

26km 高度での一酸化窒素の日変化の測定*
(日中共同気球観測)

近藤 豊**・鳥山哲司**・神藤英彦**
金田昌広**・岩田 晃**・高木増美**
W. A. Matthews***

(1988年8月10日受理)

Diurnal Variation of Nitric Oxide at 26km

By

Y. KONDO, N. TORIYAMA, H. JINDO, M. KANADA, A. IWATA,
M. TAKAGI and W. A. MATTHEWS

Abstract: A chemiluminescent NO detector was launched from Uchinoura, Japan (31° N, 131° E) at 0030 JST on July 29, 1987. The balloon launching and the recovery were performed by ISAS in cooperation with Academia Sinica of the Peoples Republic of China. The main purpose of the experiment was to measure precisely the diurnal variation of NO in the lower stratosphere by a long distance flight. On the gondola, upward and downward radiation intensities in the visible region were also monitored. The balloon reached a float altitude of 26km around 0200 JST and stayed at this altitude until 1600 JST when it started a slow descent. The gondola was finally separated at 1725 JST at a point at (32° N, 119° E), 80km east of Nanking, China. During the flight, most of the NO measurement was performed over the East China Sea. At local sunrise, the NO concentration increased rapidly for about 30minutes. Variations in NO due to small changes in altitude were observed. Near noon, when the gondola

* 宇宙研特別事業費による研究論文

** 名古屋大学空電研究所

*** (PEL Atmospheric Station, Lauder, DSIR, New Zealand)

was in the shadow of the balloon, the corresponding decrease in NO concentration was apparently seen. When these variations are taken into account, a slow increase in NO seems to continue until early in the afternoon.

概 要

1987年7月29日午前00:30 JST に内之浦(31° N, 131° E)よりケミルミネッセンス方式のNOの測定器を乗せた気球が放球された。この実験は宇宙科学研究所及び中華人民共和国の中国科学院の協力の下に行われた。この実験の主な目的は長距離飛行により、下部成層圏での一酸化窒素(NO)の詳細な日変化を測定しようとするものである。ゴンドラには可視領域での上下方向の放射強度の測定器も搭載された。気球は02:00 JST 頃、26 km のレベル高度に達し、16:00 JST 頃まで一定高度を保ち、その後徐々に高度を下げた。ゴンドラは最終的に17:25 JST に切り離された。日出時には約30分間NOの急速な増加が観測された。また気球の高度変化に伴うNOの密度変化、あるいはゴンドラが気球の影になった際の変動も見られるようである。主として N_2O_5 の光解離に起因すると考えられるNOのゆっくりした増加が午後の早い時刻まで続くことが観測された。

1. 序

下部成層圏の光化学反応系において NO_x は重要な役割を果たしている。特に最近問題になっている南極オゾンホールに代表されるように、高緯度での冬から春にかけての成層圏の化学状態が特異であることが認識され始めた。日照が無い、あるいは短い状態で NO_x が大幅に減少することが高緯度における冬季の特徴であり、それがオゾンホールを引き起こすメカニズムの1つと作用していると考えられている。そのような化学を理解する上でも、中緯度における NO_x の日変化を正確に把握することが重要である。実際問題として下部成層圏でのNOの日変化の比較的精密な測定としてこれまではRidley et al.(1977)の気球観測が唯一のものであり、しかも観測時間が4~5時間と短く、理論との十分な比較が困難であった。

日の出及びそれ以後のNOの日変化の詳細な測定が高度32 km及び40 kmで、我々自身の手によって行われた(Kondo et al., 1988)。今回の気球観測は下部成層圏に焦点をあて、長時間フライトによりNOの日変化を詳細に観測しようとするものである。この高度では N_2O_5 の光解離の時定数が数時間であり、それに伴うNOの増加も数時間のゆっくりしたものになると予想される。そのような時定数の長い過程を観測するためには必然的に長時間の気球飛行が必要となる。今回実施した東シナ海横断気球飛行はこのような観測に

必要な条件を十分に満たすものであった。

2. 測定器

NO測定器：オゾンとNOの反応の際放出されるケミルミネッセンス光がサンプル大気中のNOの混合比に比例するという原理に基づくものである。図1に測定器の構成を示す。Kondo et al.(1984, 1988)に述べたものに比べ精度や信頼性を向上させるために、以下に述べるようにいくつかの点で改良を加えてある。

