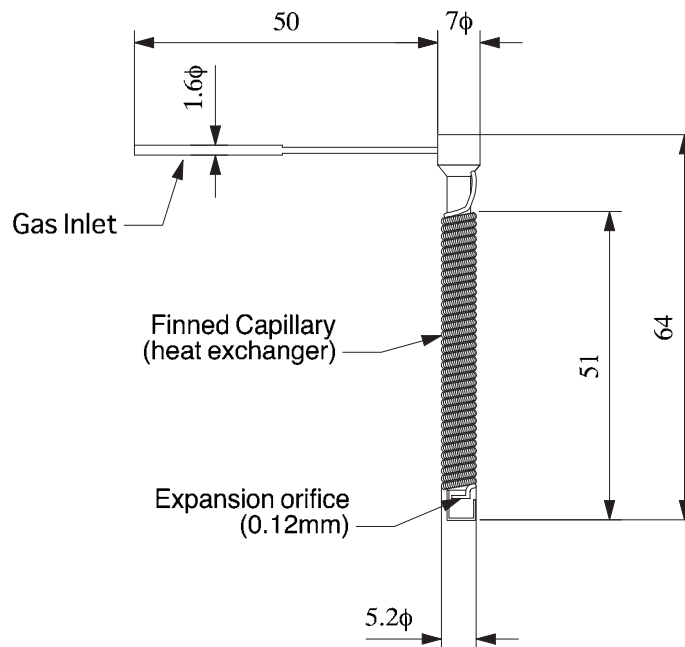


図 1 J-T ミニクーラーの外観 図中の長さは mm 単位

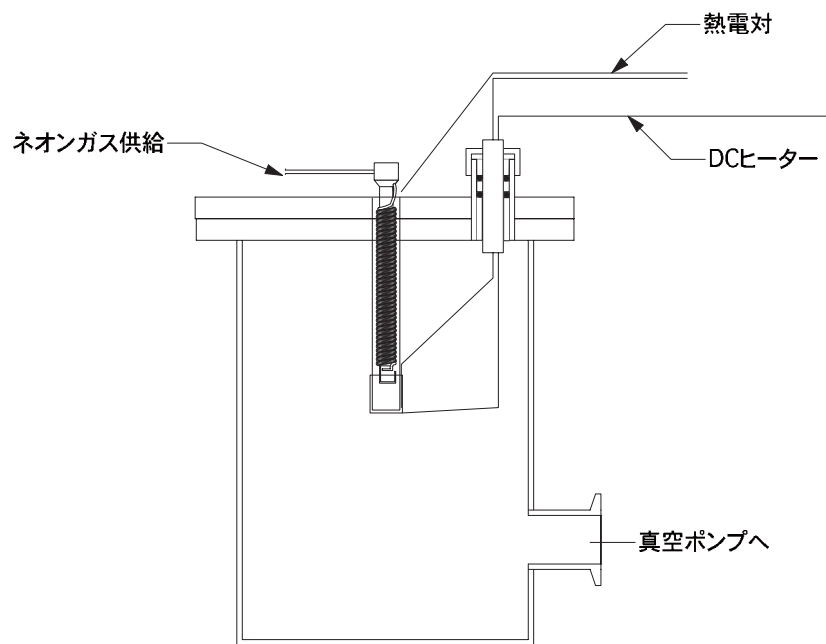


図2 発生寒冷量測定用試験装置の概要

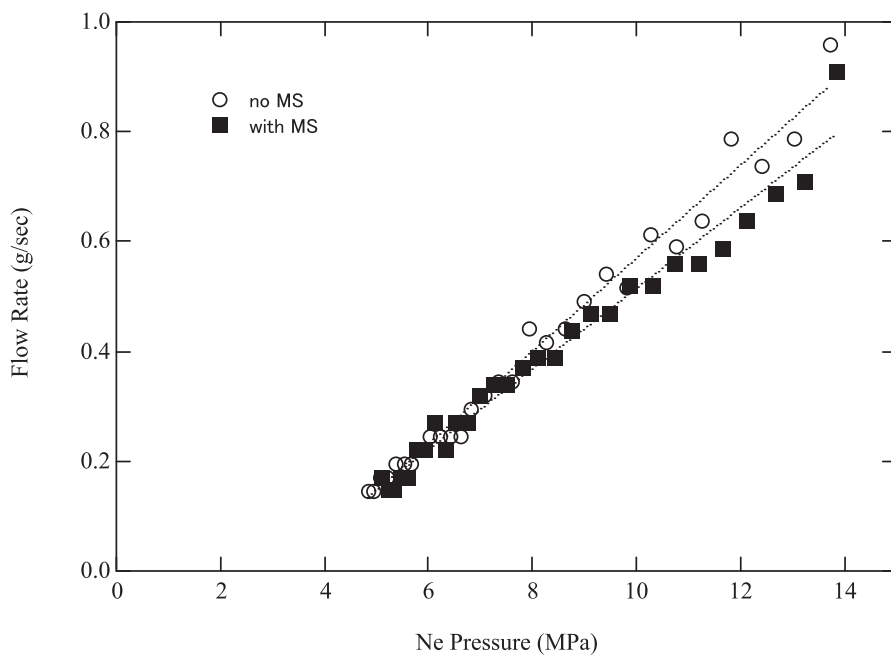


図3 J-T ミニクーラーの流量特性

白丸と黒四角はそれぞれ、ネオンガス流路にモレキュラーシーブ吸着剤を挿入しなかった場合と挿入した場合の測定値を示す。

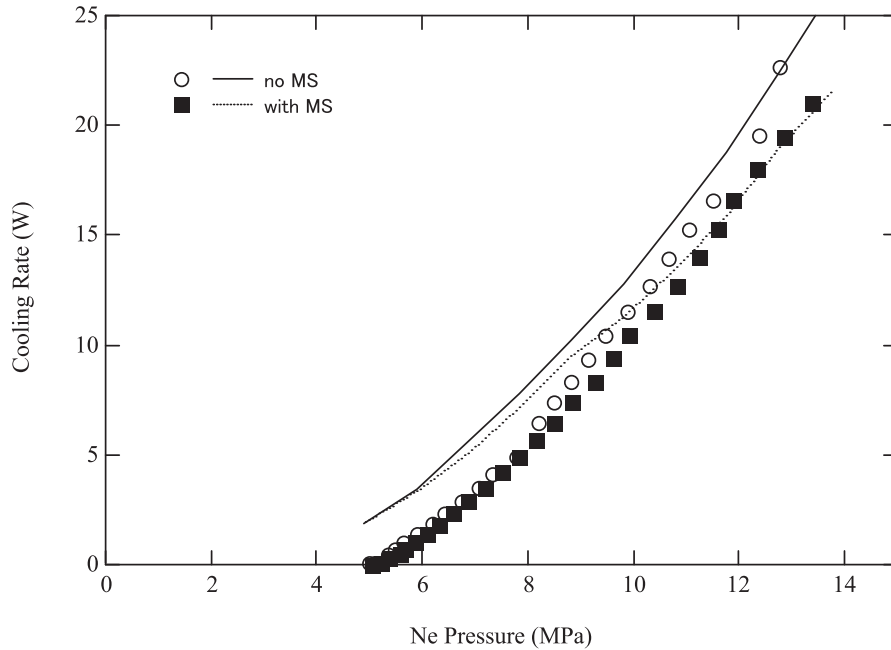


図4 J-Tクーラーによる冷凍能力

白丸, 黒四角はそれぞれネオンガス流路にモレキュラーシーブ吸着剤を挿入しなかった場合 (no MS) と挿入した場合 (with MS) の測定値, 実線, 破線は計算値を示す。

2.2 大気試料採取容器とJ-T サンプラー

J-T ミニクーラーで製造された液体ネオンを用いて低圧大気 (成層圏大気) を効率良く採取するため, J-T ミニクーラーを組み込んだ「試料採取容器」を製作してその性能を確認した。図5に試料採取容器の断面図を示す。J-T ミニクーラーを挿入する鞘管部分は図2と同一であるが, 寒冷発生部分に低温での熱伝導率のよい高純度銅 (純度 99.999%) 製の液体ネオン溜め部 (クライオヘッド) を設け, その外部に採取気体を固化・液化採取させる。採取気体とクライオヘッドとの熱伝導効率を上げるために, クライオヘッドにフィン状の突起を持たせて低温部の表面積を増加させた。また, クライオヘッドの周囲を SUS304 製の真空断熱容器で覆うことで, クライオヘッドで液化・固化した大気試料が試料採取容器内に落下して再蒸発することを防いでいる。試料採取容器本体は SUS304 を用いて製作し, 内容積は 0.8 L, 耐圧性能は 1.5MPa である。