# サブミリ波による HO2の日変化観測

入 交 芳  $\Lambda^1$ , 落 合  $\mathbb{P}^1$ , 笠 井 康  $\mathcal{F}^1$ , 山 上 隆  $\mathbb{E}^2$ , 斉 藤 芳  $\mathbb{P}^2$ , 飯 嶋 一  $\mathbb{C}^2$ , 井 筒 直 樹<sup>2</sup>, 並 木 道 義<sup>2</sup>, 冨 川 善  $\mathcal{U}^3$ , 村 田  $\mathcal{I}^4$ , 佐 藤  $\tilde{\mathbb{I}}^5$ 

# **Observation of diurnal variation of HO**<sub>2</sub> at submillimeter-wave

By

Yoshihisa Irimajiri<sup>1</sup>, Satoshi Ochiai<sup>1</sup>, Yasuko Kasai<sup>1</sup>, Takamasa Yamagami<sup>2</sup>, Yoshitaka Saito<sup>2</sup>, Issei Iijima<sup>2</sup>, Naoki Izutsu<sup>2</sup>, Michiyoshi Namiki<sup>2</sup>, Yoshihiro Tomikawa<sup>3</sup>, Isao Murata<sup>4</sup>, Kaoru Sato<sup>5</sup>

**Abstract** : A balloon-borne superconducting submillimeter-wave limb-emission sounder (BSMILES) is powerful tool for observations of stratospheric minor constituents. The third flight experiment of BSMILES was conducted on September 4, 2006 to observe diurnal variation of HO<sub>2</sub>. BSMILES carries an offset parabolic maim reflector with a diameter of 300mm, a 630 GHz–band SIS mixer cooled by liquid helium, an acousto-optical spectrometer, and 3–axes fiber-optic gyroscope. The gondola was lifted to an altitude of about 37.9km by a balloon of 200,000m<sup>3</sup> in volume. The system operated properly and emission line spectra of  $O_3$  and minor constituents were measured. The system was retrieved from the sea after the observation.

Keyword : submillimeter-wave, superconducting receiver, stratospheric minor constituents

### 概 要

気球搭載型超伝導サブミリ波リム放射サウンダ (BSMILES: Balloon-borne Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder) は、成層圏中の微量分子を観測する有用な装置である。2006年9月4日、成層圏中のHO<sub>2</sub>の日変化の観測することを目的に、BSMILES による 第三回目の放球実験が行われた. BSMILES には直径300mmのオフセットパラボラアンテナ、液体ヘリウム冷却の630GHz 帯超伝導受信機、音響光学型分光計、3軸光ファイバジャイロ等が搭載されている. BSMILES は B200型気球により放球され、高度約37.9km においてオゾン や微量分子の観測を行い、観測終了後海上回収された.

重要語:サブミリ波、超伝導受信機、成層圏微量分子

<sup>1</sup>情報通信研究機構

<sup>2</sup> 宇宙航空研究開発機構

<sup>3</sup>国立極地研究所

 $<sup>^{4}</sup>$ 東北大学

<sup>5</sup>東京大学

#### 1. はじめに

オゾン破壊や温暖化には成層圏微量分子 (HO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, ClO<sub>x</sub>, BrO<sub>x</sub>)が関連していると言われている. HO<sub>2</sub>は HO<sub>x</sub> (H, OH, HO<sub>2</sub>) グループに属するラジカルであり,成層圏オゾン破壊のみならず,上部成層圏の水蒸気量とも 大きく関連していることで,対流圏から中間圏における大気化学にとって重要なラジカルである. OH ラジカル は高度60km 以上では H<sub>2</sub>O の光化学分解により生成され,それ以下の高度では,オゾンが太陽の紫外光により光 分解した時にできる励起一重項酸素原子 (O(<sup>1</sup>D)) と H<sub>2</sub>O との反応 ((1) 式) により生成される.

## $H_2O + O(^1D) \rightarrow OH + OH$ (1)

中間圏における OH と HO2の濃度比は以下の反応により決まる.

$$OH+O \rightarrow H+O_2$$
(2)  
$$H+O_2+M \rightarrow HO_2+M$$
(3)

$$O + HO_2 \rightarrow OH + O_2$$
 (4)

また HO<sub>x</sub> は以下により消失する.

$$HO_2 + OH \rightarrow H_2O + O_2 \tag{5}$$

$$HO_2 + H \rightarrow H_2 + O_2 \tag{6}$$

上部成層圏においては、NO<sub>x</sub>, ClO<sub>x</sub>, BrO<sub>x</sub>が絡んで複雑な反応となる.