反応チャンバーには常時オゾン/酸素を流し、またゼロモード時はオゾン/酸素の一部を反応チャンバーの上流に流す。この2つの流れの流量を質量流量制御器でコントロールしている。またゼロモードで用いるオゾンをゼロモード時以外は直接測定器外に排気するようにした。測定器内に注入されるオゾン流量を完全に制御し、しかも従来の半分の200 STPcm³/分に減らしたため、サンプル流量の推定精度が高々度で向上した。

測定器のゼロレベルを精密に観測中に計るために0.005 ppbv以下のNO濃度の合成空気をサンプル流量の約2倍の流量で10分おきに40秒間周期的に流すようにした。この流量は圧力に比例するように、圧力計からの信号により制御される。また吸気用のチューブの長さを150 cmにしてゴンドラからの脱ガスの影響をなるべく少なくした。実際のフライトでもこの新しいゼロレベルの推定法は有効であったが、ゼロレベル自体の変動は従来の観測に比べ大きかった。これに伴う誤差は0.1 ppbv位と推定される。

観測中に濃度の判っている1~2 ppmvのNO/N₂ガスを一定流量でサンプル大気と混

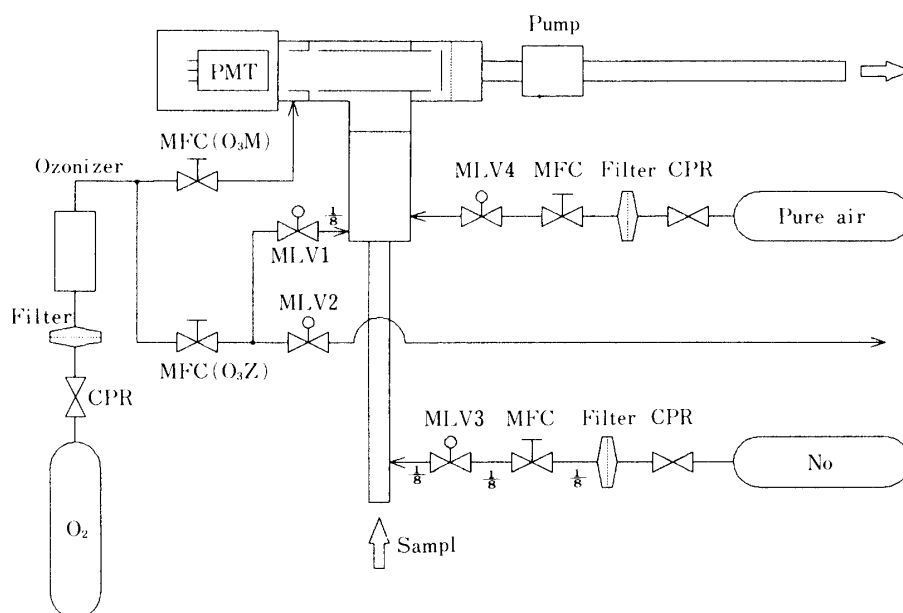


図1 NO測定器のダイヤグラム
MLV : Magnetic Latch Valve
MFC : 質量流量制御器

合することにより NO 測定器の絶対感度を求めている。1 リットルのステンレス容器に充填された NO/N₂ の濃度は時間と共に少しずつ下がっていく場合が多い。このため実験の数カ月前から約 1 カ月おき位に濃度を測定し、また回収後も濃度の測定を行った。減少は十分にゆっくりと起こっており時間変化による NO/N₂ 濃度測定の見誤差は 2% 程度に押さえることができた。

この NO/N₂ の校正ガスをゴンドラ上で制御するために質量流量制御器 (STEC, SEC-421 MK II) を用いている。この制御器は周囲圧力が 1 気圧に近い時は動作が安定しているが、成層圏の圧力状態になると、用いられている流量センサーのゼロドリフトが大きくなり、しかも感度が増加することに我々は最近気がついた。以前から用いている他社の流量制御器 (Tylan, FC-260) でも、変化の大きさはより少ないにせよ、同様の効果が起きていることが実験的に確認された。今回のデータ解析の際には、図 2 に示したように実験室での流量センサーの感度の圧力依存性を精密に校正した結果を利用した。また過去のフラン