さらに, 本試料採取容器とネオンガス予冷配管 (外径 1/8 インチ焼きなまし銅管: 2m), 大気試料取り入れ配管 (外径 1/2 インチ SUS304 管: 0.4m), そして上述の真空断熱容器の真空排気用配管 (外径 1/4 インチ SUS304 管) を, 市販の SUS 製液体窒素デュワー (太陽日酸 サーモカット D6000: 内容積 6 L, 200mm ϕ x 300mm) に真空フランジを溶接した容器に組み込んで一体化した (以下, D6000 に組み込んだシステム全体を J-T サンプラーとする)。この D6000 に液体窒素を充填することにより, ネオンガス及び大気試料を液体窒素温度まで予冷するとともに, 試料採取容器及び J-T ミニクーラーへの放射熱侵入を低減する。ネオンガス予冷配管と大気試料取り入れ配管の長さは, それぞれ 20MPa \cdot 273K のネオンガス及び 200hPa \cdot 273K の空気を液体窒素温度 (78K) まで冷却するために必要な配管長を簡単なモデル計算から求め, 決定した。D6000 のフランジ上部には, 液体窒素の供給及び気化した窒素ガスを排出するためのポートを 2ヶ所設けている。

J-T サンプラーの性能を確認するために, 実験室内で低圧大気の採取実験を行った。採取実験で用いた低圧大気の圧力は, 容積 50 L の真空チャンバーをロータリーポンプで真空排気すること, 及び真空チャンバーに取り付けた圧力スイッチによってチャンバー内が設定圧力以下になったときに 47 L ボンベから CO₂ \cdot CH₄ 濃度既知の標準ガス (空気) を供給することによって制御した。低圧大気採取実験中, 真空チャンバー内圧力, 低圧大気の採取速度, ネオンガス供給圧力, 試料採取容器内圧力, そして J-T ミニクーラー先端温度の変化を, それぞれダイヤフラム式圧力計, マスフローセンサー, 高圧用小型圧力変換器, 小型圧力変換器, Au/Fe-Cr 熱電対で監視した。実験手順の概略は以下の通

