

音響光学素子を用いた気球搭載用小型分光器の開発

緒方 麻里子¹・小山 孝一郎²・松坂 幸彦²・太田 茂雄²
斎藤 芳隆²・並木 道義²・山上 隆正²

Development of a compact photospectrometer for balloon experiment

By

Mariko OGATA¹, Koh-ichiro OYAMA², Yukihiko MATSUZAKA², Shigeo OHTA², Yoshitaka SAITO²,
Michiyoshi NAMIKI² and Takamasa YAMAGAMI²

Abstract: We have developed a spectrometer that uses an acousto-optic tunable filter (AOTF) to measure minor constituents of troposphere and stratosphere by sun light absorption. The spectrometer consists of an AOTF, a RF generator to drive the AOTF and a photomultiplier to detect the light selected with AOTF. The weight of the instrument is 4.0kg and power consumption is 7.0W. A wavelength range to be scanned by spectrometer is 410-460nm, and resolution of wavelength is 0.85nm. A balloon (BT5-21) which accommodates the newly developed instrument was launched to measure NO₂ at Sanriku Balloon Center on September 12, 2002. The results that was obtained successfully showed that height of NO₂ maximum is 30km and NO₂ maximum density is 3.0×10⁹cm⁻³. The value agrees quite well with that obtained with UARS (Upper Atmospheric Research Satellite) 10 days after the balloon launch.

概 要

我々は音響光学素子を用いて、太陽吸光法により成層圏の大気微量成分を測定するための新しい分光器を開発した。分光器の主な構成は、音響光学素子、音響光学素子に印加する高周波を作る高周波発信機そして光検出器としての光電子増倍管である。重量は4.0kg、消費電力は5.0Wである。本分光器の分光波長範囲は410 - 460 nm、波長分解能は0.85 nmである。

2002年9月12日三陸大気球観測所において、本観測器を搭載し成層圏NO₂を観測する気球実験が行われた。実験は成功し、解析の結果、高度30 kmで3.0×10⁹cm⁻³のNO₂密度ピークがあることがわかった。この結果は衛星UARSに搭載されているHALOEによって本実験の10日後に観測されたNO₂高度分布と非常に良く一致していることがわかった。

¹東京理科大学理学研究科

²宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究本部

重要語：小型気球，NO₂，音響光学素子，成層圏

1. はじめに

1970年代から1980年代にかけてThe Atmospheric Environment Service (カナダ) によってStratoprobe気球観測キャンペーンが行われた。観測対象は、NO₂やHNO₃を含む微量成分であり、カナダのモントバやサスカチュワンで行われたこのキャンペーンは成層圏の考え方や、初期のNO_xの見積もりを行った (Evanse [1977], Evans [1981], Evans [1985], Ridley [1984])。中緯度で、オゾンの減少が見られ始めた (Stolarski [1991], Stolarski [1992], Kerr [1993]) のは、これらの観測のあとである。その後は、現在まで多くの緯度や場所でNO_xの観測が行われるようになっていっている (Sen [1999], Jucks [1999], Toon [1999])。1970年代のカナダでの観測は、中緯度でのオゾンの減少が見られる前に行われているため、現在でもオゾンとNO_xの相関を比べるのに非常に貴重なデータとなっている。また観測方法としては、地上観測・気球観測に加え、衛星 (例えばUARS: The Upper Atmosphere Research Satellite) や高高度飛行機 (例えばER-2: 高度20 kmまで飛ぶことが可能) などが主流になっている。

しかし、長期的な成層圏NO_xの研究は、あまりなされていない。NO₂のコラム量についても体系的な観測は、限られた場所・時間でしかされていない (Kerr [1982], McKenzie [1991])。最も最近では、Liley [2000] が、地上観測によって得た1981年から1999年までの18年間のNO₂コラム量を解析し、10年間で5%増加傾向にあることがわかった。衛星観測では、Randel [1999] がHALOE (UARSに搭載されている大気微量成分測定器) のデータより、1992年から1998年までの間で高度25–35 kmの二酸化窒素は1年間に約2–10%の増加をしていることがわかった。これらの増加が前節でも述べたような対流圏のN₂Oの増加によるものと考えられることができるが、対流圏N₂Oの増加は1年間に0.3%程度であり、これだけでは成層圏NO_xの増加を説明することは出来ない。これからは、オゾンやNO₂に関係する様々な物質と共に、長期的な目で研究を進めていかなくてはならない。

現在までの研究で、オゾンの減少とNO_xの関係は定性的には説明が出来るようになってきた。しかし、オゾンの減少量、それに寄与するNO_xの効果、それ以外の物質の効果など、モデルと観測では一致していない。これからの課題は、定量的にもこれらを完全に解明していくことである。今後数十年で我々は、極域から中緯度にまで及んできたオゾンの減少をくい止め、もとの成層圏の化学平衡状態に戻していかなければならない。そのためにも、この不明確さを改善していくべく研究を進めていく必要がある。

日本においても、オゾンは衛星や気球 (ゾンデも含む) などによって定常的に観測されている。しかし、NO_xについては、定常的な観測は全くなされていない。日本での気球観測では、1978年に初めてNO₂の観測 (柴崎和夫 [1978]) が行われ、その後1986年に2回目の観測 (柴崎和夫 [1988]) が行われている。柴崎氏は1997年にも、新しく開発したNO₂の放射計によって気球観測を行っているが、高度分布の算出にはいたらなかった。そして、日本初の衛星によるNO₂の観測は1997年に上げられたILASによって行われたが、約半年しかデータを得ることは出来なかった。

本研究の目的は、将来的に、気球・飛行機・衛星などに搭載し、NO₂の定常的な観測が出来るような小型軽量の分光器の開発を行い、その分光器を用いて気球観測を行いNO₂高度分布を測定することである。

2. 音響学型分光器と太陽追尾装置

2.1. 分光器概要

音響光学素子は、松下電子部品のMF20-006を使用している。光検出器は、光電子増倍管を用いるが、気球搭載時の低圧力による放電の危険性を考え、光電子増倍管とそれに印加する高圧電源が一体となりメタルパッケージされている浜松ホトニクス製H5780を使用した。分光器の概略図を図2.1に示す。

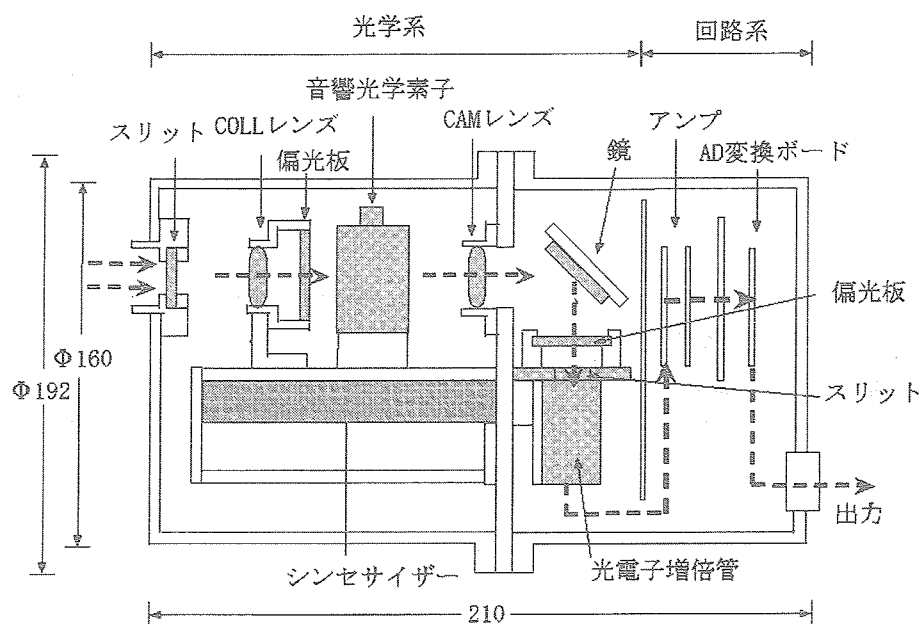


図2.1 音響光学型分光器概略図

今回観測対象としている NO_2 は420-450 nmで特徴的な吸収構造を示す(図2.2)。よって今回の分光波長範囲は410-460 nmとし、音響光学素子にはそれに対応する75-95 MHzの高周波電圧を印加する。高周波発振器の性能(出力安定化時間: 25 ms)と音響光学素子の性能(応答時間: $9 \mu\text{s}$)を考慮して、ステップ間隔は27 ms毎25 kHzで掃印する。75-90 MHzまでの1スキャンは、600ステップ、16.2秒かかる。

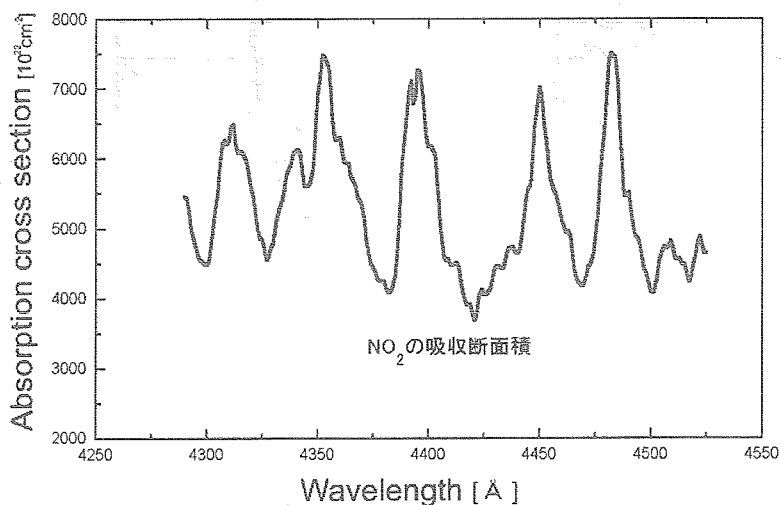


図2.2 NO_2 の光吸収断面積

気球実験を行う場合、日没の観測になるため急激な光量の減少が考えられる。よって光電子増倍管の増倍率は、スイッチ（気球実験ではコマンド）によって4段階にかえることができるように設計した。

測定器の視野は音響光学素子の結晶の大きさによって決まる。今回使用している4 mm×7 mmの結晶では、約±1.3度となる。太陽の視直径は約0.5度であるため、この視野内に太陽を十分に捉えられると考えられる。

観測器内には、気圧・温度を測定するためのセンサーも内蔵している。観測器内には高圧電源が含まれており、気球実験の際、上空の低圧下で放電することが考えられるため大気圧封じをしている。温度変化にも耐えうるように、シリコン製のOリングを使用した。

観測器の電源は±15 V、消費電力は7 Wである。観測器内の回路部にはA/Dコンバータが入っており、データはバイフェーズ形式のデジタル信号で出力される。転送レートは、16 kbit/秒でテレメータに送られる。

観測器は、直径160 mm、長さ210 mmの円筒形の形をしている。重量は約4.0 kgである。観測器の外装は、軽量化のためアルミニウムを利用している。

既知の波長にピークを持つ水銀ランプを用いて、音響光学素子に印加する周波数と、分光される光の波長との関係を調べた。水銀ランプの分光結果を図2.3、光同調特性を図2.4に示す。測定器内部に取り付けられている高周波発振機では、75－90 MHzまでしか発振することが出来ないため、水銀ランプによる較正時は外部からの高周波発振装置を使い45－100 MHzまで印加して光同調特性を作った。しかしこの波長内にピークは5点しかないため、これでは正確な波長同調特性とは言いがたい。実際の観測では、太陽のフラウンホーファー線・NO₂の吸収など、この波長域で多くの特徴的な形を確認することが出来る。よって、実際の解析では、フラウンホーファー線およびNO₂の吸収ピークを用いて波長の同定を行うこととする。

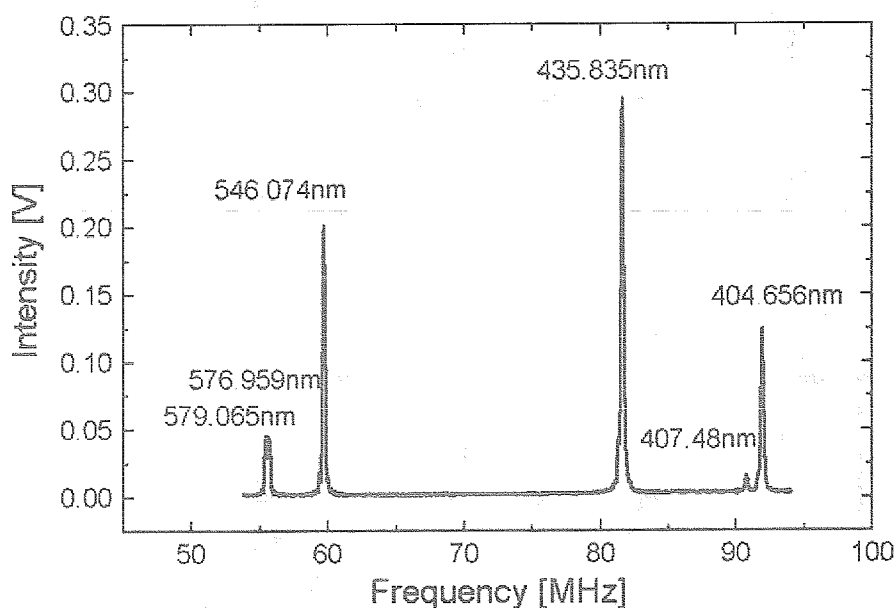


図2.3 水銀ランプの分光結果

観測器内蔵の高周波発振装置を用いて、測定器の波長分解能を調べた。波長分解能はピークの半値幅とし、水銀ランプの435.835 nmのピークよりもとめた。結果、測定器の波長分解能は0.85 nmである。NO₂の吸収をみるために必要な分解能は1.0 nmであるため、この分光器で十分二酸化窒素の吸収を見る事が可能である。

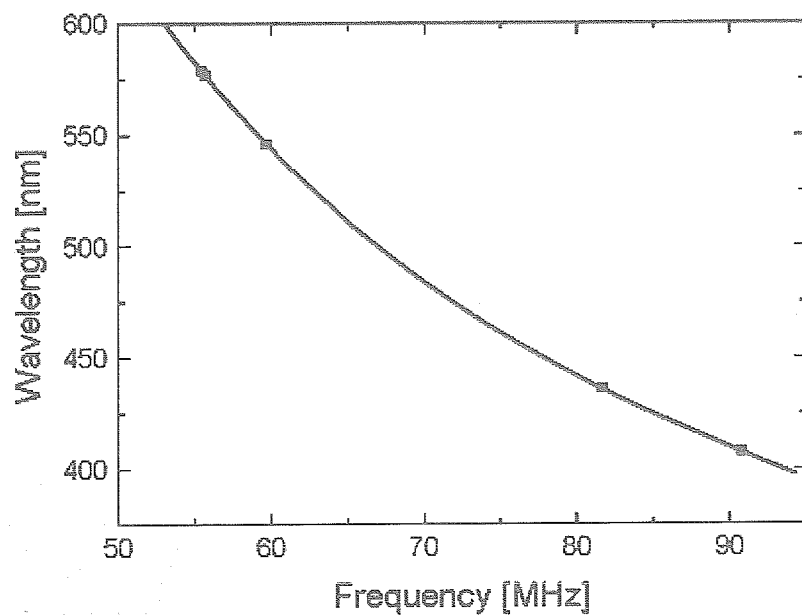


図2.4 光同調特性

表2.1 分光器仕様

観測対象	光強度, 温度 (観測器内), 気圧 (観測器内)
観測装置外寸	直径: 160 mm, 長さ: 210 mmの円筒形
観測装置重量	4.0 kg (観測器のみ)
分光波長範囲	410 - 460 nm (印加周波数 75 - 90 MHz)
測定器視野	$\pm 1.3^\circ$
波長分解能	0.85 nm