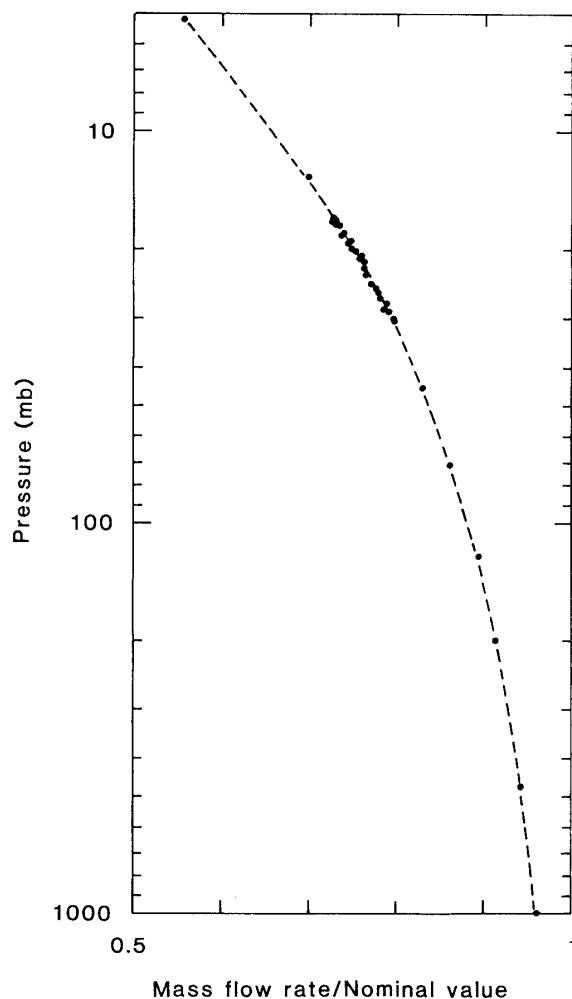


図 2 校正用 NO/N₂ ガス制御用質量流量センサーの感度の周囲圧力依存性

スで行った気球実験の測定値も、この効果による補正を行ったが、この結果については別の所で述べることにする。いずれにせよ、この補正を行うことにより NO/N₂ の流量を 2-3% の精度で推定することができる。

測定値の誤差に大きな影響があるのがサンプル質量流量 (F_m) の推定である。 F_m は

$$F_m = (P/1013) \cdot (273/T) \cdot F$$

で与えられる。ここでは P はサンプル大気圧 (mb)、 T は排気温度 (K)、 F はポンプの体積流量である。 P は 3 台のレンジの異なる圧力計で観測され約 2% の精度である。 T については、排気温度とポンプ温度が 1°C の範囲で一致することが、今回の観測及び 1987 年 9 月のフランスでの気球実験で判明した。このことはサンプルされる大気が極めて短時間に測定器の温度と平衡状態になることを意味している。 F については Kondo et al. (1984) に校正結果が述べられているが、今回特に高々度における精度を向上させる目的もあり、改めて精密な校正を行った。まず地上気圧で、使用するルーツポンプを無負荷にした時、 $F = V_0 \cdot R$ が成立するか、定容積型の流量計測システムを製作することにより確かめた。ここでは V_0 はポンプ 1 回転あたりの排気容積で R は回転速度 (rpm) である。図 3 に示すようにテストした 2 台のポンプ共 2500-3500 rpm の領域では V_0 は 1% の範囲で一定であることがわかる。ポンプを測定器に接続した状態で、低圧下での流量測定は宇宙科学研究所の大型スペースチェンバーで行った。この実験には 3 台の低圧損型質量流量計を用いた。その結果を図 4 に示す。NO 測定器による圧力損失のため流量は 30 mb より高い圧力で急速に減る。30 mb よりも低い圧力でも無負荷時に比べて 7% 近く流量が落ちている。またオゾン/酸素を質量流量 A で流した時得られるサンプル流量とオゾン/酸素を流さないときの流量 C との間には $C = A + B$ が成り立たないことも分かった。これは上記の圧損を考えれば少なくとも定性的には説明できる。以上の校正により測定器のサンプル流量を圧力 2-200 mb の範囲で 5% の精度及び再現性で測定できたといえる。観測時でも圧力や温度の測