りである：1) あらかじめ J-T サンプラーの試料採取容器を $1 \times 10^{-3}\text{Pa}$ 以下まで真空排気した後 D6000 に液体窒素を充填し、試料採取容器内部を十分に冷却する。2) J-T サンプラーへの高圧ネオンガス供給を開始し、その後 30 秒～150 秒間ネオンガス冷却・液体ネオン製造とクライオフィン冷却を行う。3) 真空チャンバーと J-T サンプラー間のバルブ（大気採取バルブ）を開け、240～600 秒間低圧大気の採取を行う。4) 試料採取容器を常温に戻し、容器温度と内圧から低圧大気試料の採取量を計算する。採取実験は、低圧大気試料圧力を 25, 60, 120, 200hPa に設定して行った。これらは、高度おおよそ 25, 20, 15, 12km の大気圧に相当する。ネオンガスは 47 L ボンベまたは 2 L ボンベから圧力制御を行わずに直接供給し、その初期圧力は 19.0MPa から 8.0MPa であった。

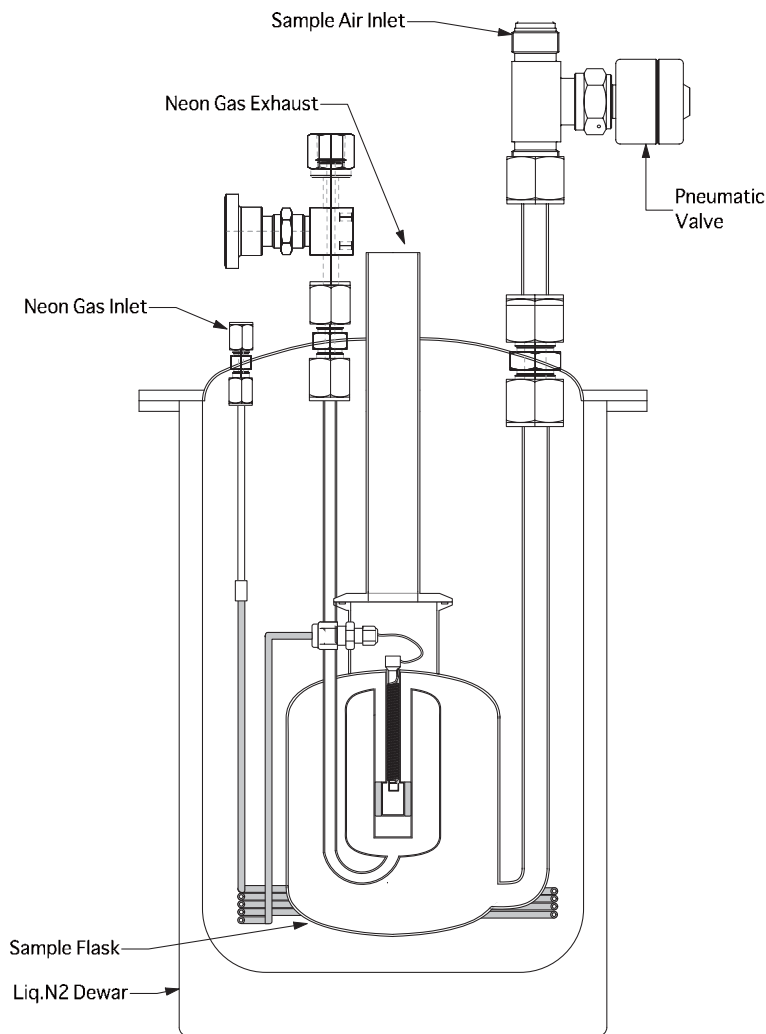


図5 「試料採取容器」の断面図

図6に、J-T ミニクーラーで発生した寒冷量と J-T サンプラーによる低圧大気採取量の関係を示す。J-T ミニクーラーによる発生寒冷量は (3) 式の時間積分によって計算した。その際、(3) 式の m_0 はネオンガス供給圧力の時間変化から求め、 $(H_2 - H_0)$ は文献 [4] の数表に 2 次式を当てはめて与えた。但し、外部から侵入する熱量を無視していることから、J-T ミニクーラーの効率を 100% と仮定していることから、計算された発生寒冷量は一種の目安として扱う必要がある。大気採取量は、試料採取容器の体積と採取した空気の圧力・温度から求めた量から容器体積と採取気体圧力の積を引いた量、つまり J-T ミニクーラーによって発生する寒冷によって採取された試料空気量を示す。図6から、試料採取量は採取気体圧力が高いほど多いこと、そして採取気体圧力が 60-200hPa の範囲では発生寒冷量が多いほど採取量

も多いが25hPaでは発生寒冷量が多くなっても採取量はそれほど増えないことがわかる。ネオンガスを19.0MPa充填の2L 高压容器から供給し、30秒間の液体ネオン製造と240秒間の大気採取を行う場合、大気採取に使用できる寒冷はおおよそ4000~5000 Jと計算されるので、2.8L_{STP}（試料圧力25hPaの場合）~7.2L_{STP}（同200hPaの場合）の大気試料を採取可能であると考えられる。

J-T サンプラーによって採取された大気試料の組成が変化していないことを確認するため、低圧大気採取実験後に試料採取容器内で大気試料が十分混合するまで60時間以上放置した後、大気試料のCO₂、CH₄濃度及びCH₄の炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ ）を、それぞれ非分散型赤外分析計（NDIR）、ガスクロマトグラフ（GC/FID）、ガスクロマトグラフ質量分析計（GCCMS）を用いて分析した[5][6][7]。その結果、それぞれの濃度・同位体比分析値は真空チャンバーに供給したCO₂・CH₄標準ガス（被採取空気）と測定精度内で一致することを確認した。