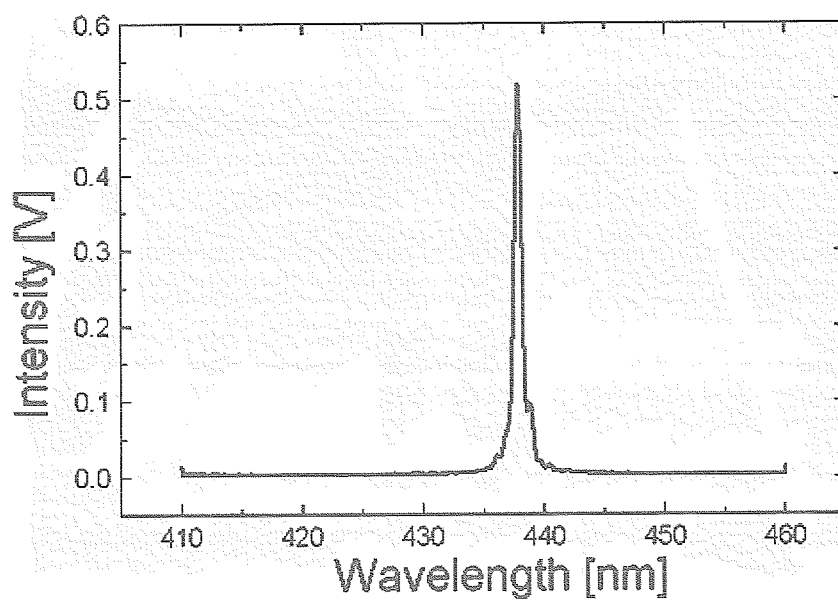


図2.5 半値幅の決定

2.2. 太陽追尾システム

気球観測では、観測器視野内に太陽を取めるため、太陽を追尾する必要がある。太陽天頂角80度から上空日没(約95度)まで観測を行った場合、観測中に動く太陽の角度は仰角:約15度、方位角:約20度である。我々は、観測器視野内(±1.3度)に太陽をおさめるために仰角・方位角ともに太陽を追尾するシステムを開発した。

太陽追尾の前に、まずは観測器視野内に太陽を取めなくてはならない。測定器の視野は±1.3度と狭いため、計算である程度太陽方向が予測できるとしても、最初からこの視野内に太陽を捕まえるのは難しいと考えられる。そこで、我々は観測器より視野の広い2つの太陽センサーを気球に搭載し、徐々に太陽を観測器視野内に追いつくことを考えた。

方向制御に使用する3つのセンサーについて説明する。最初に、地球磁場からセンサーの軸を横切る磁束密度に比例した出力(電圧を)を出すGAセンサーである。これが主に方位角方向をモニターするセンサーであり、地上試験で出力と向いている方向との関係を調べておくことにより、方位角方向のセンサーとなる。次に平行型太陽センサーである。二枚の太陽電池を、太陽方向と平行な方向から±1度ずつずらしハの字形になるように置き、お互いの電池の出力が等しくなる時が、太陽方向を向いていることになる。太陽方向から約±90度以内であれば、太陽方向を見つけることができる。最後に直径10mm×長さ200mmの筒の一端に、6mm×6mmの太陽電池を取り付けている筒型太陽センサーである。視野は、筒の直径および長さで決まり、本センサーは±2.3度であり、観測器視野より約2.0度広い。センサーと観測器の光軸は合うようにセットしている。

2.2.1. 方位角制御

気球観測において、従来考えられてきた方位角制御方式には、1. 観測器自体を動かす直接制御方式、2. リアクションホイール方式、3. よりもどし方式[西村, 1969]などがある。今回のように観測器が小型軽量である場合、もっとも精度良く装置自体も小型であるのが、2. のリアクションホイール方式[狛, 1984]である。そこでわれわれは、この方式を利用し開発を行った。

構成は、観測器を回すリアクションホイール、ホイールをまわすタコジェネレータつきリアクションモータ、吊紐のよじれをなくすためのよじれ戻しモータ、そして方位角制御回路部分で成り立っており重量は0.5kgである。観測器を特定の方向に向けるセンサーは当初太陽センサーを考えていたが、日没時の太陽光強度は急激に弱くなるためGAセンサーを用いることにした。姿勢制御の原理は、回転方向を運動方程式から導くことができ[狛,

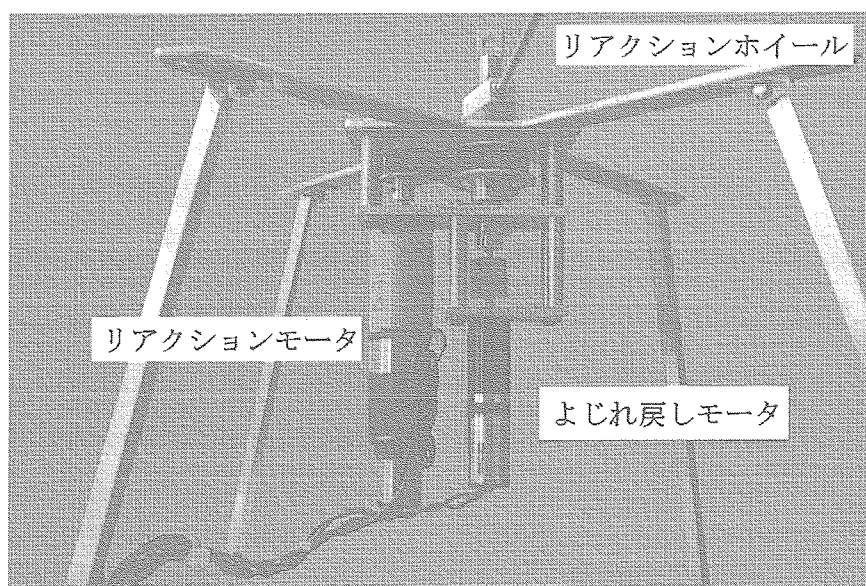


図2.6 方位角駆動部

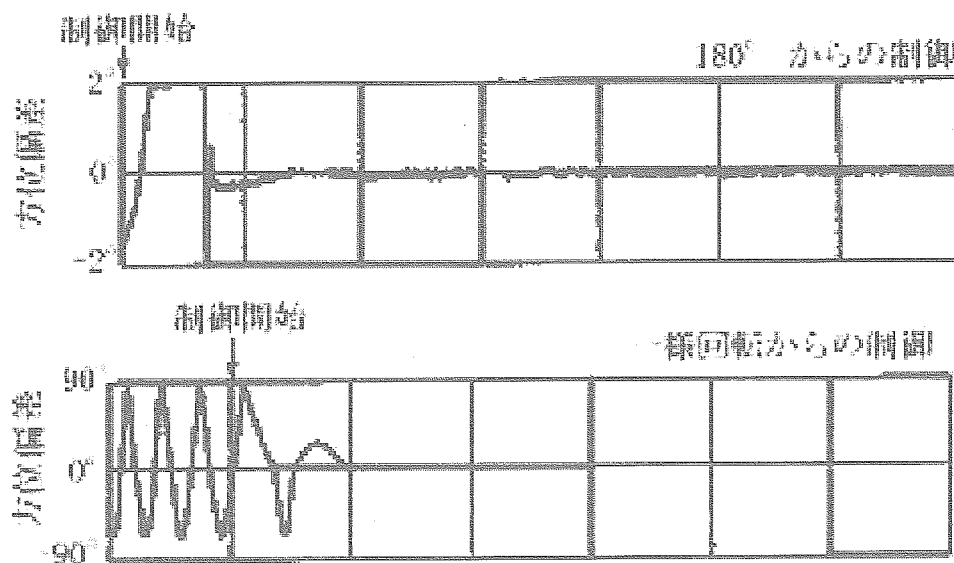


図2.7 方位角制御試験の結果 [松坂, 2002]

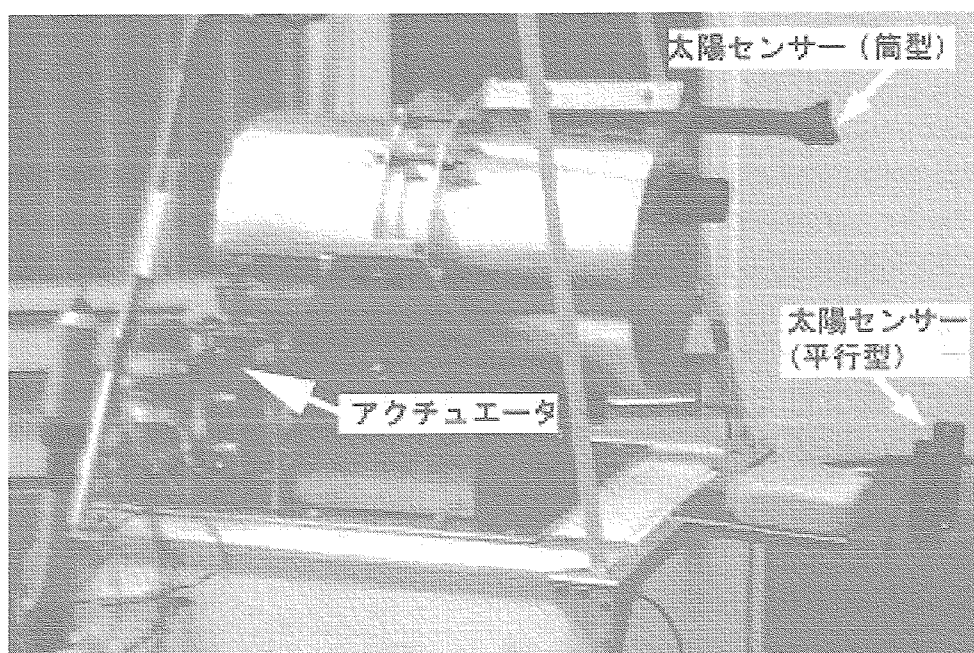


図2.8 方向制御装置

1984], GAセンサーの出力とタコジェネレータからの出力をもちいて、アナログ演算回路で制御信号をつくることできる。指定方向とGAセンサーとのズレ角が収斂するようにリアクションモータに駆動信号をあたえる。また、制御によって吊紐にトルクがかかるため、それがなくなるようにより戻しモータの駆動信号をあたえる。以上が制御系である。地上で行われた制御試験の結果を図2.7に示す。観測器を気球と同様に紐で吊り下げ、設定方向から約180度ずれた方向を向いている状態と一様に回転している状態から方向制御を開始した場合のそれぞれの方向制御の結果である。この結果、設定方位角から約 ± 0.2 度の精度で方向制御を行うことがわかった。また太陽追尾にあたっては、オフセット電圧をを加えることで、設定方位角を変化させることができる。

観測時、太陽は方位角方向に約0.193度/分で動いている。よって、3分に一度オフセット電圧を加え、観測器を0.6度づつずらすことによって太陽を追尾することができる。

2.2.2. 仰角制御

仰角の制御には、図2.8のようなアクチュエータを用いる。ONコマンドで仰角駆動モータが動き始め、0.45度/秒の速さで仰角方向に移動し、OFFコマンドで停止する。センサーとしては、1度につき1つのパルスを出力する位相検知ロータリーエンコーダを使用し、観測器仰角方向をモニターした。

観測時、太陽は仰角方向に約0.158度/分で動いている。よって、2.5分ごとに11秒間仰角駆動装置を動かし、観測器を0.5度づつずらすことによって太陽を追尾することができる。

3. 較正実験

気球実験に向けた観測器の較正実験を行った。最初に温度試験を行った。気球に搭載し観測を行う場合、観測時の温度条件は非常に厳しくなる。図3.1に標準大気温度分布を示す。このように気球が上昇する時、観測器は最も温度の低いところで -65°C の大気をとおることになる。観測器が太陽にあたっていること、また観測器の消費電力から考えられる発熱などを考慮しても、十分に低温でも観測器が正常に動作する必要がある。

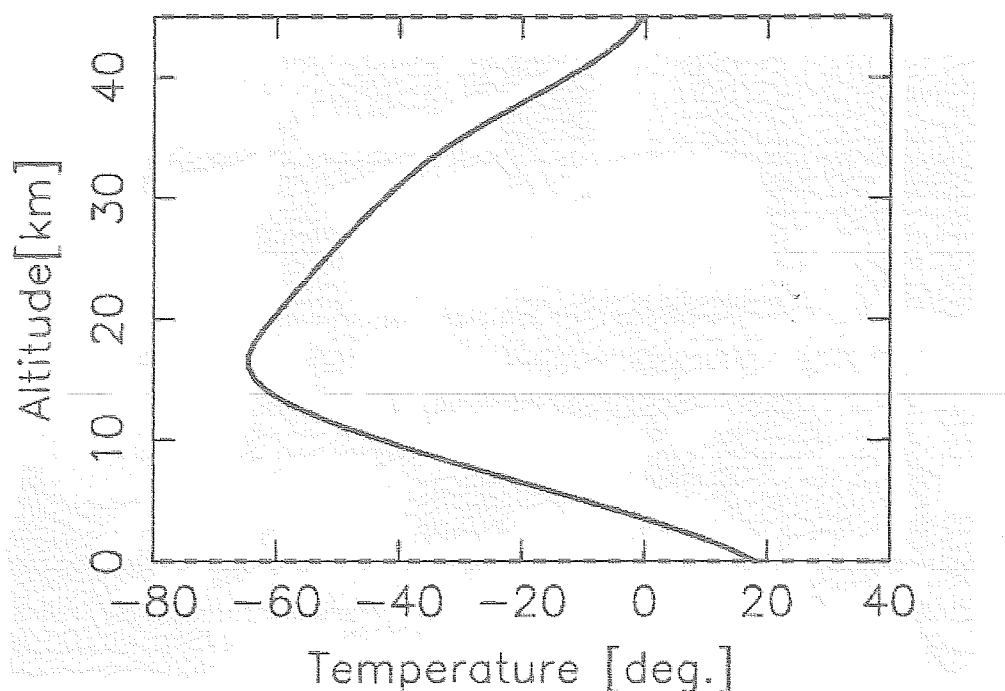


図3.1 標準大気温度分布 (MSISデータより)

第二に気球搭載時の光検出器のゲインの設定である。地上で太陽スペクトルの観測を行いその光強度から、気球実験で得られる太陽スペクトル強度を推定し、気球実験用の光検出器（光電子増倍管）のゲインを決定する。また日没時の、急激な太陽光強度の減少を考え4段階の増倍率を用意する。

3.1. 温度試験

測定器の低温での動作確認、また低温での装置特性を調べるため温度試験を行った。気球観測での推定水平浮遊高度は40 kmであり、約 -10°C の状態の数時間の観測が予想される。そこで我々は、温度試験層内の温度を室温から 25.2°C から -20°C まで変化させ、観測器の温度特性を調べた。光源は温度試験層の側壁にある小窓を利用し、蛍光灯（水銀ランプなどでは光量が足りなかった）の光を入射させた。観測器を急激に冷却すると、観測