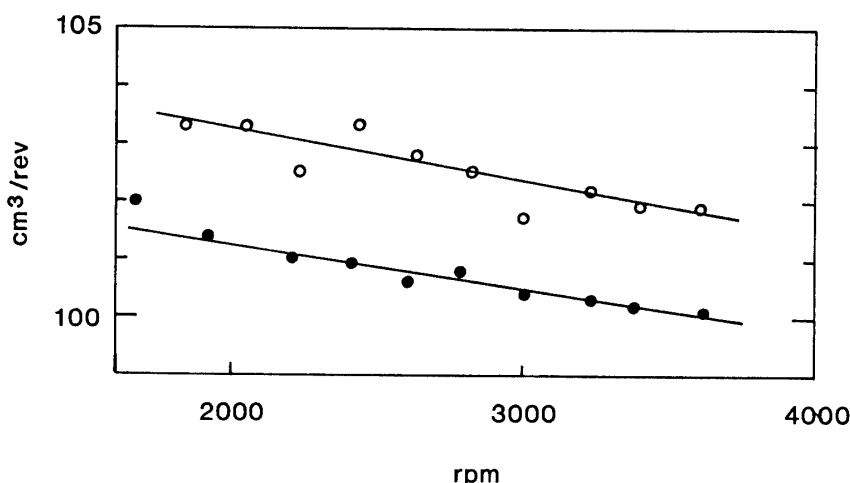


図3 ポンプ1回転あたりの排気容積
白丸と黒丸は異なったポンプの値

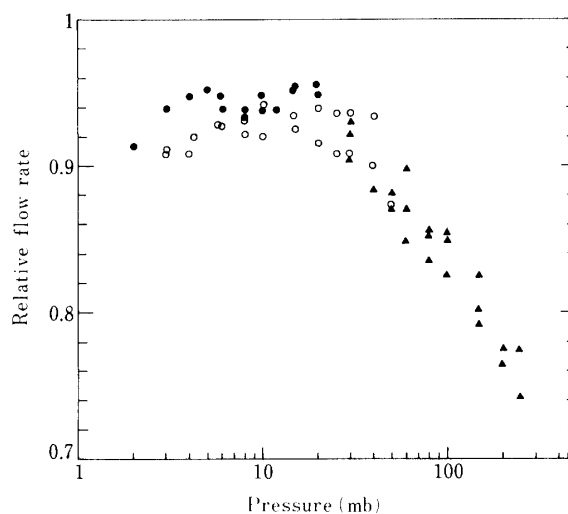


図4 無負荷で測定した流量(図3)を基準にした低圧での流量。黒丸、白丸、三角はそれぞれフルスケール5, 10, 及び50 STP 1/分の質量流量計による測定値

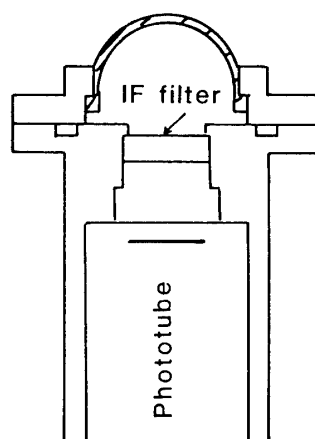


図5 可視放射計の形状(断面図)

定精度が十分高いため、この精度は大きく変化しないと考えられる。

放射計：NOの日変化を引き起こす原因の1つは $\text{NO}_2 + h\nu \rightarrow \text{NO} + \text{O}$ の光解離過程である。この NO_2 の光解離に有効な光の波長は 300-420 nm の領域である。この光放射は太陽からの直達光、大気や地球表面、あるいは雲からの反射・散乱光を含んでいる。この全放射束や光解離係数の絶対値を直接測定することは容易ではない。ここではそれに代わり、光強度の変化の様子をモニターするという目的で簡易型の2つの放射計を上・下方向に取り付けた。放射計の外観は図5に示してある。光の入射方向に対する感度の依存性を少なくするために前面に半球型のプラスチック製の光拡散素子を付けてある。中心波長 420