1997年8月に衛星 (MAHRSI) から行われた OH の観測から, HO<sub>x</sub> ジレンマと呼ばれる問題が提起された[1]. これは, 観測された OH の存在量が従来のモデルより上部成層圏 (35–50km) から中間圏 (50–80km) におい ては少なく, 逆に高度45km 辺りを境に成層圏においては多く, それがどのようなパラメータを用いても説明出 来ないというものであるが,一方,これより少し前 (4月) に行われた気球 (FIRS-2 [2]) による OH, HO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub>の同時観測 [3] では, 観測はモデルで説明できる範囲内であった. さらに,近年 (2004年) 行われた 衛星 (Aura MLS [4]) と気球 (BOH [5], FIRS-2) による OH と HO<sub>2</sub>の観測では, HO<sub>x</sub> ジレンマは確認され なかったという報告もされている [6]. HO<sub>x</sub> ジレンマが生じる原因として,モデルが不十分である (鍵となる まだ知られていない反応がモデルに含まれていない) ことや, MAHRSI は OH のみの観測であること (HO<sub>2</sub>との 同時観測が重要) 等が言われている [7] が,現時点では HO<sub>2</sub>, OH 等の観測が数例あるのみで,問題が未解明 のまま存在している. 観測が少ない理由として, HO<sub>2</sub>の存在量は微量であり,また時間とともに大きく変動する (夜間は昼間の1%以下にまで減少すると言われる) ので,その検出が困難であることがある. その観測を行う ためには,短時間で検出できる高感度受信機が必要になる.

### 2. 装置構成

気球搭載型超伝導サブミリ波リム放射サウンダ(BSMILES:Balloon-borne Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder)[8,9]は、超伝導を利用した高感度受信機を搭載した装置で、成層圏微量分子からの 放射電波スペクトルを観測し、リムサウンディング(大気の縁を観測する高感度、高高度分解能観測法)と呼ば れる手法により高度分布を測定する.図1にBSMILES のシステムブロックを示す.システムは、アンテナ・較 正系、光学系、受信機系、中間周波系、分光系、データ取得・制御系、姿勢検出系、電源、気球工学系(コマン ド・テレメトリ系等)から成る.ゴンドラサイズ(発泡スチロール枠を含まないゴンドラフレームサイズ,)は 約1.35m×1.35m×1.26m、荷姿作成時の総重量は633kg(バラスト250kgを含む)、消費電力は約150W である.図2はゴンドラの外観である.光学系を図3に示す.5枚の収束鏡、3枚の平面鏡、局部発振器(LO)注入用 誘電体フィルム(Zitex G108)から成る.光学系はDSB 受信としている.局部発信器の発振周波数は631.095GHz に固定で、観測帯域は、624.995GHz-625.995GHz(LSB)、636.195GHz-637.195GHz(USB)である.この帯 域の中には、オゾン、HCl、HO2、HOCl、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>が含まれる.計算スペクトルを図4に示す.

受信機には液体ヘリウムを用いて4Kに冷却された,超伝導を利用したサブミリ波(630GHz)帯の低雑音受 信機(SIS ミクサ: Superconductor-Insulator-Superconductor mixer)が用いられている.SIS 素子にはNb/AIOx/Nb 接合が使われている.大気中の分子からの信号と局部発振器からの信号はSIS ミクサに導入され,中間周波信号 (5-7GHz)に変換され,15Kに冷却されたHEMT(High Electron Mobility Transistor)アンプによって増幅さ れる.その後,常温の増幅器によって増幅され,音響光学型分光計(帯域1GHz,分解能約1MHz)によってス ペクトルが得られる.取得されたデータは,データ取得・制御系でPCカード(記録時間約40時間)に記録され 海上回収される.温度や電圧等をモニタするHK(House Keeping)データのみは地上に送信される.ゴンドラの 姿勢を検出するために3軸光ファイバジャイロ,3軸加速度計,2軸地磁気センサを搭載している.機器は防水 やノイズシールド等のため,与圧容器(窒素ガスを封入)に入れられている.

SIS ミクサの DSB システム雑音温度(アンテナ前で測定)の最良値は,630GHz帯において約300Kである. 受信機の冷却に用いられる液体ヘリウムの容量は7L,液体窒素(77Kの熱シールド用)の容量は4L,液体ヘ リウムの保持時間は大気圧下で約30時間である.液体ヘリウムや液体窒素の上空での蒸発を防ぐため,クライオ スタットタンク内の圧力を約1.05気圧に保つための保圧弁を液体ヘリウム及び液体窒素注入ポートに取り付け



図1 BSMILES のシステムブロック図.