器内部に霜がつく可能性があるため、温度層内温度 0℃の状態です約 1 時間置き、それから -20℃まで下げた。また霜防止のため、測定器内部には吸湿剤（シリカゲル）をいれた。

結果、温度層内と観測器内の温度変化を図 3.2 に示す。測定器回路部の発熱などにより、観測器内の温度は、外部と比べて 10℃ほど高い状態で安定する。気球観測時には太陽があたっていること、観測器内がこれ以上冷えることはないと考えられる。

次に温度を変化させたときの蛍光灯の分光結果を図 3.3 に示す。まず温度によって、ピークの位置が変化していることがわかった。それぞれの温度でのピークの位置、半値幅を表 3.1 にまとめる。まず蛍光灯光量のピーク位置についてだが、温度の下降とともにより低い周波数にピークが現れるようになっている。これは、温度によって波長同調特性が変化することを意味している。温度に対して変化するピーク周波数は、ほぼ線形であり 10℃の温度の下降で平均 0.09 MHz ほど変化している。次に半値幅であるが、半値幅に関しては温度依存性は見られない。これは、測定器の波長分解能が温度依存性を持っていないことを示している。分解能は ±0.0185 MHz 程度のばらつきは持っているが、これは波長に直しても ±0.06 nm と非常に小さいため誤差の範囲である。次に、光強度の感度について検討する。温度の下降と共に測定される光強度が弱くなっている（図 3.4）。これらの原因としては、超音波発信機の出力の低下、音響光学素子の回折効率の低下、光電子増倍管感度の低下などが考えられる。

表3.1 温度試験:蛍光灯の分光結果

観測器内温度 (°C)	-10.8	-0.2	11.0	20.0	33.2
ピーク位置 (MHz)	80.71	80.86	80.95	81.09	81.16
ピーク出力 (V)	0.71	0.78	0.817	0.85	0.87
半値幅 (MHz)	0.263	0.226	0.253	0.232	0.235

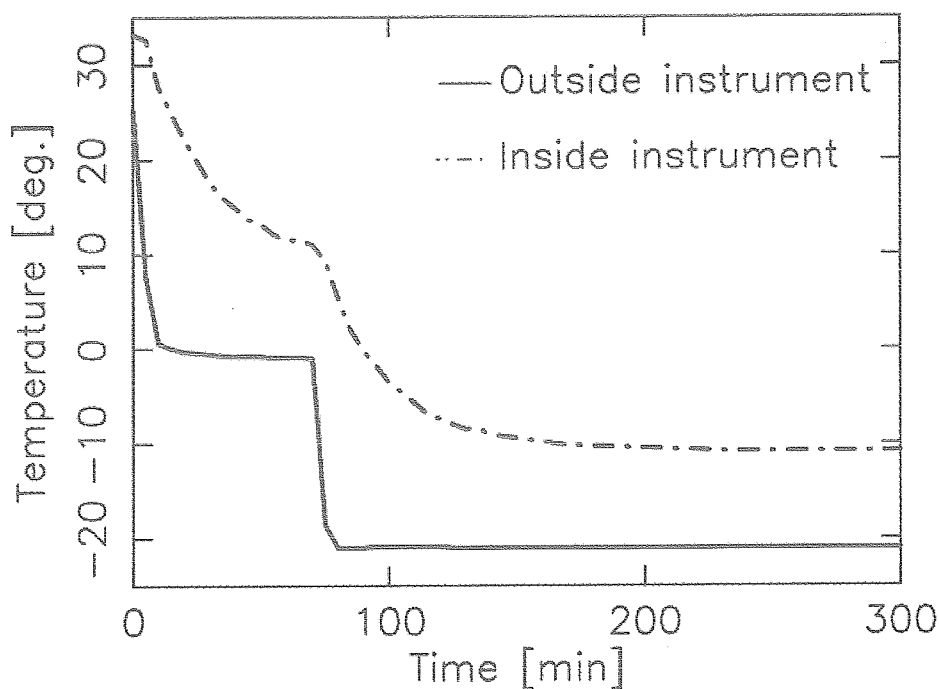


図3.2 温度試験層内および観測器内の温度

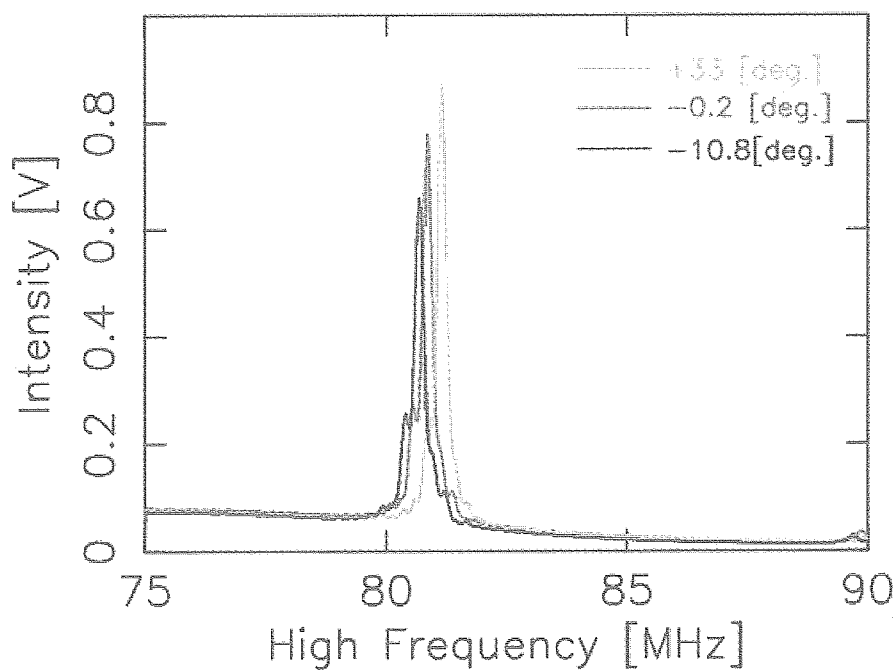


図3.3 温度試験結果

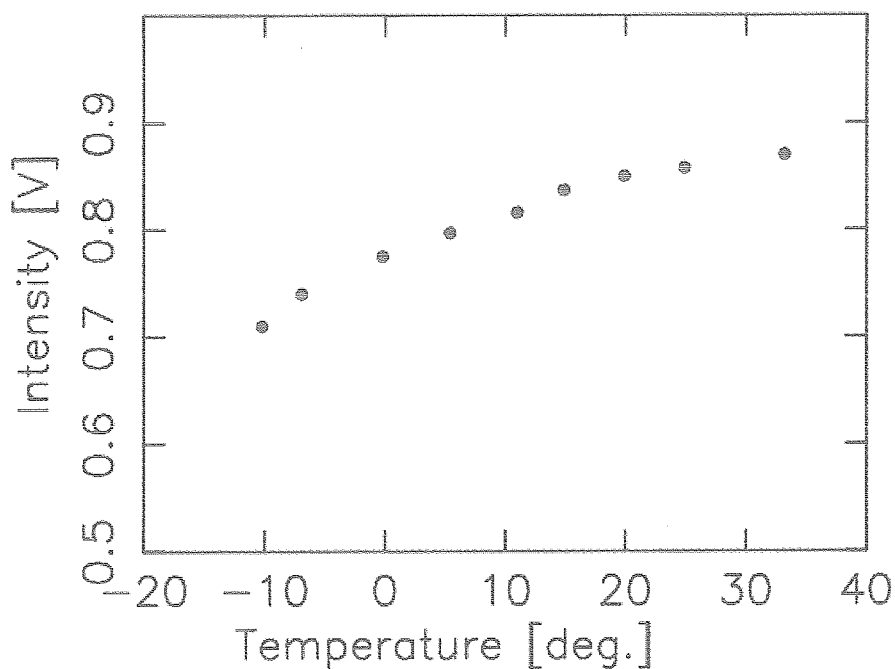


図3.4 光強度の温度依存性

以上の結果から測定器の性能をまとめると、1. 温度の下降と共に音響光学素子の波長同調特性は長波長側にずれる、2. 波長分解能は温度に依存しない、3. 光強度の感度は、温度の下降と共に図3.4のように減少する。実際の観測は、水平浮遊時（一定高度で）行うため観測の間での温度の変化は少ないと思われる。しかし、観測中にある程度の温度変化があった場合には、今回の温度試験の結果をもとに得られた結果を修正する必要がある。

3.2. 地上実験

予備実験として、地上の太陽スペクトルを観測した。地上で観測される太陽光強度と、気球で観測される太陽光強度では、光のおおる層の厚さや光路長の違いから、ある程度の差があると考えられる。地上観測により得られた太陽スペクトルから、気球実験で観測される太陽光強度をシミュレーションし、気球搭載用観測器の光検出器の感度を決定した。晴天の日（2002年9月2日）に観測された、太陽天頂角30度での地上太陽スペクトルを図3.5に示す。この観測をもとに標準状態の大気を仮定し、気球が35kmで観測を行った場合に得られる太陽光強度をシミュレーションしたものが図3.6である。光強度は、地上で太陽天頂角30度に観測される光強度で規格化したものである。これらの結果より、気球観測で得られるスペクトル強度は、最も強い時で地上での太陽天頂角30度の光強度の約1.4倍であることがわかる。なお図3.5の観測は、光電子増倍管のコントロール電圧540mVで行っている。コントロール電圧とは、電子増倍管に印加する高電圧を間接的に制御するもので、コントロール電圧を変化させることによって光電子増倍管の光増倍率を変えることができる。光電子増倍管とコントロール電圧の関係を図3.7に示した。図3.5の観測を行った2002年9月2日は、晴天であったが目に見えぬ雲などによる影響なども考えると、厳密には気球で観測される光量は1.4倍以上であるといえる。光強度のデータは0-5Vを12bitで取得しているため、このままの感度で気球観測を行った場合、出力がダイナミックレンジを超えてしまう可能性がある。ゆえに気球実験の際には、もっと低い感度が必要になる。加えて、気球実験時は日没のため、観測中の急激な光量の減少が予想される。対流圏界面（15km）付近までのNO₂高度分布を求めるためには、太陽天頂角94度まで観測する必要がある。つまり、気球観測において最も強い光量の10%に光量が減少しても観測できるような感度の設定を行わなければならない。

以上のことを考慮した結果、気球搭載用の光電子増倍管のコントロール電圧は470mV、540mV、630mV、700mVの四段階用意することにした。これらの設定で、観測器の感度は最大18.8倍あげることができる。各感度における水銀ランプの分光結果を図3.8、図3.9に示す。

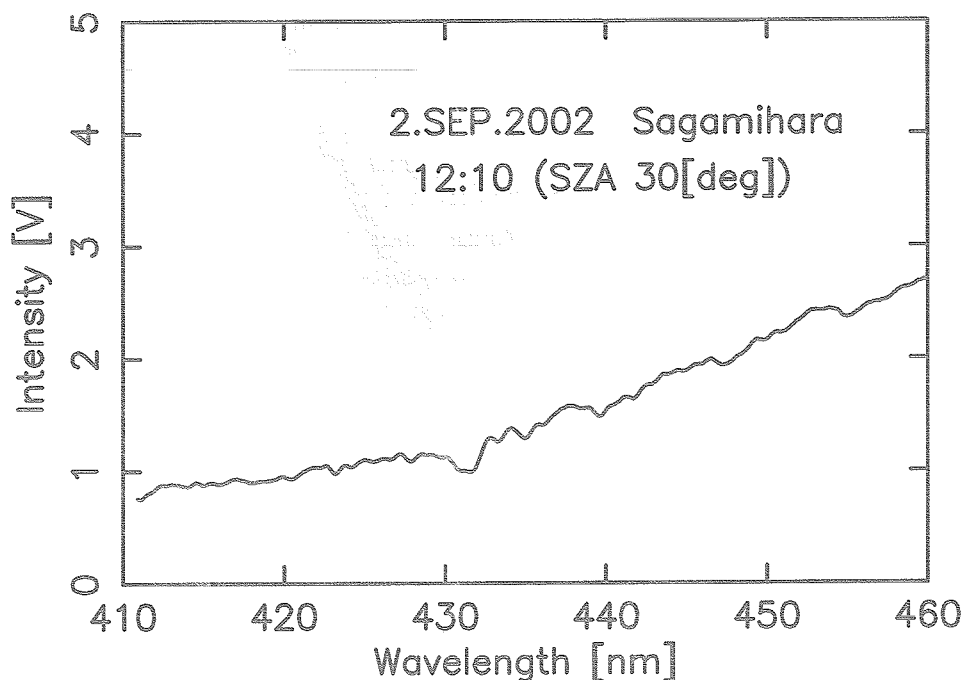


図3.5 2002年9月2日 太陽天頂角30度の時の太陽スペクトル

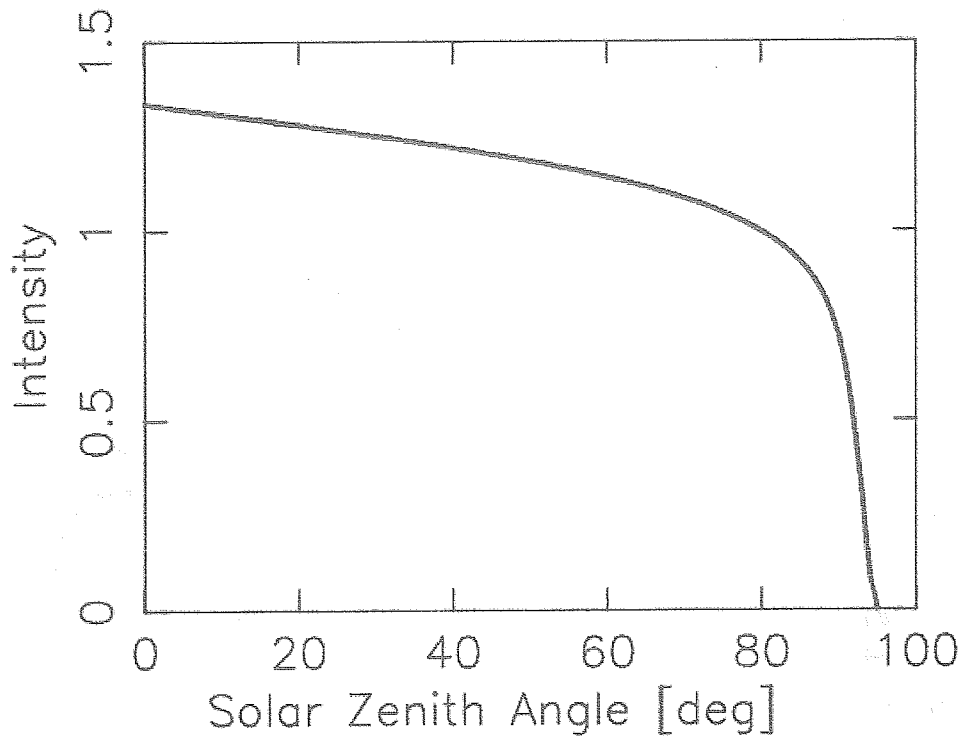


図3.6 シミュレーションによる太陽光強度

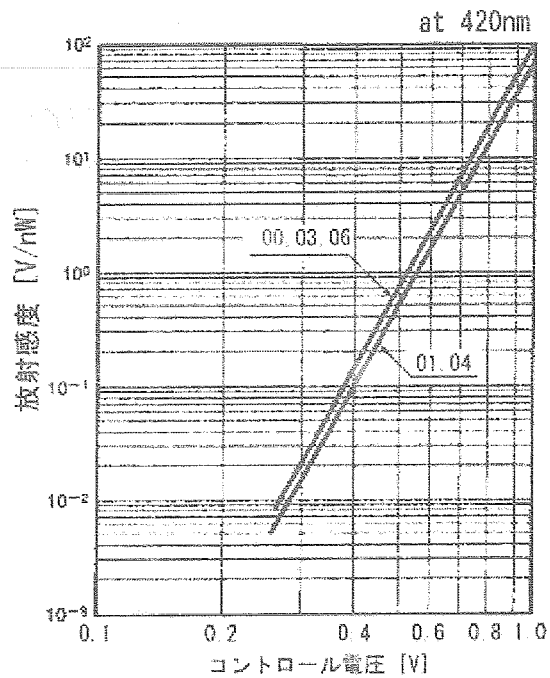


図3.7 光電子増倍管の感度特性 (浜松ホトニクス 資料)