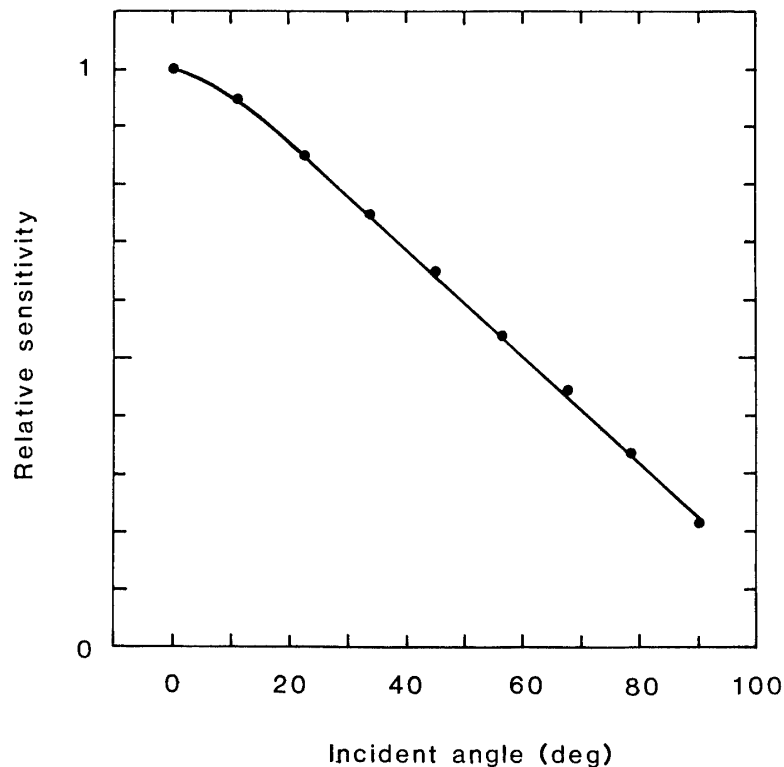


図6 放射計の入射角度依存性

nm, 半値幅 14 nm の干渉フィルターを通した光を光電管(浜松ホトニクス R 727)で検出する。中心波長を NO_2 の光解離限界波長より長くしてあるが、これはプラスチックの透過率が 400 nm 以下で極めて低くなっていることによる。またこの放射計の感度の光の入射角度に対する依存性を測定した結果を図 6 に示した。入射角が 10° - 90° の範囲で感度が入射角度に対しほぼ直線的に減少しているのは興味がある。放射計は大気サンプル用のパイプの上下に、ゴンドラの断熱壁から約 50 cm の距離の位置に取り付けられた。上向きの放射計で計れるものは主として太陽直達光強度であり、下向きの放射計により、地表面からの反射光、下層大気からの散乱光の強度の変化をモニターすることができる。ゴンドラ本体との距離が十分とれない為、放射計の付いているゴンドラ面と太陽の位置関係により、放射計の出力は実際には短時間周期の変動をする。従ってここでは問題にできるのは 10 分以上の長時間スケールの放射強度の変動である。

オゾン測定：ゴンドラ上でのオゾン測定の為に、KI 法による市販のオゾンゾンデ(明星電気, RS II-KC 79 型オゾンゾンデ)を用いた。流量の補正のために反応セル温度を独自にモニターした。また日本の人工衛星「大空(EXOS-C)」に搭載された BUV 測定器による同時観測が行われた。これは東京大学(小川, 小池)及び横浜国大(鈴木)のグループによるもので 7 月 29 日, 08:12 JST 頃, (33.6°N , 132°E) 付近のオゾンの高度分布が測定された。