図2 BSMILES の外観.



図3 光学系.5枚の収束鏡、3枚の平面鏡、LO注入フィルムから成る.DSB受信を行う.

た.電源には30時間保つように設計されたリチウム電池パックが使われた.保圧弁は2004年の気球実験に使用したものが動作不良を起こしていることが真空試験により判明し,交換することで対処した.(2004年の液体ヘリウム早期消失の原因は弁の不良であった可能性がある.)

2004年の観測では、この装置を使ってオゾン、オゾン同位体、HCl, HCl 同位体、HO<sub>2</sub>の検出に成功した [10-12].図5に2004年の観測で得られたスペクトルを示す.この中には2006年の観測分子であるHO<sub>2</sub>やオゾ ン、一酸化塩素が含まれている.図5(a)にはいくつかの異なる仰角でのデータが示されている.図5(b)に は、検出されたHO<sub>2</sub>のスペクトルが示されているが、観測データから得られたrmsノイズは約70mKであり、 S/N~10で検出に成功している.この時のシステム雑音温度は観測帯域内で450K以下、最良値340Kであった. 観測時刻は9:50-11:30で観測時間は約1時間半であるが、2GHzの観測帯域を1GHz毎に時分割で観測し



図 5 2004年の観測で得られた(a) O<sub>3</sub>, HCl<sup>35</sup>, HCl<sup>37</sup>等, (b) HO<sub>2</sub>のスペクトル. 積分時間約1分.

ていること,高度方向にスキャンしていることや観測中に較正データを取得していることで,図5に示されている1つのスペクトルは仰角0.7°の範囲を積分した,積分時間約1分間のデータである.システムのrmsノイズ(T<sub>ms</sub>)は,雑音温度(T<sub>sys</sub>),積分時間( $\tau$ ),周波数分解能(B)で決められる(T<sub>ms</sub>=T<sub>sys</sub>/ $\sqrt{B\tau}$ ).従って,この高感度受信機を用いることで HO<sub>2</sub>の短時間検出が可能であり,かつ昼夜にわたる観測を行うことで,HO<sub>2</sub>の日変化を測定することが出来ると期待される.また,図6に2004年観測時の気球高度プロフィルを示す.午前10時頃から午後7時頃まで高度30-35kmで飛行している.この時と同様に約10時間(以上)の観測を行うことで,日変化を観測出来ると期待される.

### 3. 放球実験

2006年9月4日6時28分, BSMILESはB200型により放球された.高度プロフィル,飛行軌跡を図7に示す. 気球は放球1時間12分後に上昇速度を0にし,東方130kmの海上に達した時点で再上昇した.放球約4時間52 分後にレベル高度37.9kmに到達し,約2時間の観測(レベル高度到達後,ゴンドラは10分程度の周期でゆっく りと揺れたり,静止したりしていた.)の後,13時46分に地上からの指令で機器は気球から切り離された.観測 機は海上にパラシュートで着水し,20時までに船で回収された.回収後,与圧容器内の機器は防水されているこ



とが確認された.機器は全て正常に動作し、電波スペクトルデータが得られた.

#### 4. 観測結果

図8に仰角-5.5°~+2°の範囲をスキャンして得られた放射電波スペクトルを示す. O<sub>3</sub>, HCl が検出され ていることが分かる. 観測時に受信機性能が若干劣化していた事(SIS ミクサにかける磁場が最適値から放球 2-3日前にずれた為,システム雑音温度が約760K となった.)と,それに伴い分光計への信号入力レベルが若 干低下し(但し,この時点では2004年の観測時とほぼ同レベル),かつ放球時にさらに約半分に下がった(放球 時に加わった加速度は約+1G)ため,分光計のダイナミックレンジの狭い領域で使用する事になり,結果,強 度の弱い信号が特定し難くなっている.図8に見られるオゾン,HCl は,図5(a)と同じライン(HCl は右側) を観測したものであるが,HCl スペクトルの微細構造も2004年の観測時に比べて判別し難くなっている.

今回検証観測として, ECC オゾンゾンデをゴム気球により BSMILES と同日に放球した.オゾンゾンデは 10時00分(600g気球)と14時20分(2000g気球)に放球された.10時放球のゾンデは高度7kmで観測が終了し たが,2回目に放球したゾンデは高度約34kmまでのデータを取得することができた.また,光学式オゾンゾン デを,BSMILES のゴンドラ上部に取り付けて放球したが,放球時に遮光版が破損し,観測途中で電池が切れる というトラブルが生じた. ECC オゾンゾンデによって得られた,オゾンの高度分布を図9に示す.