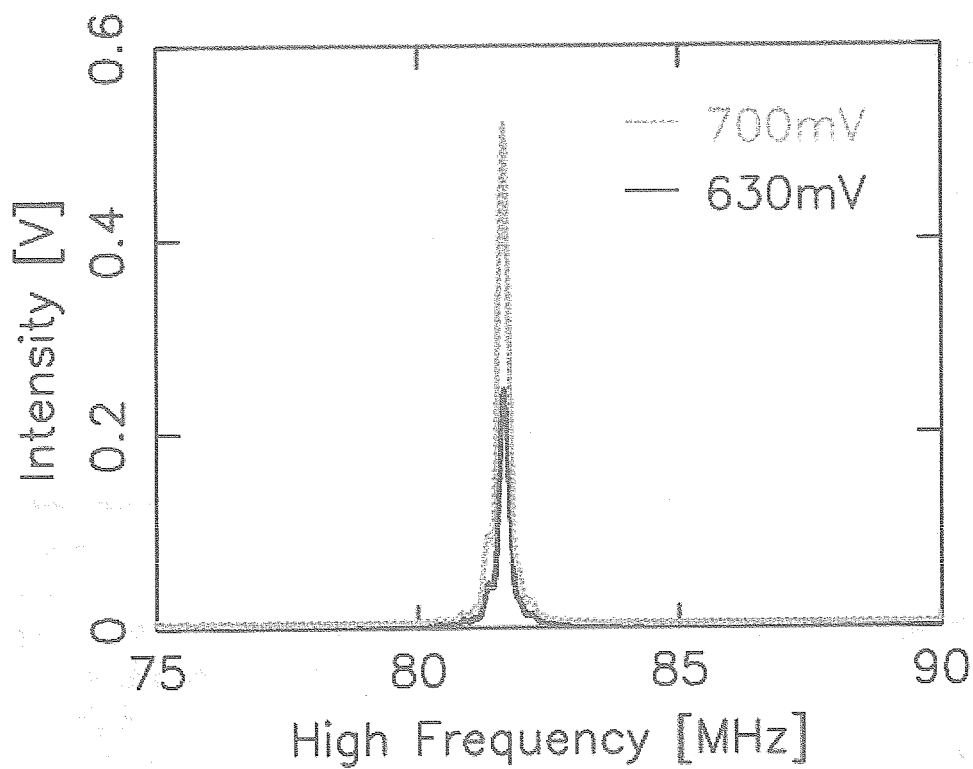


図3.8 水銀ランプの分光結果 1

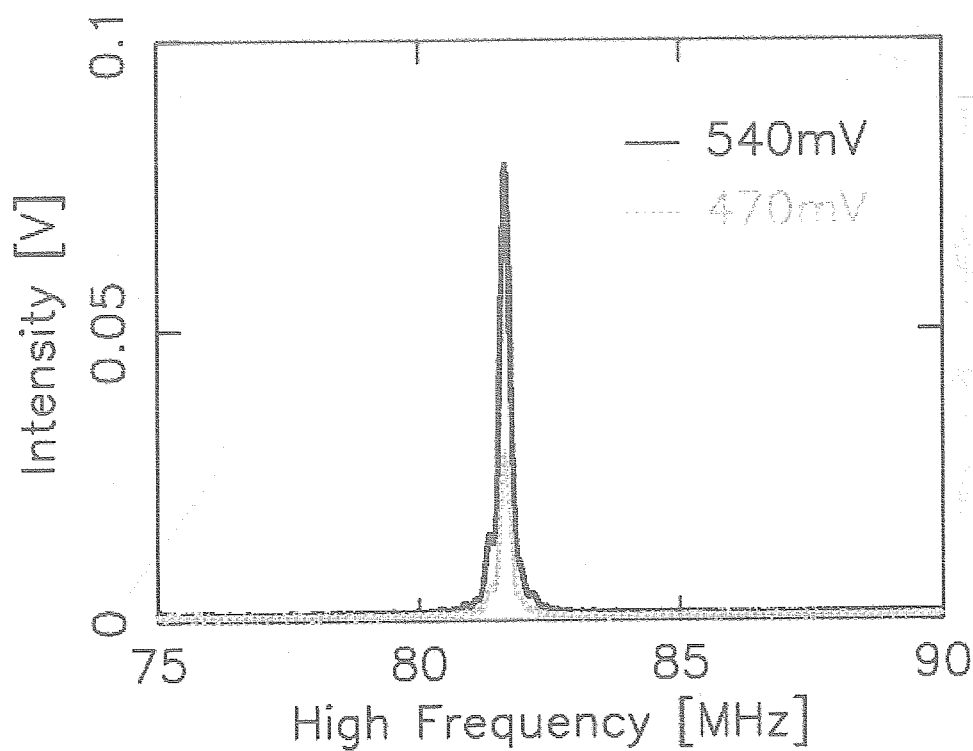


図3.8 水銀ランプの分光結果 2

4. 気球実験

4.1. 温度試験

太陽の光は地球の大気をとる途中で、様々な分子による散乱・吸収を受けて減衰される。減衰の大きさは、光の波長とその光路内に含まれる大気分子の構成と量によって変わってくる。地表での光強度をLamleert-Beerの法則によって次式のようにあらわせる。

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp(-N_i \sigma_i(\lambda)) \quad (4.1)$$

- $I(\lambda)$: 測定スペクトル強度
 $I_0(\lambda)$: 大気圏外のスペクトル強度
 N_i : 太陽光路長に沿って積分した物質iのコラム量。
 $\sigma_i(\lambda)$: 物質iの吸収断面積

ここで $N = \int n_i(z) ds$ であり、 $n_i(z)$ は高度 z での物質の密度（数密度）、 ds は光路に沿って図る微分距離である。上式からわかるように $I_0(\lambda)$ 、 $\sigma(\lambda)$ が既知であれば、物質密度の高度分布 $n(z)$ を求めることができる。そして気球により高高度での観測を行うことにより、より正確な I_0 を求めることができる。これが太陽吸光法の原理である。今回我々が観測を行う 430 - 450 nm は、 NO_2 が特徴的な吸収断面積をもち、またその値としても最も大きい。またこの波長域には他に大きな吸収を持つものがないことが、我々がこの領域を観測波長域に選んだ理由である。実際には、レイリー散乱やオゾンによる吸収などによって、太陽光は減光されるが、この波長域において特徴的な構造を示すものはない。よって太陽スペクトル中に、図 2.2 のような吸収構造があればそれは NO_2 による吸収とすることができる。

日没時の観測を行う理由のひとつは、大気中の NO_2 の量はとても微量であるため、最も吸収断面積の大きい波長域といっても、精度良く NO_2 の吸収を見るのは難しいことである。そこで日没（日の出）の観測を行い光路長

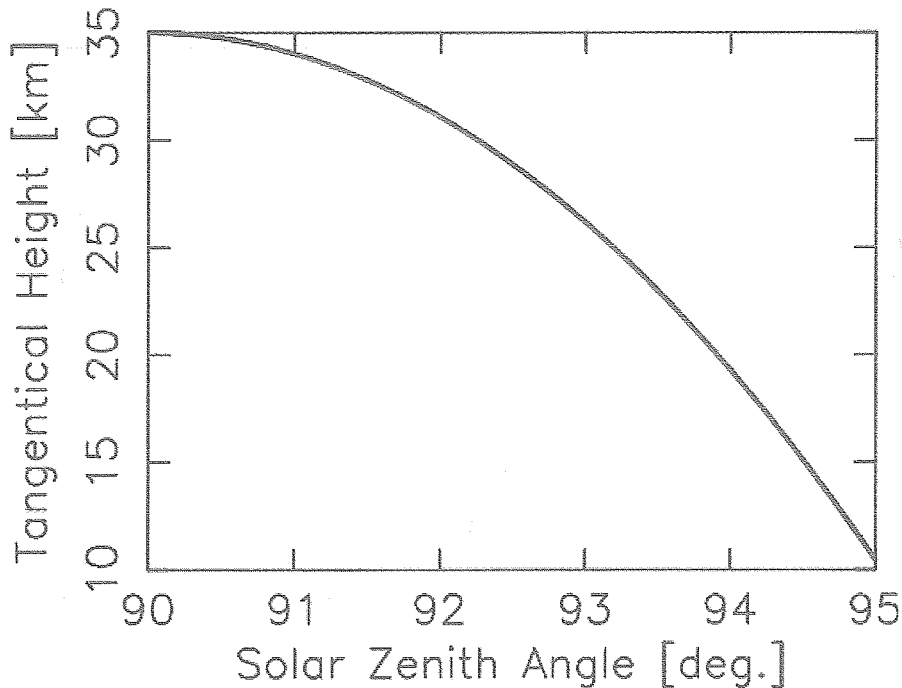


図4.1 太陽天頂角と接線高度の関係

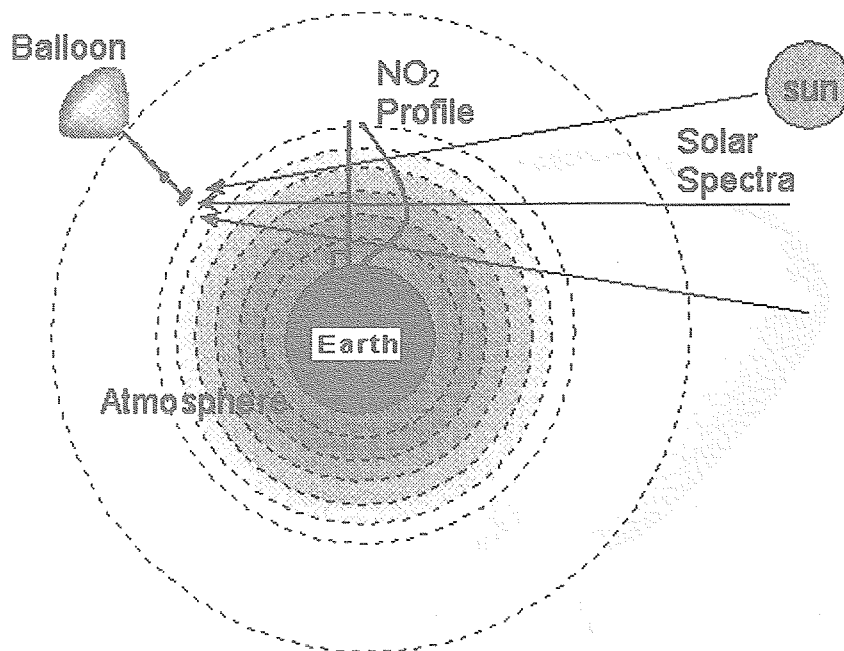


図4.2 気球実験原理

を長く取り、見かけのNO₂コラム量をふやしてやることによって、十分なNO₂の吸収を得ることが可能になる。第2に、日没時太陽光は、時間とともに大気の下層をとおるようになる。つまり太陽天頂角とともに、接線高度（太陽光が最も地表面に近づく高度）が低くなり、得られるスペクトルは時間とともに大気下層の情報も含んでいるデータとなる。太陽天頂角と接線高度の関係を図4.1に示す。これらのデータを統計的に処理することでNO₂密度の高度分布を求めることができる。気球実験の原理を図4.2に示した。

4.2. BT5-21 気球実験概要

2002年9月12日14時38分BT5-21機は、成層圏NO₂を測定するため音響光学型分光器を搭載し、三陸大気球観測所（北緯39°09′30″，東経141°49′30″）より放球された。気球が水平飛行をはじめた直後にゴンドラを太陽方向に制御し、その後太陽追尾を行いながら太陽スペクトルを観測した。以下にBT5-21の実験概要を示す。

4.2.1. 気球飛翔構成

図4.3にBT5-21の飛翔構成、図4.4には実際のゴンドラの写真を示した。観測にはBT5型の気球を用いる。BT5型は体積5000m³、直径22m、厚さ6μmの小型気球である。気球下部には排気口があり、気球高度を微調整し水平浮遊をすることができる。また気球高度を上昇させるには搭載しているパラストを放出することによって行う。パラストとはゴンドラに搭載しているおもりのようなもので、これを放出することによりゴンドラが軽くなり気球を上昇することが可能になる。観測が終了すると、気球はゴンドラと気球本体の二つに切り離し、落下させる。ゴンドラ側には落下速度を緩めるためのパラシュートがついている。気球とゴンドラの切り離しは、通常地上からのコマンドによって行うが、非常時のためにタイマーが付いておりスイッチをONにしてから6時間後に気球が切り離されていない場合、自動的に切り離しが行われる。

ゴンドラには方向制御のためのGAセンサーと太陽センサー2つを搭載した。高度、位置計測のためには測距とGPSを用いる。また当初の予定より、ゴンドラ全体の重量が増えてしまったため航空管制用トランスポンダも搭載している。2つの送信機が搭載され、それぞれPIと工学で使用する。