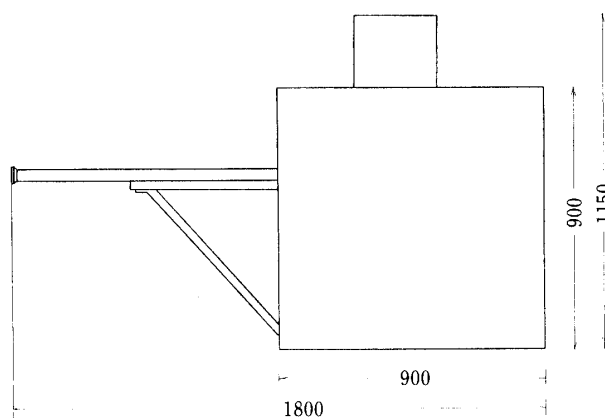


図7 ゴンドラの側面図
数字はミリメートル単位

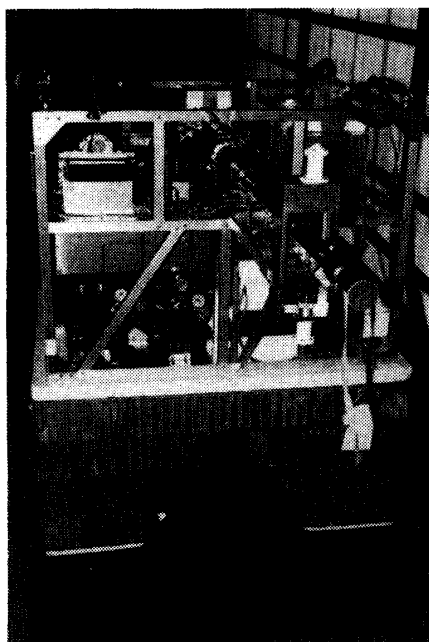


図8 ゴンドラの外観

データ取得システム：NO ゾンデのデータは光子計測に 24 ビットを使用し、また 32 チャンネルのアナログ項目のデータ(ポンプ回転速度、質量流量、温度計測等)には 12 ビットの分解能をもたせてある。このデータは 10 秒毎に FSK 変調され、電波により地上局に送られる(Kondo et al., 1984)。今までの気球実験の経験では、電波によるデータ転送は多かれ少なかれ完全な形で行うには不確実性が残った。しかも今回の実験では測距によるデータ受信の中断や、中国側からの受信といったさらに多くの問題が予想された。実際この予

想は当たり、電波によるデータ転送ではかなり多くのデータが失われた。これをバックアップするために小型のマイクロコンピュータ(NEC 98 LT)を搭載し、ゴンドラ上ですべてのデータを記録できるシステムを製作した。コンピュータはコマンドによりON, OFFされまた万一停止した場合でも再度起動できる。またフライト中フロッピーディスクへの書き込み操作が行われていることは上記のアナログチャンネルを利用してモニターしている。実験室で、このシステムが低圧下で動作することは確認した。実際の観測でもこのデータ取得システムは正常に動作しフロッピーディスクへのデータの書き込みは完全であった。このためデータの解析には電波により受信記録ではなく、このレコーダーによる記録を用いた。

ゴンドラ：ゴンドラの側面図を図7に示す。また放射計を取り付けた状態での外観の写を図8に示した。

3. 気球実験

ゴンドラは図9に示したように気球から約20m離されている。気球の大きさは15000 m^3 で、ヘリウムガスが充填された。今回の気球実験は日中共同気球実験の1つとして実施されたもので、実験場としては宇宙科学研究所の鹿児島宇宙観測所(31°15'N, 131°05'E)が利用された。気球は1987年7月29日00:30 JST頃、内の浦より放球され02:00 JST頃26kmのレベル高度に達した。その後多少の変化はあったものの、16:00 JST頃まではほぼ一定の高度を保った。それ以後気球は徐々に高度を下げ、ゴンドラは最終的に南京の東

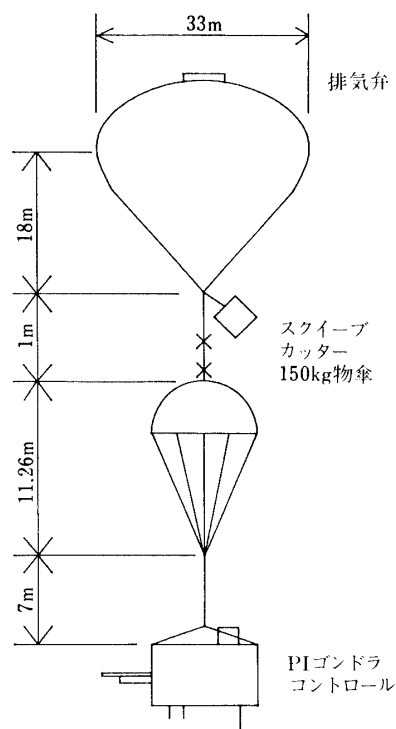


図9 気球-ゴンドラ間の位置関係

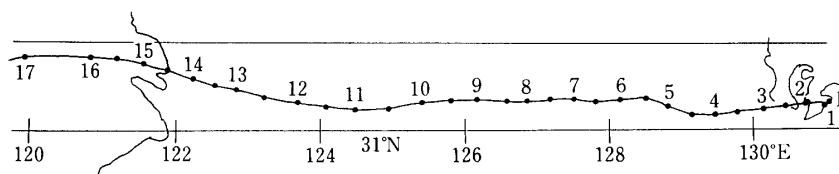


図10 気球の航跡図
数字は時刻(JST)