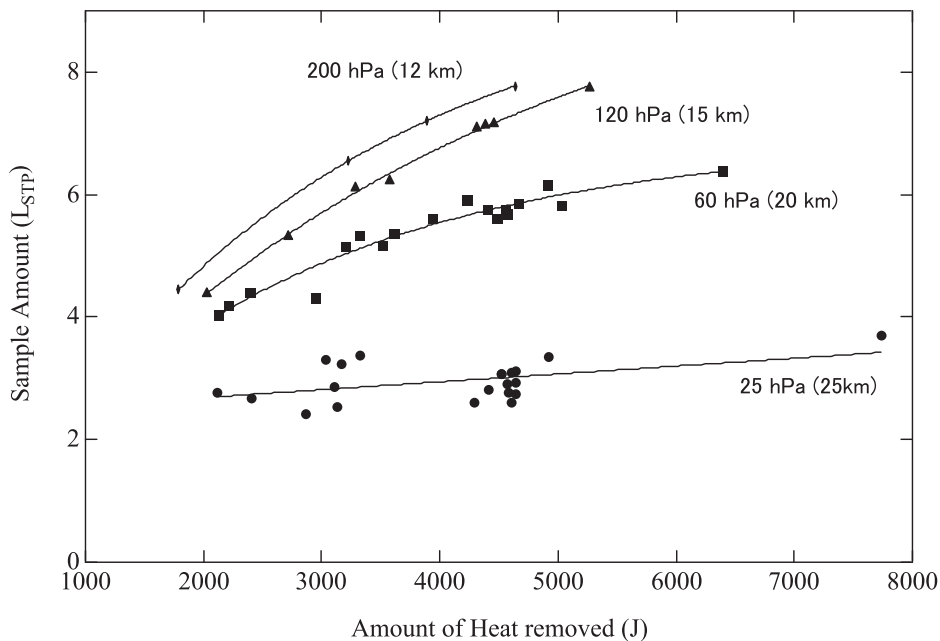


図6 実験室内での低圧大気採取実験で得られた、J-T ミニクーラーによる発生寒冷量と大気採取量の関係。実験は、大気サンプル圧力を25, 60, 120, 200hPaに設定して実施した。図中にそれぞれの気圧に相当する高度も示した。

2.3 小型クライオサンプラー

J-T サンプラーを用いて成層圏大気を採取するために、J-T サンプラー、コントローラ、ネオンガス容器、テレメトリ送信機、GPS 受信機、電池等すべての構成部品を一体化した小型クライオサンプラーを製作した。小型クライオサンプラーの構成を図7に示す。本サンプラーは、南極・昭和基地での実験オペレーションを簡易にするために、搭載GPS 受信機の高度データを参照して自律的に動作する構成とした。すなわち、サンプラーがあらかじめ設定した高度に達したときに、ネオンガスボンベのバルブを開いて液体ネオンの製造を開始し、その30秒後に大気採取バルブを開く。さらにその240秒後にネオンガスバルブ及び大気採取バルブを閉じて気球を切り離し、パラシュートで地上に降下する、という手順を自動実行する。

搭載制御回路は、過去に昭和基地上空成層圏でのグラブサンプリング実験に使用した装置[3]を再利用した。この搭載回路は、GPS 受信機（ソニー IPS-5000U）の現在位置データを取り込み、プログラムにしたがって内蔵 photoMOS リレーを制御するとともに、逐次 GPS データと内蔵リレーの状況データ等を0.5W 出力のFM 送信機（三協特殊無線 TM-1680）に出力するものである。地上での誤操作によってネオンガスバルブまたは大気採取バルブが開くことを防ぐために、インターロック機構として気圧スイッチ（後述の三陸予備実験用は設定圧120hPa、昭和基地実験用は800hPa）を使用しており、気圧スイッチがOFFの場合、つまり気圧が設定値よりも高い場合には搭載回路内蔵リレー