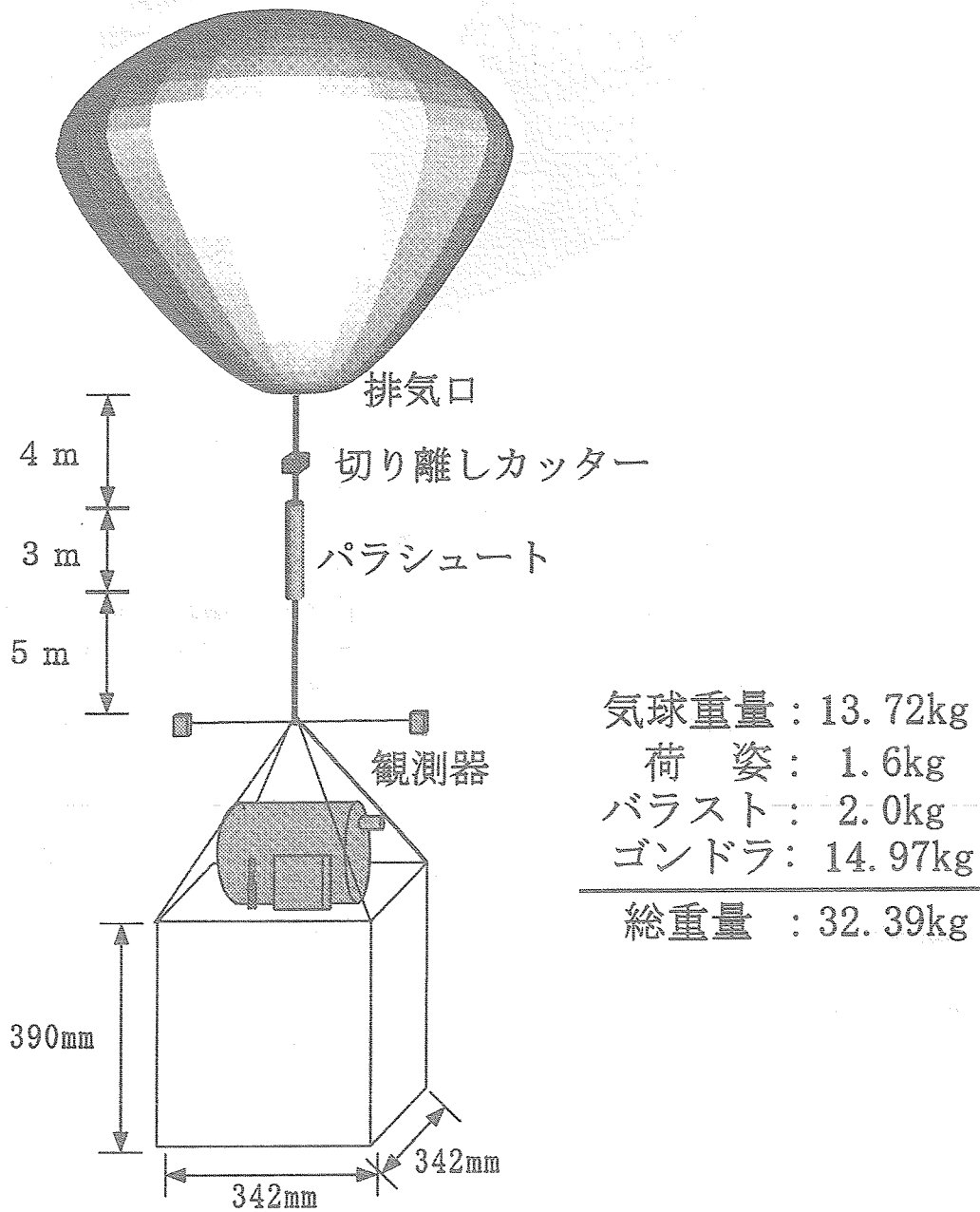


図4.3 気球飛翔構成

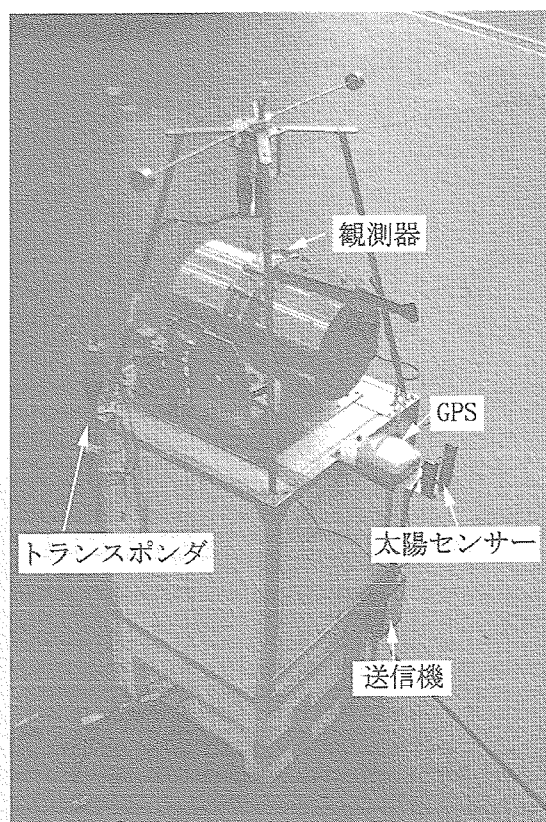


図4.4 ゴンドラ写真

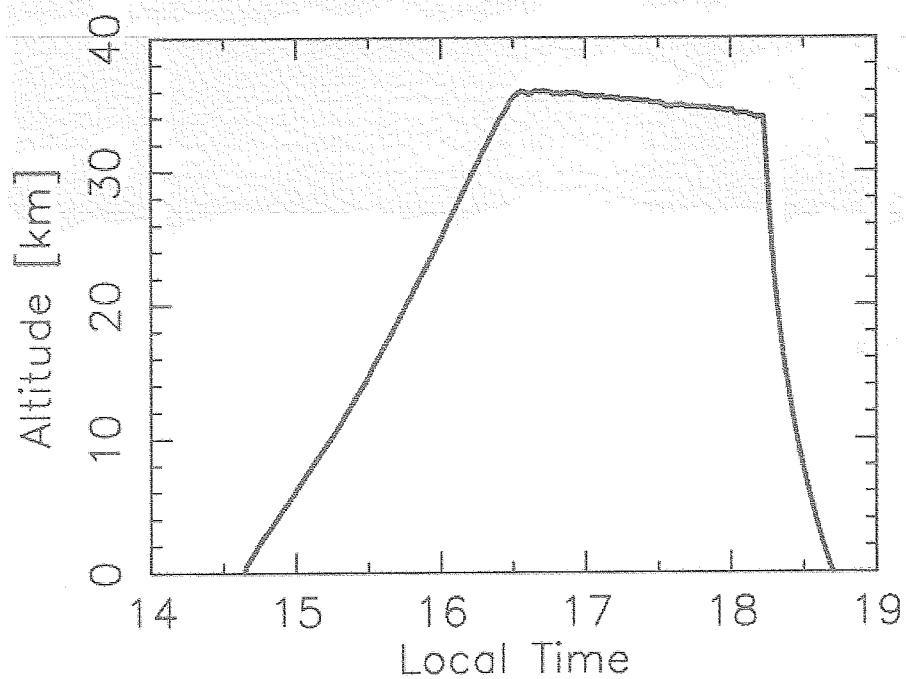


図4.5 BT5-21号機 高度変化

4.2.2. 測距航跡, 測距高度

2002年9月12日14時38分に放球された気球は毎分300mで正常に上昇し、放球約2時間後の16時35分に水平浮遊を開始した。その後16時48分に観測器内に太陽を捉え、観測を開始した。そして日没の18時12分まで観測を行い、18時14分気球を破壊し切り離した。観測器は緩やかに落下し、18時42分に船越半島東40km海上(北緯 $39^{\circ}27'$, 東経 $142^{\circ}30'$)に着水した。BT5-21号機の高度変化を図4.5に示す。

図4.6に航跡図を示す。図4.6からわかるように放球された直後、気球は東に流されていっている。これは偏西風によるもので高度10-15kmで最も強く10m/s程度の西風となっている。その後気球の上昇とともに、西風は弱まり高度20kmでは緩やかな東風に変わっている。気球はゆっくりと西に戻されながらも上昇を続け、高度36kmでも東風のにりながら水平浮遊を開始した。観測時にはかなり陸地に近づいているが、気球破壊そして落下が始まるとともに再び偏西風の強い高度をとおりため沖に流されている事がわかる。

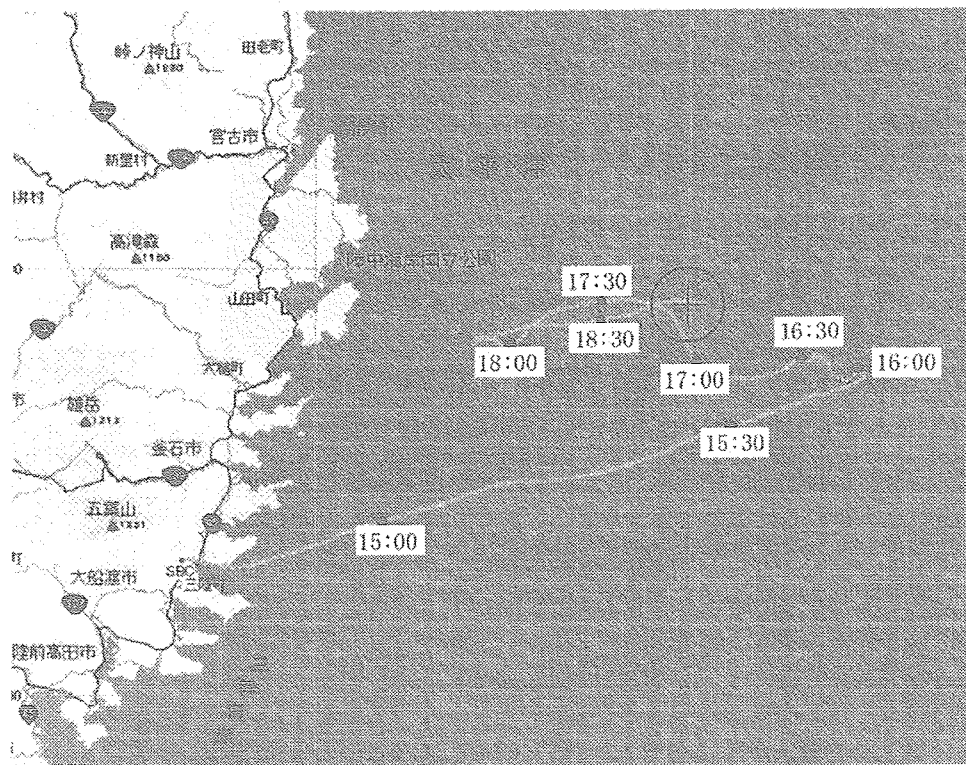


図4.6 BT5-21号機 航跡図

4.3. 太陽追尾結果

今回の観測では、太陽追尾を地上からのコマンドによる手動で行った(第2章4節参照)。方位角方向の太陽追尾結果を図4.7、仰角方向の追尾結果を図4.8に示す。方位角仰角ともに、追尾結果が階段状になっているのは、コマンドにより目標方向に観測器の向きを動かした様子である。まず方位角方向であるが、階段状に変化している上に細かい振動があるのがわかる。これは、第2章でも述べたように方向制御の精度をあらわしており、地上試験と同じく ± 0.2 度程度の精度で行われているのがわかる。測定器の視野から考えても十分な精度で制御できていることがわかる。しかし次第にコマンドによって変化させる目標方向(設定方向)が太陽方向とずれてきてしまったため、17時37分ごろに修正を行っている。その後は観測終了まで十分に太陽を追尾することができている。次に仰角方向の制御である。仰角方向へのゴンドラ自体の揺れは、過去の気球実験よりほとんどないと考えられるため、観測器はコマンドによって操作した方向を向いているといえる。ここでも、次第に目標方向と太

陽方向がずれてしまっているため、17時25分ごろに修正を行った。その追尾はうまく行っているが、17時50分を過ぎたころから大きく太陽方向からずれてしまった。図4.9に太陽追尾のまとめを示す。太陽の視直径0.5度と観測器の視野3.0度を考慮すると方位角・仰角のズレ角が0.7度以上になると視野から太陽がかけってしまうことになる。図4.9より17時50分以降の仰角方向のズレ角は0.7度を超えているため太陽が観測器視野からかけていることがわかる。この時間帯は太陽天頂角 90° 以上の部分であり、解析上最も大事なデータといえる。解析の際には、この太陽がかけってしまったことによるデータの補正を行う必要がある。

今回の太陽追尾方法の反省点として、まずコマンドにて手動で太陽追尾を行った点を考える必要がある。仰角方向の制御としては第2章で述べたように、2.5分毎に11秒仰角駆動装置を動かすといった方法である。これらの時間的な誤差が、次第に積算され大きな誤差につながったと考えられる。次にあげられるのが、観測中に目標方向と太陽方向のズレ方向およびズレ角をモニターすることができなかった点である。一度観測器視野内に太陽を捕らえた後は、実際の太陽を意識せず（修正をしているとき以外は）時間的に制御を行った。観測中に目標方向と太陽方向のズレ方向・角をモニターすることができれば、ズレ角が大きくなる前に修正を行うことができたと考えられる。