図9 ゴム気球を使った ECC オゾンゾンデによる観測. (a) 10:00放球 (b) 14:20放球.

5. まとめ

HO<sub>2</sub>の日変化の観測を行う事を目的に、2006年に第三回目の BSMILES の放球実験が行われた.システムは全 て正常に動作し、スペクトルデータが取得された.今回の観測では、分光計のダイナミックレンジの狭い領域で 観測していたことから、目的とした観測を十分に行うには至らなかった.SIS ミクサに印加する磁場を現在の固 定式から可変式に変えることや、分光計への入力をモニタして、コマンドによるレベル調整機構を付けること等 でシステムの改善が出来る.この装置はJEM (Japanese Experimental Module)/SMILES (Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder) [13] の検証観測やデータ処理技術開発にも役に立つことが期待される. さらには THz 帯における大気観測 (1.8THz, 2.5THz, 3.5THz OH) や、天体観測への応用も期待される.

参考文献

- [1] R. R. Conway, M. E. Summers, and M. H. Stevens, "Satellite Observations of Upper Stratospheric and Mesospheric OH: The HOx Dilemma", *Geophys. Res. Lett.*, vol. 27, no. 17, pp. 2613–2616, Sept. 2000.
- [2] D. G. Johnson, K. W. Jucks, W. A. Traub, and K. V. Chance, "Smithsonian stratospheric far-infrared spectrometer

and data reduction system," J. Geophys. Res., 100, 3091, 1995.

- [3] K. W. Jucks et al., "Observations of OH, HO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, and O<sub>3</sub> in the upper stratosphere: implications for HO<sub>x</sub> photochemistry," *Geophys. Res. Lett.*, vol. 25, no. 21, pp. 3935–3938, 1998.
- [4] J. W. Waters *et al.*, "The UARS and EOS microwave limb sounder (MLS) experiment," J. Atmos. Sci., vol. 56, no. 2, pp. 194–218, 1999.
- [5] B. J. Drouin, H. M. Pickett, "Laboratory and field studies in rotational spectroscopy at the Jet Propution Laboratory," in Proc. Int. Workshop on Critical Evaluation of mm-/submm-wave Spectroscopic Data for Atmospheric Observations, Mito, Japan, Jan. 2004, pp. 10–13.
- [6] T. Canty, H. M. Pickett, R. J. Salawitch, K. W. Jucks, W. A. Traub, and J. W. Waters, "Stratospheric and mesospheric HO<sub>x</sub>: Results from Aura MLS and FIRS-2," *Geophys. Res. Lett.*, vol. 33, L12802, 2006.
- [7] C. Day, "New measurements of hydroxyl in the middle atmosphere confound chemical models," *Physics Today*, Nov., pp. 17–19, 2000.
- [8] 入交, 真鍋, 落合, 増子, 山上, 斎藤, 井筒, 並木, "サブミリ波による成層圏 O<sub>3</sub>, CIO の観測", 宇宙航 空研究開発機構研究開発報告 大気球観測報告, pp.90-104, 2004年3月
- [9] S.Ochiai, S. Tsujimaru, Y. Irimajiri, T. Manabe, and I. Murata, "Stratospheric ozone and ClO measurements using balloon-borne submillimeter limb sounder," *IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing*, vol. 43, no. 6, 2005.
- [10] 入交, 真鍋, 落合, 山上, 斎藤, 川崎, 井筒, 並木, 佐藤, 村田, "サブミリ波による成層圏 O<sub>3</sub>および HCl の観測", 宇宙航空研究開発機構研究開発報告 大気球観測報告, pp.69-76, 2005年2月
- [11] Y. Irimajiri, T. Manabe, S. Ochiai, H. Masuko, T. Yamagami, Y. Saito, N. Izutsu, T. Kawasaki, M. Namiki, I. Murata, "BSMILES-A Balloon-Borne Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder for Stratospheric Measurements," *Geosci. Remote Sensing Lett.*, vol.3, no. 1, pp. 88–92, January 2006.
- [12] Y. Irimajiri, S. Ochiai, T. Manabe, T. Yamagami, Y. Saito, N. Izutsu, T. Kawasaki, M. Namiki, I. Murata, K. Sato, "Development of a Balloon-Borne Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder for Atmospheric Observations," 25th International Space Technology Symposium, Proceedings, 2006.
- [13] JEM/SMILES home page, http://smiles.tksc.jaxa.jp/