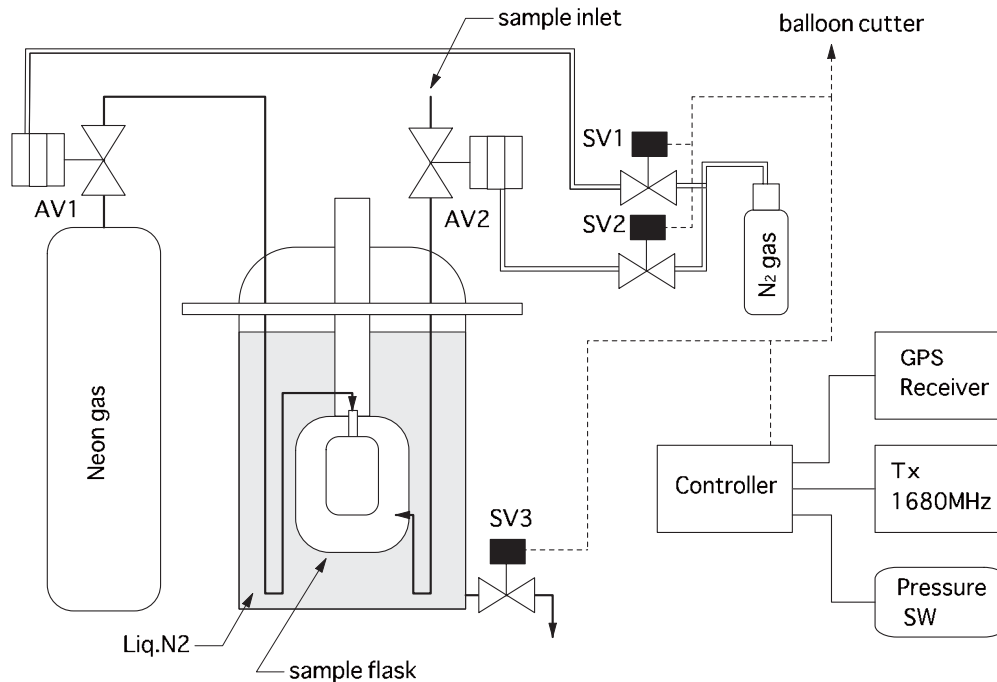


図7 J-T サンプラーを用いた小型クライオサンプラーの構成
SV1, SV2, SV3は電磁弁, AV1, AV2は空気圧作動弁を示す。

がONにならないようにしている。ネオンガスバルブ及び大気採取バルブとして空気圧作動弁（ネリキ DS-3H, 及びフジキン FPr-91-9.52）を採用し、搭載回路内蔵リレーと電磁弁（CKD USG-3-6-1）によって空圧弁作用窒素ガスの供給と排出を制御した。窒素ガスは容積 0.098 L の小型ガスカートリッジ（NTG 18.6MPa）から供給し、小型調圧器（NTG NR-18）で2次圧を 0.7MPa に下げて電磁弁に接続した。小型クライオサンプラーに搭載するネオンガスは、容積 2L のカーボン FRP 製高压容器（旭製作所 212C）に 19.0MPa の圧力で充填されたものを使用し、圧力調整を行わずに直接 J-T サンプラーに供給した。

J-T サンプラーに充填された液体窒素は、窒素の三重点圧力が 126hPa であるため、高度約 15km 以上で固化する恐れがある。J-T サンプラーの D6000 内圧を地上気圧程度に保ち液体窒素の固化を防ぐために、窒素ガス排出ポートにクラック圧 1030hPa のチェック弁（サークルシールズ K220-2PP-15）を付加した。また、液体窒素温度に下がっているネオンガス排出ポート内部に大気中の水蒸気が凝結しないよう、ポート出口にクラック圧 7hPa のチェック弁（サークルシールズ 264-4PP-0.1）を接続した。さらに、J-T サンプラーから排出される窒素ガス、ネオンガスが採取大気試料に混入しないよう、これらの排出ポートからの配管をサンプラー下方まで延長した。前述の通り、大気採取は気球上昇中に行うため、サンプラーの下方に排出されたガスがサンプラー上部の大気採取バルブに達することはない。

小型クライオサンプラーを構成するすべての部品に、搭載する液体窒素 4.5 L、電池類を加えた総重量は、17.0kg となった。

3. 三陸大気球観測所での予備実験

新たに開発した小型クライオサンプラーの成層圏での動作を確認し、昭和基地実験に向けた問題点を抽出するために、2007年6月4日に三陸大気球観測所において昭和基地成層圏大気採取実験（小型回収気球実験）予備実験を実施した。予備実験では、成層圏大気クライオサンプリング実験（従来型の大型クライオサンプラーを使用）との合同飛揚となったため、小型サンプラーをクライオ実験ゴンドラの空きスペースに搭載し、成層圏に飛揚した。

予備実験用に準備した小型クライオサンプラーの構成を図8に示す。三陸大気球観測所での実験は海上回収となるため、装置全体を容積 120 L（SUS304 製 470mm φ x 700mm）、重量 19.2kg の円筒形水密容器に収納し、大気採取口

を水密容器上方に、ネオンガス・窒素ガス排出口を下方に延長した。また、小型サンプラーの動作を解析するために、アナログデータロガー（白山工業 DataMark）も搭載して、電磁弁、空気圧作動弁、ネオンガスポンプ等の温度、空圧弁作動用窒素ガス圧力、ネオンガス圧力、電池電圧を記録した。同時飛揚の大型クライオサンプラーに本サンプラーからの排気ガスが影響しないよう、搭載 GPS 受信機データによる自動大気採取は行わず、大型クライオサンプラー用コマンド受信機の接点信号を借用して地上からのコマンド送信によって大気採取手順を開始する方式に改めた。さらに、大気採集後に残る液体窒素をサイホン式に排出する機構も付加した。

2007年6月4日0600JSTにB100型気球によって放球された大型・小型クライオサンプラーゴンドラは、高度14-15kmでの約2時間の水平飛揚のあと、放球後約3時間で高度20kmに達した。0907JST（高度20km）に地上から大気採取開始コマンドを送信し、1) ネオンガス用電磁弁 ON, 2) 大気採取用電磁弁 ON, の大気採取手順が正常に実行されたことを、地上で受信した小型サンプラーのHKデータから確認した。小型サンプラーに搭載したGPS受信機の動作にも問題はなかった。その後、高度34.7kmまでの上昇中と高度28.3kmまでの緩降下中に大型クライオサンプラーによる大気採取が継続され、1330JSTにパラシュート降下開始、1357JSTに岩手県釜石市沖53km付近に着水したことが確認された。同日に海上で回収されヘリコプターで三陸大気球観測所に戻ってきた小型サンプラーには全く損傷はなく、水密容器内部への海水の浸入も見られなかった。