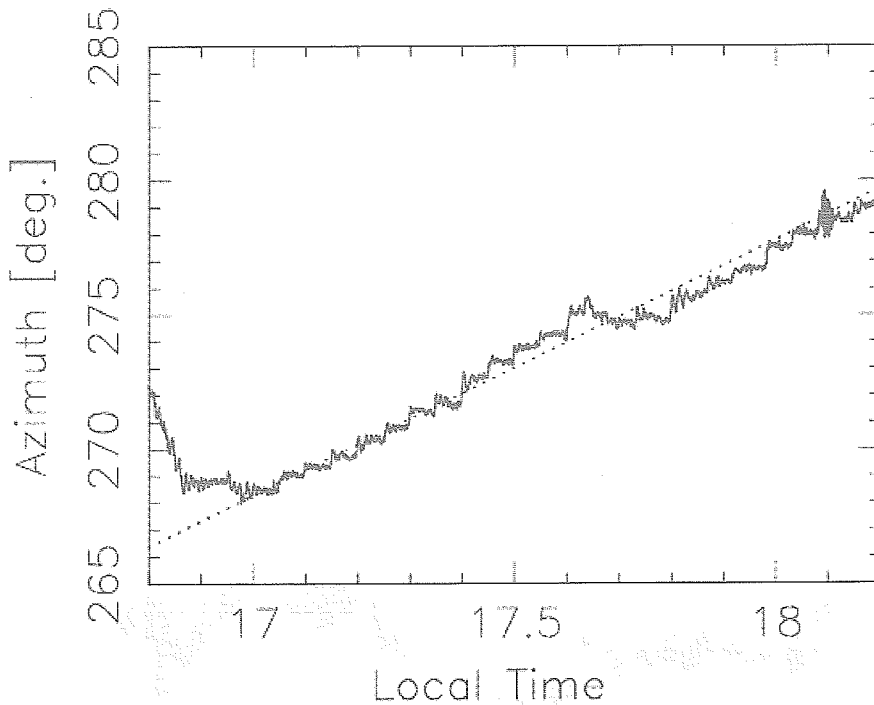


図4.7 方位角方向の追尾結果：実線は実験で観測器が向いていた方向，点線は理論的に求めた太陽方向をあらわしている。

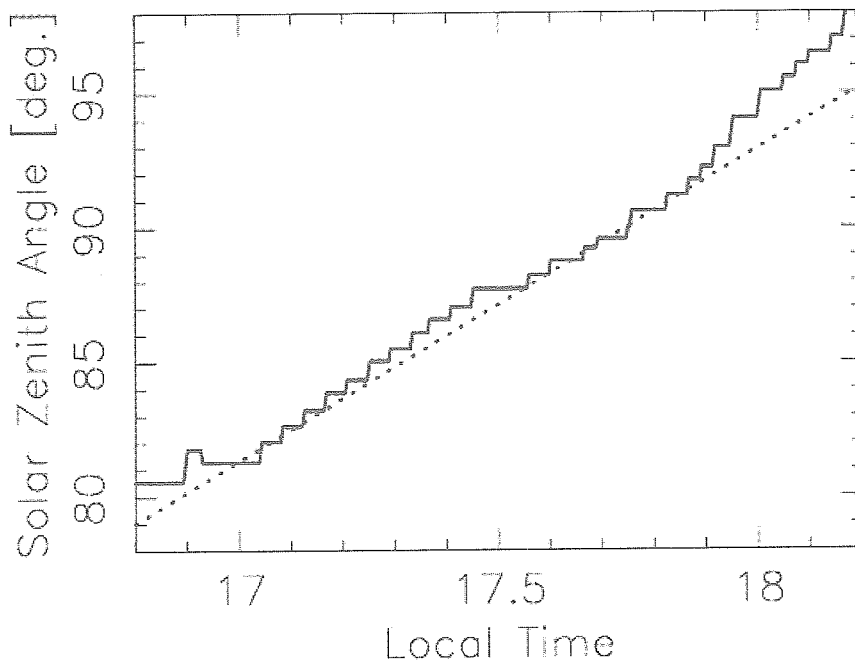


図4.8 仰角方向の追尾結果：実線は観測器が向いていた方向，点線は理論的に求めた太陽方向

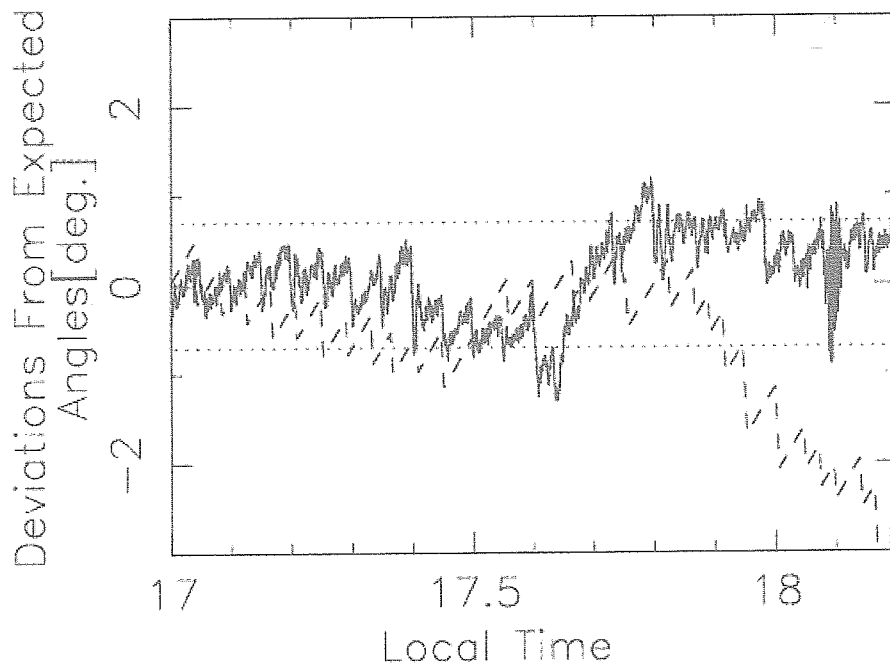


図4.9 太陽方向とのズレ角：実線が方位各方向における実験結果と理論のズレ角，点線が仰角方向の実験結果と理論のズレ角

5. 解析手法

5.1. 視線方向のコラム量の算出

吸光スペクトル統計解析法 [柴崎他, 1978] を用いて NO_2 の視線方向のコラム量を求める。地球で観測される太陽スペクトルは、太陽大気自身の吸収と地球大気による吸収とが合わさっておりとても複雑な構造を持っている。この太陽スペクトルから、地球大気による吸収だけを見るためには式 5.1 にあるように大気圏外スペクトルとの比を取ってやればよい。この比は次式のようにあらわせる。

$$\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} = f(\lambda) \exp(-N_{\text{NO}_2} \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda)) \quad (5.1)$$

$f(\lambda)$ は、オゾンによる吸収、レイリー散乱等 NO_2 の吸収以外の大気減光、装置特性などすべてを含ませている。波長 420 ~ 460 nm において、 NO_2 以外の吸収・散乱などは非常に滑らかな関数であるため $f(\lambda) = a\lambda + b\lambda^2 + c\lambda^3$ と置き、式 5.1 を用いて最小二乗法によって a , b , c および N を算出する。その際大気圏外スペクトル (I_0) は、実験により得られたもっとも太陽天頂角の小さいスペクトルを採用する。実際には気球高度以上にも NO_2 は存在しているため、このスペクトルを大気圏外スペクトルと置くことに疑問があるかもしれないが、 NO_2 の密度ピークは気球高度以下にあると考えられるうえ、太陽天頂角 90 度以上では急激に光路長ものびるため、このことによる誤差は、数%程度程度と考えられる。

5.2. 高度分布の算出

視線方向のコラム量から高度分布を算出する方法には、玉ねぎの皮むき法 [柴崎他, 1979] と拘束線型反転法 [Twomey, 1963] と大きく 2 つある。玉ねぎの皮むき法は気球高度より下層の密度分布を厳密に求めることができるが、気球より上層の密度を求めることはできない。また気球高度より下層では、上の層から徐々に密度を求めていくため誤差の伝播が起こり、誤差の評価が難しくなる。そこで我々は、Twomey の拘束線型反転法を採用することにした。以下に手法について述べる。

まず数学的に、ベクトル $\mathbf{g} = \mathbf{g}_j$ と $\mathbf{f} = \mathbf{f}_j$ が係数行列 $\tilde{\mathbf{A}} = (\tilde{A}_{ij})$ によって線形に結びついた系

$$\mathbf{g} = \tilde{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{f} \quad (5.2)$$

と考え、 $\tilde{\mathbf{A}}$ が与えられて \mathbf{g} の観測値が存在するとき \mathbf{f} を推定するという問題になる。今回は \mathbf{g} がある天頂角のときの視線方向のコラム量を成分としたベクトル、 \mathbf{f} が今回求めたい各層内密度を成分とした高度分布を表し、 $\tilde{\mathbf{A}}$ はある天頂角の時の各層内光路長を成分とする行列となる。すなわち単純な最少二乗法ならば式 5.2 は、

$$\mathbf{f} = (\tilde{\mathbf{A}} \cdot \tilde{\mathbf{A}})^{-1} \cdot \tilde{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{g} \quad (5.2)$$

の形に変形でき \mathbf{f} を計算することができる。ここで $\tilde{\mathbf{A}}$, $\tilde{\mathbf{A}}^{-1}$ はそれぞれ $\tilde{\mathbf{A}}$ の転置行列、逆行列である。しかし現実には式 (5.2) の系は singular に近い系であり、 \mathbf{g} に誤差が含まれる場合その誤差が解に大きく伝播する。そこで、 \mathbf{g} を観測値 \mathbf{g}_{obs} と誤差 $\boldsymbol{\varepsilon}$ から構成される系とみなして式 (5.2) を、

$$\mathbf{g}_{\text{obs}} + \boldsymbol{\varepsilon} = \tilde{\mathbf{A}} \cdot \mathbf{f} \quad (5.3)$$

と書き換える。通常 $\boldsymbol{\varepsilon}$ の厳密な形は未知なので直接式 (5.4) の逆変換を行っても解の安定性は保証の限りではない。そこで先験情報として、解は滑らかに変化するという情報を与える。これを式であらわすと、 $\sum_i \varepsilon_i = \text{const}$

という条件のもとで

$$\sum_f (f_{i-1} - 2f_i + f_{i+1})^2 \rightarrow \min \quad (5.5)$$

となるような解を、最小二乗法に従って f を推定する。すると式(5.4)の解は

$$f = (\bar{X} \cdot \bar{X} + \gamma \bar{H})^{-1} \cdot \bar{X} \cdot g_{\text{obs}} \quad (5.6)$$

とあらわすことができる。 \bar{H} が拘束条件を表現する行列であり、 γ が疎の拘束の強さを決める任意定数である。式(5.6)では、 \bar{X} 、 \bar{H} は観測条件、拘束条件によって決まるので、 f の各成分を誤差の伝播なく同時に算出することができる。今回の我々の解析では、気球高度より上層および下層の NO_2 の密度分布である。

ただし、拘束の強さを決める定数 γ は全く任意であり、数学的に一意に決定することはできない。 γ が小さすぎると拘束が緩やか過ぎて振動解が現れるようになり、大きすぎると過剰に平滑化された解を得ることとなる。結局、Twomeyの拘束線型反転法では、皮むき法のような誤差の伝播は防ぐことができるが、完全に一意的に解 f を求めることができず、ある程度の任意性が残ってしまうこととなる。しかし、この方法は気球上層の密度分布も求めることができ、上層から下層への誤差の伝播もなく誤差の評価がしっかりとできるので皮むき法より優れていると言えるため、我々は採用した。

6. 結果および考察

6.1. 結果

得られた観測生データを図6.2に示す。しかし第4章4節で述べたように太陽追尾の結果、視野から太陽が欠けてしまっている状況が確認された。二酸化窒素の密度は、太陽天頂角の変化によるスペクトルの相対的な変化から算出するため、このような生のデータからでは二酸化窒素の密度を求めるのは難しい。そこで視野から太陽が欠けたことによる光量の減少を補正してやる必要がある。幸いなことに、視野から太陽が欠けたことで受けるデータの影響は、今回の観測器では分光素子に入射する光の絶対量が減少するだけで、分解能、波長同調特性など装置の特性には影響を及ぼすことはない。補正の方法について説明する。全波長の走査時間は16秒である。その間に太陽は仰角・方位角共に約0.04度しか移動しないため、1スキャン内では太陽は動いていないものと考えることができ、スペクトルの形は保存すると考えられる。この波長域での大気減光は、レイリー散乱が大きく占めている。そこで二酸化窒素の吸収が無い波長(最も少ない波長)で、完全に太陽が視野内に入っているとき(観測開始時)のスペクトルを基準とし、レイリー散乱による光量の時間変化を理論的に計算する。その理論値と観測値の差が太陽が欠けたことに寄与するものといえよう。そのようにそれぞれのスペクトルにおいて補正係数を求め、データの補正を行った。また気球観測時における観測器内の温度変化を図6.1に示す。この結果より、観測開始から観測終了までの間に、約15度の温度変化あることがわかる。このことによる観測器の感度の変化も、上記の補正の中で行う。

図6.4には上記の方法で行った補正後のデータから算出した I/I_0 の値とこの測定値から統計分析法によって求めた最適曲線および NO_2 のコラム量を示す。太陽天頂角が大きくなるにつれて、視線方向の二酸化窒素のコラム量は $0.41 \times 10^{17} \text{cm}^{-2}$ 、 $0.56 \times 10^{17} \text{cm}^{-2}$ 、 $1.10 \times 10^{17} \text{cm}^{-2}$ 、 $1.23 \times 10^{17} \text{cm}^{-2}$ と増えているのがわかる。本来 I_0 とは大気圏外スペクトルである。衛星による観測などで、大気圏外スペクトルの観測値が発表されてはいるが、我々の観測器との性質の違い(分解能、装置関数など)によって、今回の解析で採用することは難しい。よって、得られたデータの中で大気圏外のスペクトルに最も近いもの、つまり太陽天頂角が最も小さい時(太陽天頂角: 80.0度)のスペクトルを、 I_0 とした。しかし今回の I_0 の中には、 NO_2 が存在するため、 N_0 (I_0 に含ま

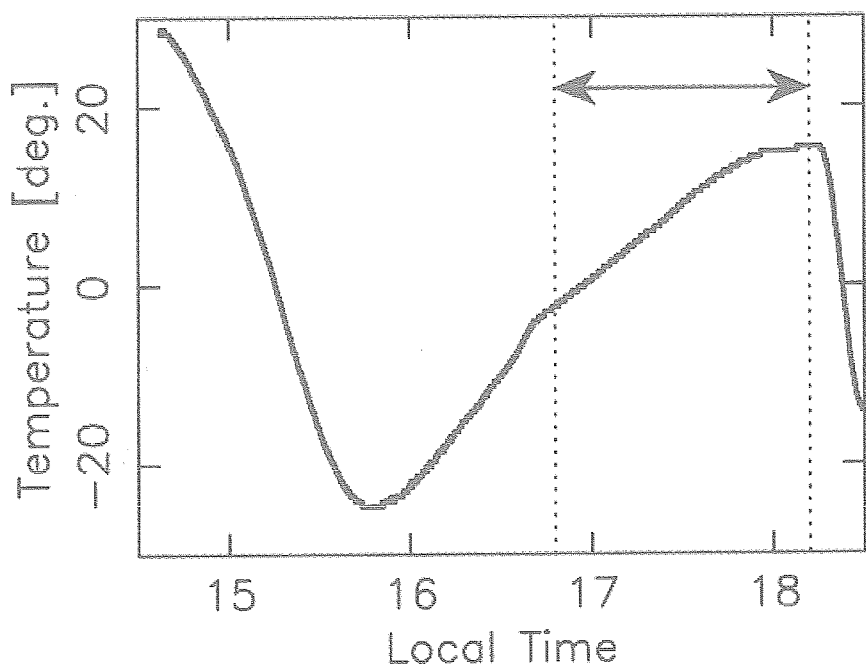


図6.1 気球実験での観測器内温度変化：矢印は観測時間

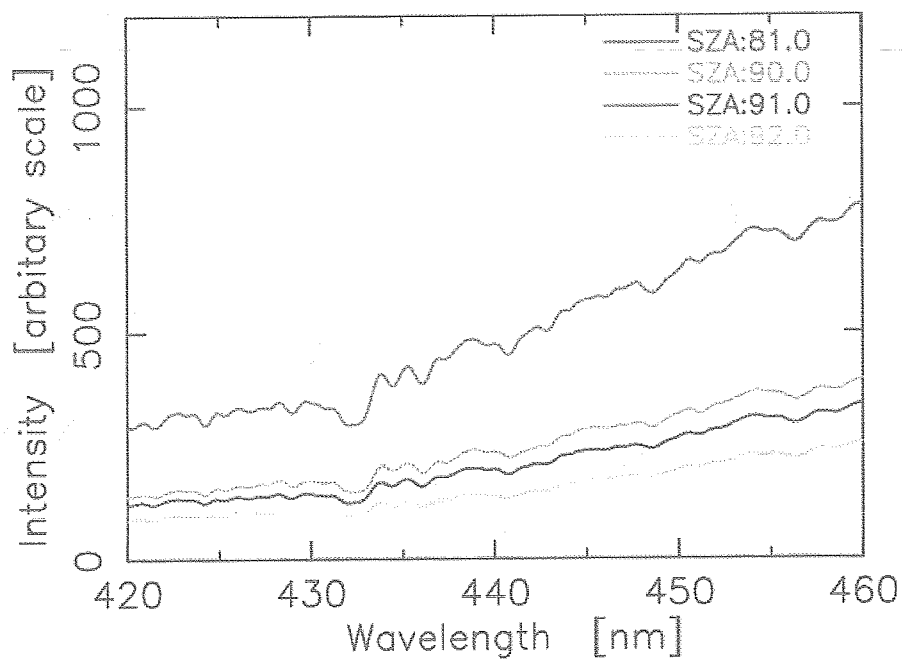


図6.2 観測された生データ

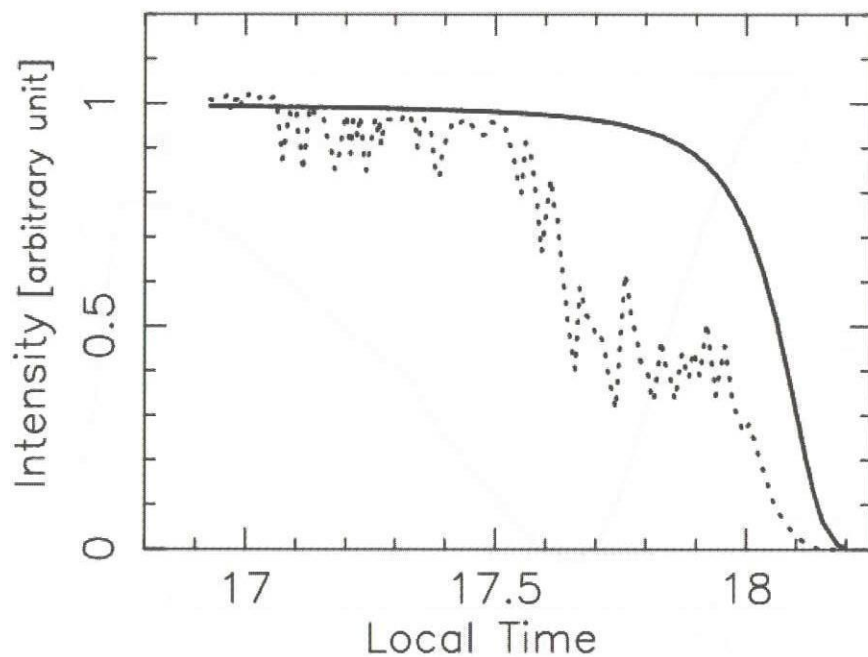


図6.3 観測値と理論値の光量の違い (波長 441.9 nm)

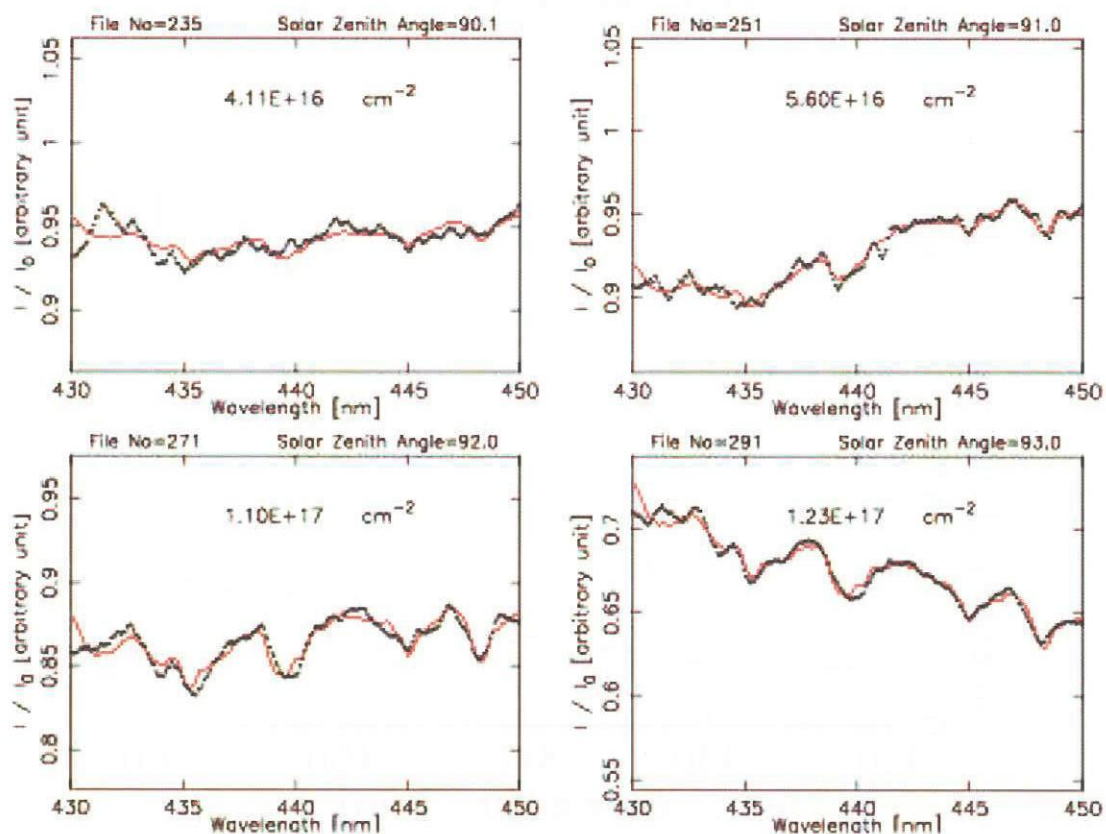


図6.4 吸光スペクトル統計分析法による解析例：黒点が観測値，赤線は最適曲線である。
 NO_2 の視線方向コラム量は図中に示している。

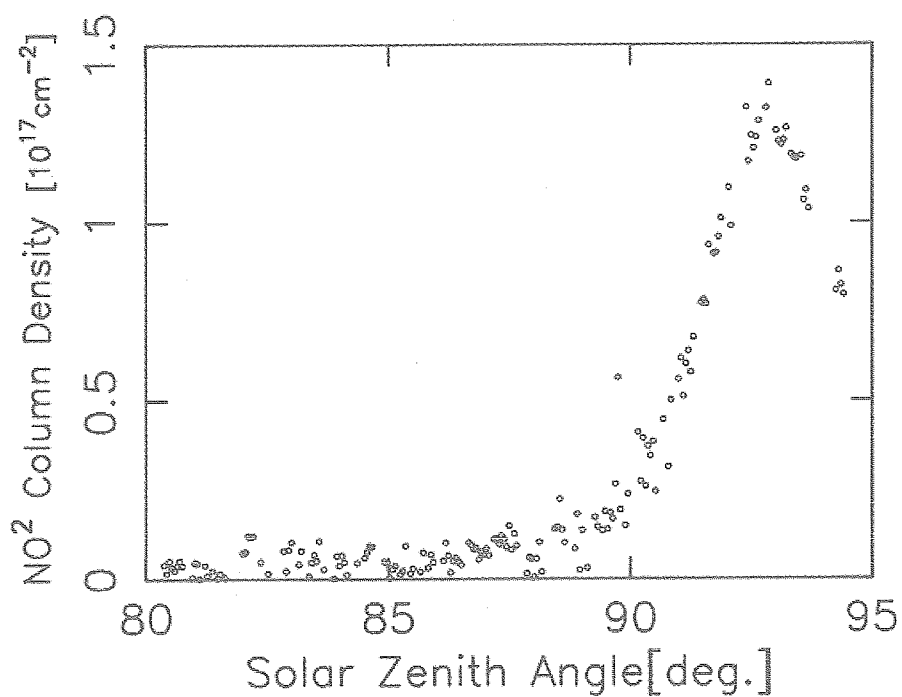


図6.5 太陽天頂角による視線方向NO₂のコラム量の変化

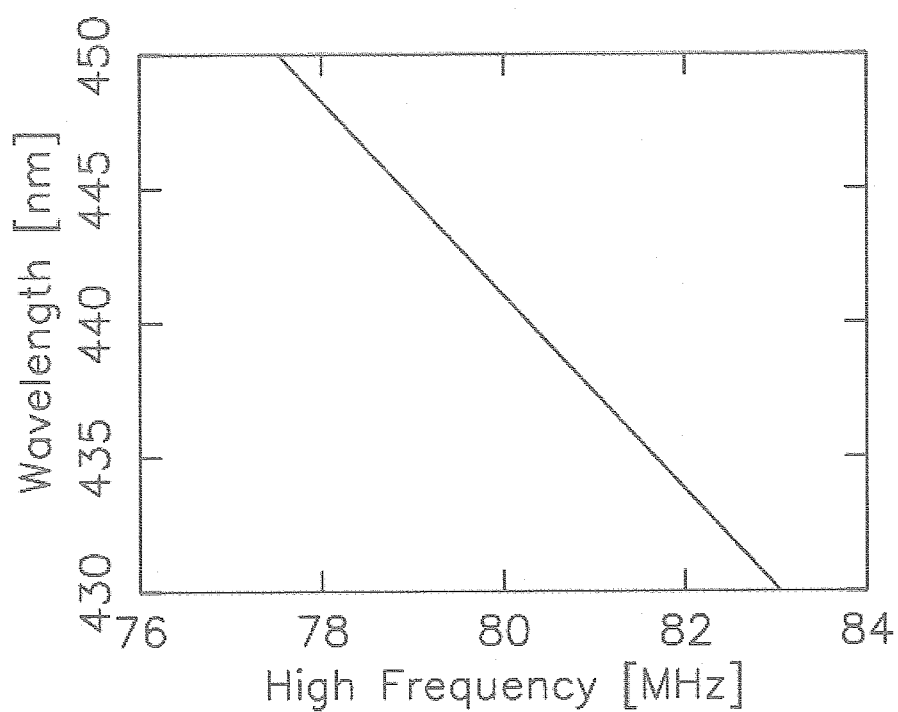


図6.6 波長同調特性：横軸は音響光学素子に印加している高周波，縦軸はそれによって分光される波長

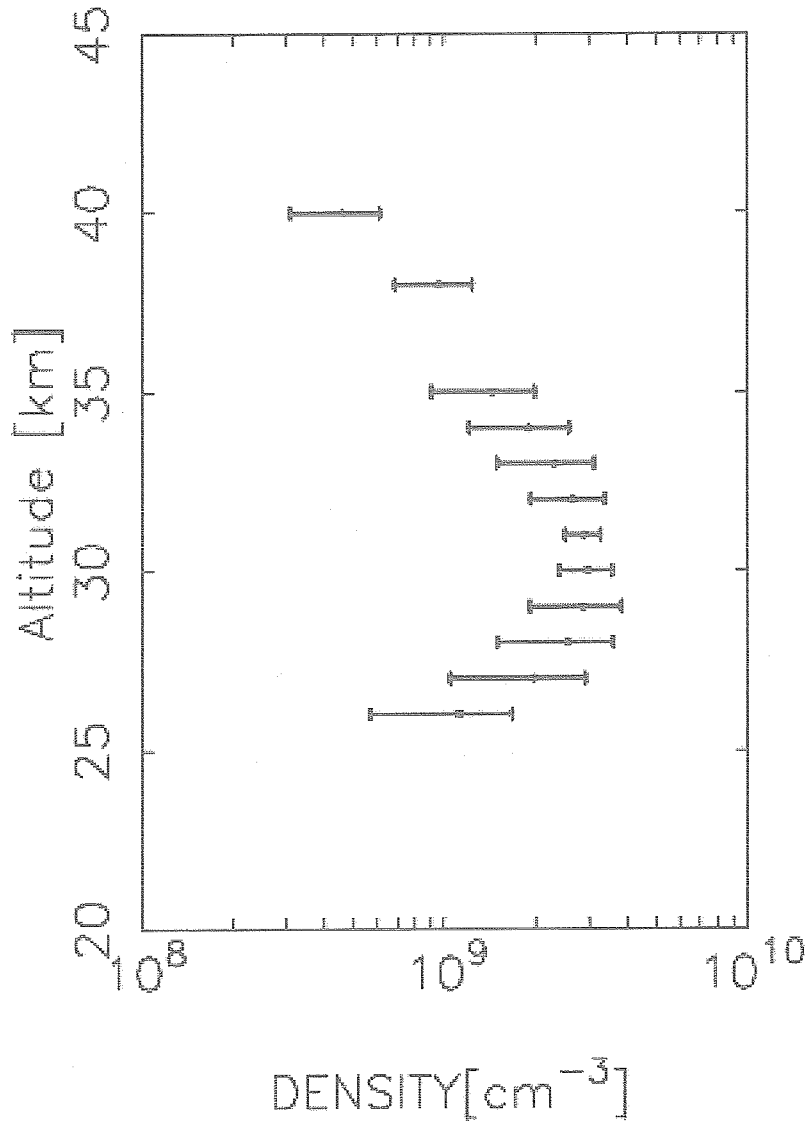


図6.7 BT5-21号機によって観測されたNO₂の高度プロファイル

れるNO₂のコラム量)がどの程度の大きさが重要になる。過去の観測から推測すると、太陽天頂角80度で視線方向に含まれるNO₂のコラム量は $6.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 程度であり、これが与える太陽光の吸収量は0.5%程度、太陽天頂角90度以上では5~13%程度と考えられる。よって、この寄与を無視($N_0=0$)しても最低10%程度の精度は保たれる。厳密に言えば、以下の結果はNO₂の下限值を与えているということになる。

得られたデータから得た測定器の波長同調特性を図6.6に示す。波長の同定は I/I_0 のデータと、図2.2のNO₂吸収断面積を用いて行っている。図2.4では広波長範囲のため波長同調特性は曲線であるが、430~450 nmのような狭い波長範囲においては、ほぼ線形と置くことができる。また、観測時の温度変化による波長のズレは全て観測開始時の波長同調特性に合うように補正を行った。

図6.4に、太陽天頂角に対する視線方向のNO₂コラム量変化を示す。太陽天頂角92~93度付近で、 $1.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ と最も大きい値を示している。太陽天頂角90度以上でのNO₂の吸収は、接線高度付近の寄与が最も大きいため、NO₂の密度ピークは25~30 km付近にあると考えられる。図6.4のデータを用いて、Twomeyの拘束

線形型反転法を行いNO₂の高度プロファイルを算出した。今回の解析では球体層状大気を仮定して行っている。原理的には層厚を任意に細かくとすることは可能であるが、今回の解析手法では層厚を細かく取りすぎると誤差などの影響により解（高度プロファイル）が振動してしまう。そこで解が振動しない程度の層厚さとして、高度分解を1 kmとして解析を行った。また、過去の観測よりNO₂のような大きな構造を持っていない高度分布の場合、太陽天頂角90度未満では式5.4の係数行列 \tilde{A} の各成分は独立とは言いがたくなる。よって、細かい層に分ける意味は少なくなるため、気球高度以上では2層のみを考えた。図6.7にその結果を示す。NO₂密度のピークは約高度30 kmにあり、その値は $2.98 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ である。誤差には、拘束線型反転法によって求められたフィッティングの誤差を示した。

6.2. 考察

今回の観測で得られたNO₂の高度プロファイルと過去の観測によるものの比較を行った（表6.1, 図6.8）。今回の観測で求められたNO₂密度は、過去に行われた三陸大気球観測所での2度の観測によって求められたものに比べ、絶対量は小さい値をとった。1978年柴崎氏による観測は、気球高度が20 kmであり解析手法で玉ねぎの皮むき法を使っているため、高度20 km以上の高度分布は信頼性が薄いため、あまり比較の対象とはならない。しかし季節的に近い1986年の柴崎氏による観測は、本研究と同じ拘束型反転解析法を用いており比較の対象となる。この結果、1986年柴崎氏の密度のピーク高度も近い値をとっていることがわかった。また衛星UARSに搭載されている大気微量成分観測器HALOEによって、本観測の10日後に同緯度東経23度で観測されたNO₂密度と比べてみると、高度30 km以上では今回の観測結果と非常に良く一致していることがわかった。30 km以下では、本観測のほうがHALOEよりもやや小さいNO₂密度を与えた。これらの結果についての物理的意味を、一回のみの観測結果から言うことは難しい。やはりこれからの観測によって物理的意味があるのか検証していかなければならない。

今回の観測結果でやや低い密度が観測されている原因として、解析に採用したI₀の値によることも考えられる。本観測では最も太陽天頂角の小さい時のスペクトルが、太陽天頂角80度の値であったため、このときの値をI₀として解析を行っている。観測結果からもわかるように、実際には気球高度以上にもNO₂は存在するため太陽天頂角80度でも二酸化窒素の吸収は受けている。この寄与を考えれば、得られたNO₂密度は気球高度以上では10%程度、気球高度以下では数%程度増加することが考えられる。しかし、これらの寄与だけでは、観測されたNO₂密度が他に比べて低いことを説明することはできない。今後の観測をするにあたってはより大気圏外のスペクトルに近いもの（より太陽天頂角が0度に近い太陽スペクトル）をI₀として採用することが望まれる。