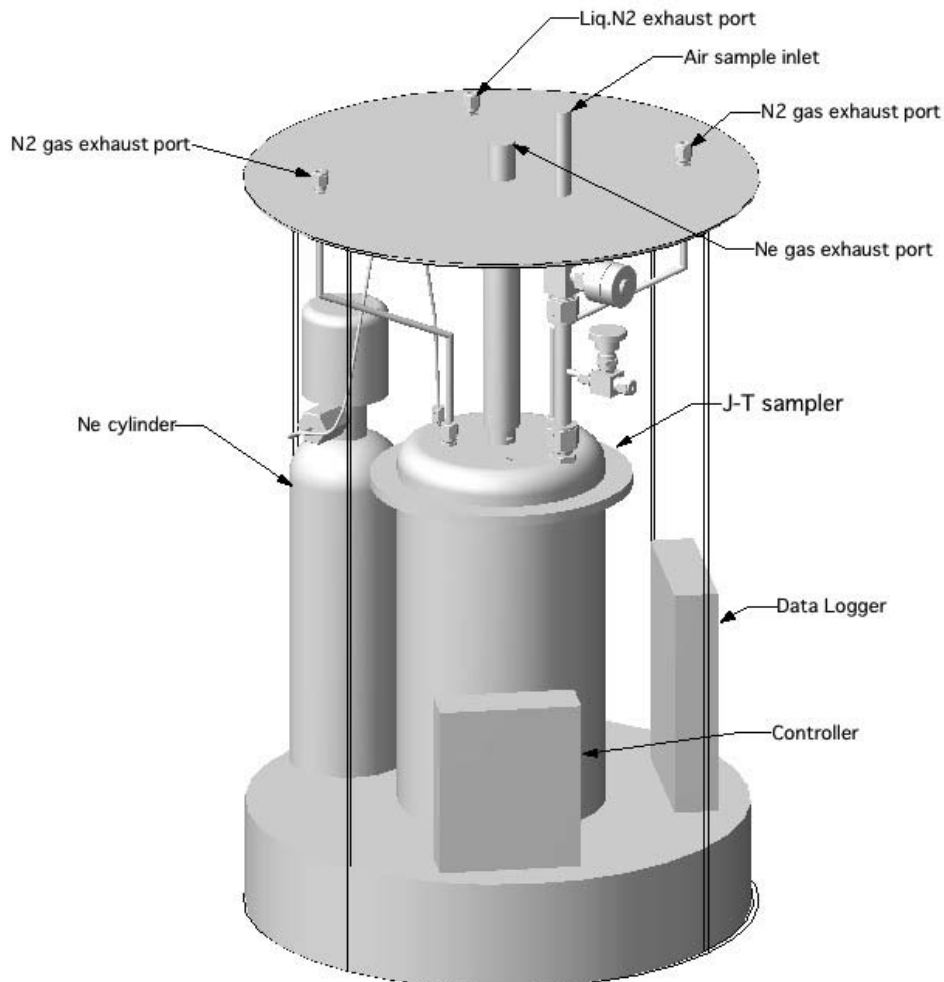


図8 三陸予備実験用小型クライオサンプラーの構成
全体を容積120Lのステンレス製水密容器に納めた。

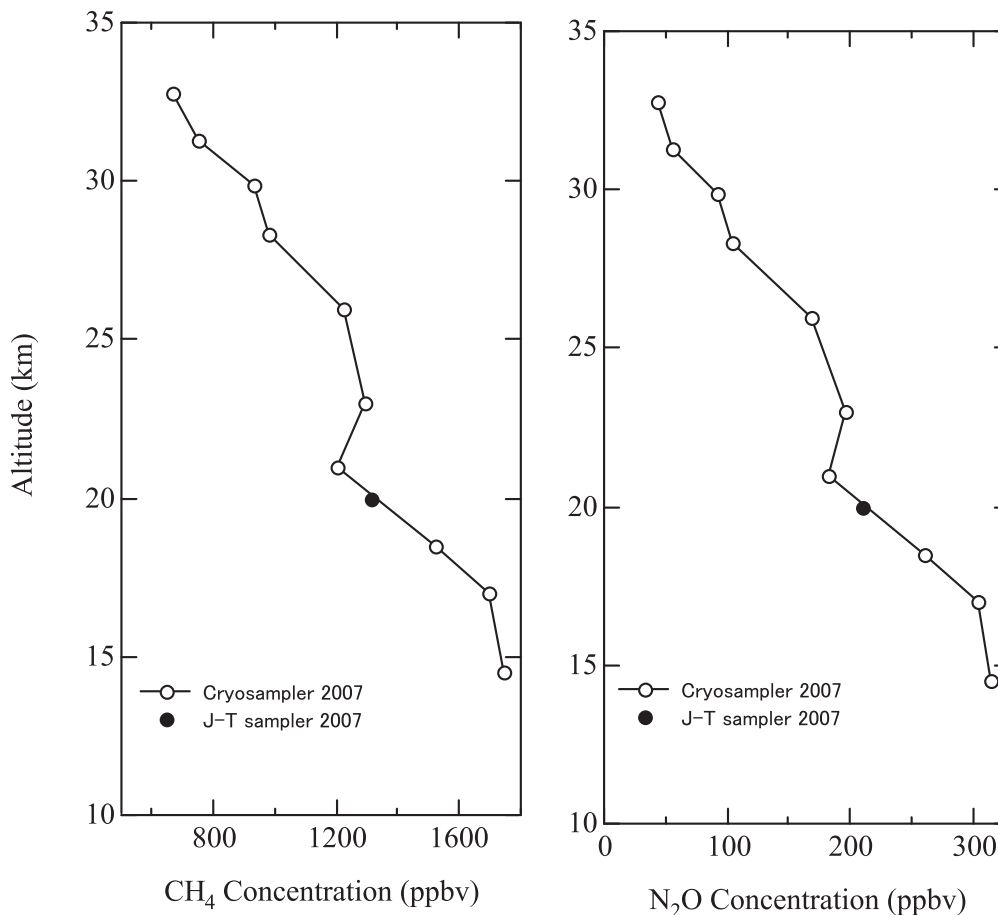


図9 2007年6月4日に三陸大気球観測所上空の成層圏で採取された大気試料の分析結果

左図はCH₄濃度、右図はN₂O濃度、従来型クライオサンプラーによる大気試料の分析結果（白丸）とJ-Tサンプラーによる結果（黒丸）を示す。

小型クライオサンプラーの回収後、東北大学理学研究科大気海洋変動観測研究センターにおいて採取大気試料量の測定と試料の温室効果気体成分分析を行った。その結果、試料採取容器の内圧は508hPaであり、現場気圧（約60hPa）の約9倍の大気試料が採取されたことから、本サンプラーは成層圏においてクライオサンプラーとして機能したことを確認できた。採取試料量は現場気圧から期待される量に達しなかったが、その原因については後述する。図9に、大型クライオサンプラーによって採取された大気試料による成層圏でのCH₄、N₂O濃度の鉛直分布と、本サンプラーで得られた大気試料の分析結果を示す。この図から分かる通り、本サンプラーで採取された大気試料を分析して得られたCH₄、N₂O濃度は、高度20kmの成層圏大気として極めて妥当な値を示している。以上のことから、開発した小型クライオサンプラーは、成層圏において大量の大気試料を採取可能であり、得られた試料の組成にも全く問題がないことを確認できた。

2.2節に述べた室内実験の結果から、J-Tサンプラーは高度20km（大気圧60hPa）において5.8L_{STP}の大気試料を採取可能と予測していたが、実際の採取量は0.4L_{STP}であった。採取量が少なかった原因を、地上で受信したHKデータと小型クライオサンプラーに搭載したデータロガー・データから推測した。図10a,bに、データロガーに記録された小型サンプラー各部の温度と電池電圧の変化を示す。図10aから、0650~0950JSTの間約2時間の水平飛行中に、空圧作動弁を駆動するための電磁弁（サンプリング用電磁弁、ネオンガス用電磁弁）温度が-25度以下まで下がり、大気採取時（高度20km）には-30度に達していたことが分かる。これは事前に検討し予測した南極実験の環境条件よりもかなり厳しいものであった。また、HKデータからは、大気採取手順開始後にインターロック用気圧スイッチがON/OFFを繰り返し、採取終了後はON状態に戻っていたことが確認された。空圧弁駆動用電磁弁は、-25度以下になるとON