また本観測では、NO₂高度プロファイルを高度26 kmまでしか求めることができなかった。これは、観測器の光電子増倍管の感度が足りなくなってしまったことが原因である。実験当初は、解析方法として玉ねぎの皮むき法を考えており、太陽天頂角90度のデータを取得することが必須と考えていたため、光電子増倍管の感度をやや弱めに設定していた（太陽天頂角90度での太陽スペクトルが、ダイナミックレンジを越えるのを防ぐため）。よって、日没時時間と共に弱くなる太陽光強度を、NO₂の吸収構造が見えるほどの感度で得ることができなかった。次回の観測では的確な光電子増倍管の感度を設定することで、より下層のNO₂密度まで求めることが期待できる。

表6.1 過去のNO₂高度プロファイル観測との比較

Member	Date	Latitude	Method	NO ₂ density (peak)
K, Shibasaki	May 29, 1978	40° N	Balloon	4.3×10^9
K. Shibasaki	Oct 6, 1986	40° N	Balloon	3.9×10^9
HALOE (UARS)	Sep 23, 2002	40° N	Satellite	3.3×10^9
This work	Sep 12, 2002	40° N	Balloon	3.0×10^9

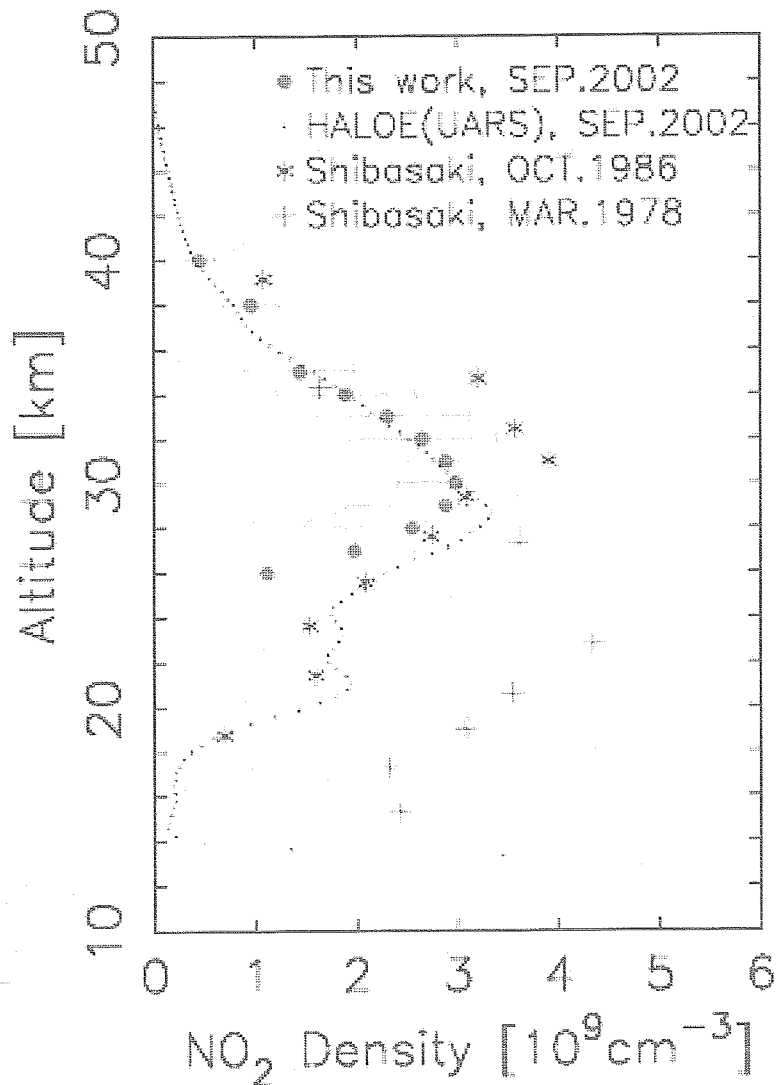


図6.8 過去のNO₂観測との比較

6.3. 音響光学型分光器の反省点と今後の可能性

まず最初に観測器をより小型軽量化にすることが求められる。今回の観測器は、音響光学型分光器としての第一号機であるため予想以上に大型かつ重量も重くなってしまった。しかし本研究によって、音響光学素子を用いた分光器による観測システムを確立することができたため、今後は本実験の経験を生かし観測器の小型軽量化に向けて改良を行っていくことが可能である。

まず今回の観測器は、太陽光が入射する入り口に直径1mmのスリットを置いている。その後のコリメータレンズと合わせて、音響光学素子に入射させる平行光を作っているのだが、この入射スリットによって大きく太陽光強度を絞ってしまっている。そのさらに、音響光学素子の前後にある偏光板によって観測器に入射した光は弱められ、本来非常に強い太陽光は弱まり、最終的に光電子増倍管を利用しなければ検出できないような光量になってしまう。また光電子増倍管には光を増倍させるための高電圧をかけなくてはならないため、気球実験の際には、大気圧封じを行わなければならない。大気圧封じには、強固な観測器外装が必要となり、結果として重量が重く

なってしまう。このように、太陽光の損失を最小限に抑さえ、光電子増倍管を使わずに光電管などのような扱いの簡易な光検出器を利用できるなシステムにすることによって観測器を軽量化することができると考えられる。

次に太陽追尾装置である。今回の観測では太陽追尾の際に、方位角方向は観測器と共にゴンドラごと動かし、仰角方向にはゴンドラの上に乗っている観測器部分を動かし、機械的に動かしている部分が非常に大きい。そのため、駆動部も必要になり太陽追尾装置自体が大型化してしまった。そこで観測器本体は動かさずに、動いている太陽の光だけが観測器に入るような仕組みを考えればよい。そこで考えられるのが2枚の鏡を組み合わせて作るシーロスタットである。この原理を利用すれば、一枚の鏡を動かすだけで太陽追尾を行うことができ、太陽追尾装置を小さくすることができる。この方法には、光軸合わせの難しさや、反射の問題などがあるが観測器の小型軽量化に向けて検討する価値は十分にあると考えられる。

観測器の性能として今後期待される可能性は、分光波長範囲の広域化である。今回の観測器の分光波長範囲は410 - 460 nmの50 nmである。この波長域は、NO₂の吸収を見るには適している波長域であるが、その他の物質の吸収を見ることはできない。厳密にはこの波長域にもオゾンの吸収はあるが吸収断面積が小さいため精度良く観測するのは難しい。そこで分光波長範囲を短波長側200 nmまで広げることができれば、吸収断面積の大きいハートレー (Hartley) 帯でオゾンを観測することができる。NO₂とオゾンを同時観測できれば、元来の目的に大きくかなった非常に有意義な観測となることが期待できる。

7. 結論

成層圏のNO₂密度を気球や衛星などによって定期的かつ頻繁に観測できるような、小型軽量の分光器の開発を行った。この度我々が開発した音響光学型分光器の仕様は、分光波長410 - 460 nm (印加周波数: 75 - 90 MHz)、波長分解能0.85 nm、重量は4.0 kg、直径160 mm×長さ210 mmの円筒形の形をしている。室内での水銀ランプの分光実験によって、NO₂の吸収を見るために必要な波長分解能1.0 nmを満たしていることを確認した。温度試験では低温でも観測器が十分に動作することを確かめ、同時に観測器の温度特性を調べた。また地上での太陽スペクトルを観測することによって、気球実験に向けて太陽光強度の校正実験を行った。

2002年9月12日に三陸大気球観測所において、我々の開発した音響光学型分光器の初気球実験が行われた。気球が水平浮遊に入った16時50分から日没の18時12分まで観測を行い無事にデータを取得することができた。観測されたデータから、高度26 - 40 kmまでのNO₂密度を算出することができ、その値は $0.5 \sim 3.0 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ であった。最もNO₂密度の高い高度は30 kmで、NO₂密度は $3.0 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ を示した。これらの結果は、衛星UARSのデータと非常に近い値を取っており、特に高度30 km以上ではほとんど一致しているため、尤もらしい結果であると言える。

本研究では、これまで開発を行ってきた音響光学型分光器で下部成層圏のNO₂密度観測を行い、成功することができた。観測器の小型軽量化、太陽追尾方法などの面においてはまだ検討する点はあるが、更なる改良によってより利便性に富んだ観測器となることが期待される。

参 考 文 献

- [1] Dentener, F., and P. J. Crutzen, Reaction of N₂O₅ on tropospheric aerosol: Impact on the global distributions of NO_x, O₃, and OH, *J. Geophys. Res.*, **98**, 7149-7163, 1992.
- [2] Evans, W. F. J., J. B. Kerr, C. T. McElroy, R. S. O'Brein, B. A. Ridley, and D. I. Wardle The Odd Nitrogen Mixing Ratio in the Stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **4**, 235-238 1977.
- [3] Evans, W. F. J., C. T. McElroy, J. B. Kerr, and J. C. McConnell, Simulation of Nitrogen Constituent Measurements from the August 28, 1976 Stratoprobe III Flight, *J. Geophys. Res.*, **86**, 12066-12070, 1981.
- [4] Evans, W. F. J., C. T. McElroy, and I. E. Galbally, The Conversion of N₂O₅ to HNO₃ at High Latitudes in Winter, *Geophys.*

- Res. Lett.*, 12, 825-828, 1985.
- [5] Farman, J. C., B. G. Gardiner, and J. D. Shanklin, Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction. *Nature* 315, 207-210, 1985.
- [6] Hofman, D. J., S. J. Oltmans, J. M. Harris, J. A. Lathrop, G. L. Koenig, W. R. Komhyr, R. D. Evans, D. M. Quincy, T. Deshler, and B. J. Johnson, Recovery of stratospheric ozone over the United States in the winter of 1993-1994, *J. Geophys. Res.*, 21, 1779-1782, 1994a
- [7] Hofman, D. J., S. J. Oltmans, W. R. Komhyr, J. M. Harris, J. A. Lathrop, A. O. Langford, T. Deshler, B. J. Johnson, A. Torres, and W. A. Matthews, Ozone loss in the lower stratosphere over the United States in 1992-1993; Evidence for heterogeneous chemistry on the Pinatubo aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 65-68, 1994b
- [8] Jucks, K. W., D. G. Johnson, K. V. Chance, W. A. Traub, and R. J. Salawitch, Nitric acid in the middle stratosphere as a function of altitude and aerosol loading, *J. Geophys. Res.*, 104, 26715-26723, 1999.
- [9] Kerr, J. B., C. T. McElroy, and W. F. J. Evans, Mid-latitude summertime measurements of stratospheric NO_2 , *Can. J. Phys.*, 60, 196-200, 1982
- [10] Kerr, J. B., and C. T. McElroy, Evidence for Large Upward Trends of Ultraviolet-B Radiation Linked to Ozone Depletion, *Science*, 262, 1032-1034, 1993.
- [11] Kerr, J. B., D. I. Wardle and D. W. Tarasick, Record Low Ozone Values over Canada in Early, *Geophysical Research Letters* 20, 1979-1982, 1993
- [12] 狛豊, 太田茂雄, 西村純: リアクションホイールによる姿勢制御, 宇宙科学研究所報告特集第11号, 3-10, 1984
- [13] 松坂幸彦, 並木道義, 鳥海道彦, 斎藤芳隆, 山上隆正: 軽量ゴンドラ用方位角制御システムの開発, 平成14年度大気球シンポジウム, 2002
- [14] McKenzie, R. L., and P. V. Johnston, Altitude Distributions of stratospheric constituents from ground-based measurements at twilight, *J. Geophys. Res.*, 96, 15499-15511, 1991
- [15] 西村純, 広沢春任, 太田茂雄, 大塚豊, 奈良禰徳: より戻し方式による方向規制, 東京大学宇宙航空研究所報告 第15巻第1号, 132-143, 1969
- [16] Ridley, B. A., Son Ha Luu, D. R. Hastie, H. I. Schiff, J. C. McConnell, W. F. J. Evans, C. T. McElroy, J. B. Kerr, H. Fast, and R. S. O'Brien, Stratospheric Odd Nitrogen: Measurements of HNO_3 , NO , NO_2 , and O_3 near 54 in Winter, *J. Geophys. Res.*, 89, 4797, 1984.
- [17] Sen, B., G. C. Toon, G. B. Osterman, J.-F. Blavier, J. J. Margitan, R. J. Salawitch, and G. K. Yue, Measurements of reactive nitrogen in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 103, 3571-3585, 1998.
- [18] 柴崎和夫, 鈴木勝久, 小川利紘: 成層圏 NO_2 高度分布の気球観測, 東京大学宇宙航空研究所報告, 15, 243-254, 1979
- [19] 柴崎和夫, 岩上直幹, 北和之, 小川利紘: 三陸における成層圏二酸化窒素, オゾン高度分布の大気球観測-B, 5-64, 66号機とオゾンゾンデ観測結果, 宇宙科学研究所報告 特集第22号, 61-71, 1988
- [20] Solomon, S., R. W. Portmann, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole, and M. P. McCormick, The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, 101, 6713-6727, 1996.
- [21] Stolarski, R. S., P. Bloomfield, R. D. McPeters, and J. R. Herman, Total Ozone Trends Deduced from Nimbus 7 TOMS Data, *Geophys. Res. Lett.*, 18, 1015-1018, 1991.
- [22] Stolarski, R. S., R. Bojkov, L. Bishop, C. Zeferos, J. Staehelin, and J. Zawodny, Measured Trends in Stratospheric Ozone, *Science*, 256, 342-349, 1992.
- [23] Toon, G. C., J.-F. Blavier, B. Sen, J. J. Margitan, C. R. Webster, R. D. May, D. Fahey, R. Gao, L. Del Negro, M. Proffitt, J. Elkins, P. A. Romashkin, D. F. Hurst, S. Oltmans, E. Atlas, S. Schauffler, F. Flocke, T. P. Bui, R. M. Stimpfle, G. P. Bornne, P. B. Voss, and R. C. Cohen, Comparison of MkIV balloon and ER-2 air craft measurements of atmospheric trace gases, *it J.*

- Geophys. Res.*, 104, 26779-26790, 1999.
- [24] Tourpali, K., X. X. Tie, C. S. Zerefos and G. Brasseur, Decadal evolution of total ozone decline; Observation and model result, *J. Geophys. Res.*, 20, 23955-23962, 1997
- [25] Twomey, S., On the Numerical Solution of Fredholm Integral Equations of the First Kind by the Inversion of the Linear System Produced by Quadrature, *Journal of the ACM*, 10, 97-101, 1963
- [26] Wennberg, P. O., R. C. Cohen, R. M. Simpfle, J. P. Koplou, J. G. Anderson, R. J. Salawich, D. W. Fahey, E. L. Woodbridge, E. R. Keim, R. S. Geo, C. R. Webster, R. D. May, D. W. Toohey, L. M. Avallone, M. H. Proffitt, M. Loewenstein, J. R. Prodolske, K. R. Chan, and S. C. Wofsy, Removal of Stratospheric O₃ by Radicals: In Situ Measurements of OH, HO₂, NO, NO₂, ClO, and BrO, *Science*, 266, 398-404, 1994