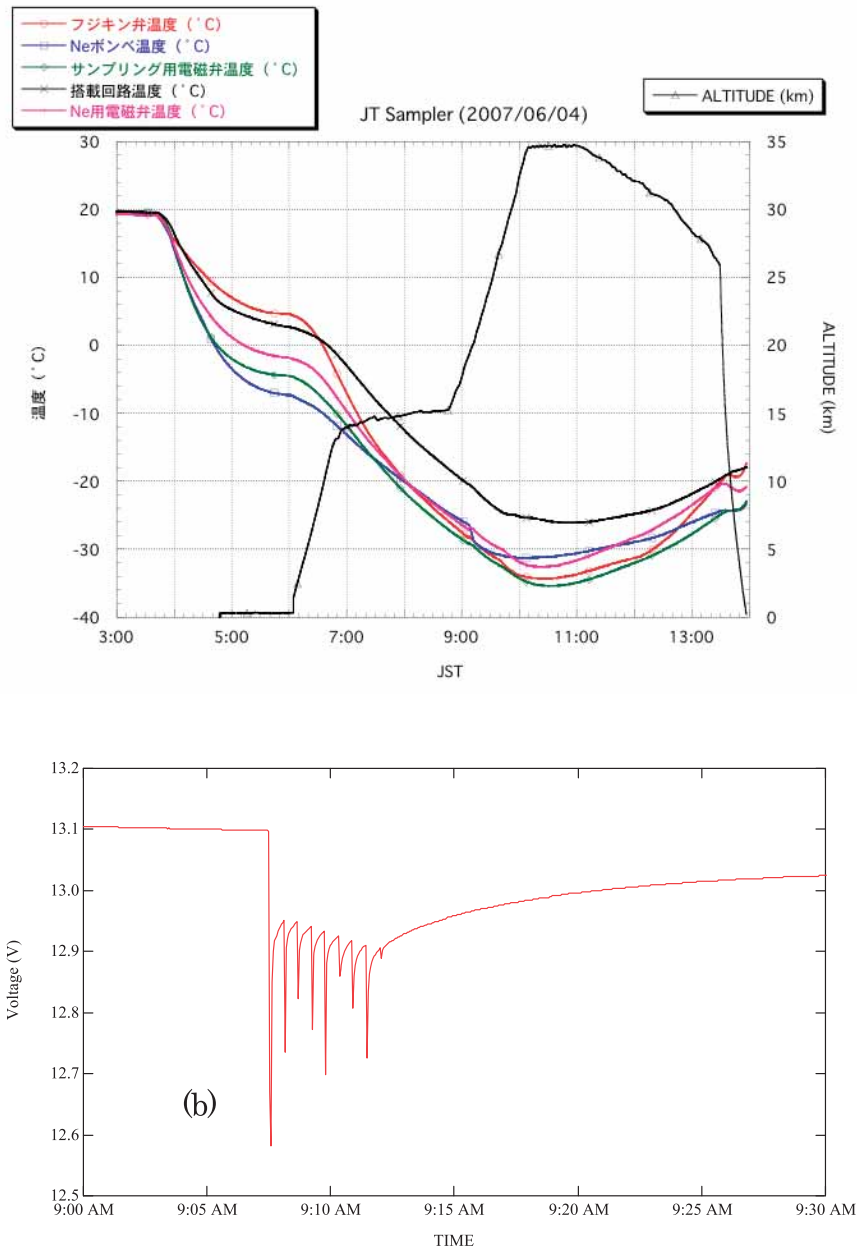


図 10 (a) 飛行中の小型サンプラー各部の温度と飛行高度の変化
(b) 大気サンプリング開始前後の搭載電池電圧の変化

時に加圧用窒素ガスが外部にリークすることが分かっていることから、今回は、電磁弁からリークした窒素ガスが水密容器の内圧を変化させて気圧スイッチが動作し、インターロック機構が働いたために、大気採集中に電磁弁、さらにネオンガス供給弁・大気採取弁を閉じてしまったものと考えられる。図 11b には、大気採取手順が開始された後に電池電圧がノコギリ状に変動した様子が示されており、電磁弁が ON/OFF を繰り返した様子が分かる。

昭和基地用に準備する小型クライオサンプラーは水密容器に納めない開放型であるため、加圧用窒素ガスが電磁弁からリークしても上空でインターロック機構が働くことはないが、1) 電磁弁部にサーモfoilヒーター (MINCO HK51) を巻き付けて約 2 W の電力を供給、2) インターロック用気圧スイッチの設定圧を 800hPa に変更、という対策をとることにより、より確実性が増すと考えられる。

4. おわりに

J-T ミニクーラーを用いた高圧ネオンガスの膨張によって液体ネオンを製造し、希薄な成層圏大気を固化採取する、小型クライオサンプラーを開発した。本サンプラーは、これまでのクライオサンプリング実験に必要であった液体ヘリウム・液体ネオンを必要としないこと、そして本体重量が17.0kg程度で小型気球による放球が可能である、という特徴を持つ。室内での低圧大気採取実験の結果は、高度25～12kmに相当する25～200hPaの低圧大気を4分間に2.8～7.2L_{STP}採取可能であることを示している。

2007年6月4日に、南極昭和基地での成層圏大気採取実験に向けた国内予備実験として、本サンプラーを三陸大気球観測所から放球し、高度20kmの成層圏での動作確認を行った。その結果、本サンプラーはクライオサンプラーとして成層圏大気試料を採取することに成功し、採取試料中の温室効果気体濃度も成層圏試料として妥当な値であった。但し、予備実験用にサンプラー本体を水密容器に納めたこと、そして水密容器内部が想定以上の低温になったために、大気採取量が室内実験結果から予想される量よりもかなり少なかった。地上で受信したHKデータ及びサンプラー搭載データロガーによるアナログデータから採取量が少なくなった原因の究明を行い、昭和基地実験に向けたサンプラーの改良点を抽出することができた。

以下、詳細は別稿に譲るが、第49次南極地域観測隊の夏期観測の一部として、本研究で開発した小型クライオサンプラー計4機を南極・昭和基地に持ち込み、2007年12月30日と2008年1月4日に小型気球を用いて成層圏大気採取実験を実施した。これまで述べた通り、液体ヘリウムが不要であり、かつ小型気球での放球が可能であったことから、実験準備と気球放球、そしてヘリコプターによる回収オペレーションは、これまでの昭和基地でのクライオサンプリング実験と比較して非常に容易に実行可能であった。本サンプラーを用いることで、今後、昭和基地のような遠隔地における成層圏大気の詳細観測をより高頻度で実行できる可能性がある。

謝 辞

三陸大気球観測所での予備実験実施にあたり、大気球観測センターの皆様の多大なご協力を得たことに心より感謝いたします。本研究は、科学研究費補助金 No.07558076, No.10558086 (研究代表者：山内恭) 及び岩谷直治記念財団研究助成金 No.04-3114 (研究代表者：森本真司) の支援を受けて実施した。

参考文献

- [1] Aoki, S., T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Morimoto, G. Hashida, T. Yamanouchi, K. Kawamura and H. Honda, Carbon Dioxide Variations in the Stratosphere Over Japan, Scandinavia and Antarctic., *Tellus* 55B 178-186, 2003
- [2] 菅原敏, 橋田元, 石戸谷重之, 並木道義, 飯嶋一征, 森本真司, 青木周司, 本田秀之, 井筒直樹, 中澤高貴, 山内恭, 第45次南極地域観測隊行動におけるクライオジェニックサンプラー回収気球実験, 宇宙航空研究開発機構研究開発報告, 77-88, 2005
- [3] Honda, H., S. Morimoto, H. Akiyama, G. Hashida, S. Aoki, H. Ui, T. Nakazawa, N. Yajima and T. Yamanouchi, A newly developed grab sampling system for collecting stratospheric air over Antarctic, *Antarctic Record*, 40, 156-168, 1996
- [4] Braker, W. and A. L. Mossman, *Matheson Gas Handbook sixth edition*, Matheson NJ, U.S.A. pp.711, 1990.
- [5] Tanaka, M., T. Nakazawa and S. Aoki, High quality measurements of the atmospheric carbon dioxide, *J. Meteorol. Soc. Japan* 61, 678-685, 1983
- [6] Aoki, S., T. Nakazawa, S. Murayama and S. Kawaguchi, Measurements of atmospheric methane at Japanese Antarctic Station, Syowa, *Tellus* 44B, 273-281, 1992.
- [7] Morimoto, S., S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, Temporal variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric methane observed at Ny Ålesund, Svalbard from 1996 to 2004, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L01807, doi:10.1029/2005GL024648, 2006