図11 09:00 JSTの「ひまわり」の可視画像

80 km の地点(32°N, 119°E)で 17:25 JST に切り離された。気球の水平方向の航路を図10に示す。これから分かるように気球は 31°N と 32°N の間の緯度圏をほぼ真西に移動した。7月29日の 09:00 JST 及び 12:00 JST における気象衛星「ひまわり」からの可視画像を図11および図12に示す。09:00 JST では航跡上の領域は快晴であることが分かる。12:00 JST では 125°E 付近に小規模の雲が見られる。従ってこの雲は 09:00~12:00 JST の間に発生したということになる。

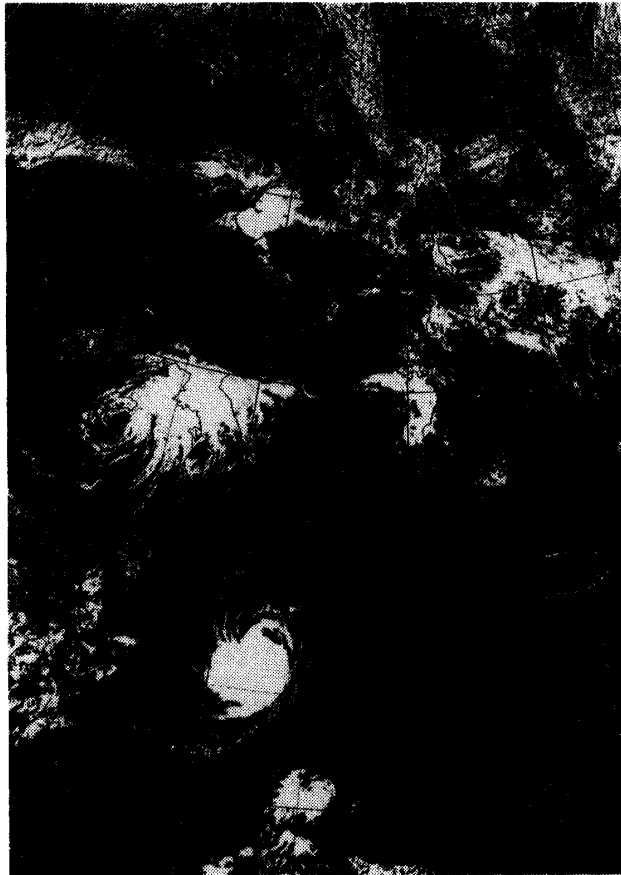


図12 12:00 JSTの「ひまわり」の可視画像

4. 観測結果

気球の上昇時に得られた気温の高度分布を図13に示す。対流圏界面高度は約15 kmであり、そこでの気温は約 -76°C である。鹿児島で7月28日21時及び7月29日9時に観測された圏界面高度及び温度はそれぞれ15 km及び -74°C であった。上昇時に得られたオゾンの高度分布を図14に示す。高度14 km位からオゾン濃度の急増が見られる。前に述べたようにEXOS-C衛星で08:12 JSTに 33.6° , 132°E 付近でオゾン密度が測定された。これと比較すると、測定が重なりあう23-26 kmの高度領域でオゾン濃度は両者ともよく一致することが分かった。更に詳細な比較は別の所で行うことにする。

NOの測定器は上昇中の01:20 JST頃約90 mbの高さでコマンドにより動作状態に入った。図15に10秒間積算した光子計測数の変化を示す。NO測定器が観測状態に入る前、圧力が減少するに従い光電子増倍管のカウント数が増加し90 mb付近でほぼ一定の120 c/10 s位の値になっている。大気圧の減少と共にダークカウント数が増加するということはこの影響が宇宙線によるものと考えてよいであろう。この年の9月に行なわれたフラン

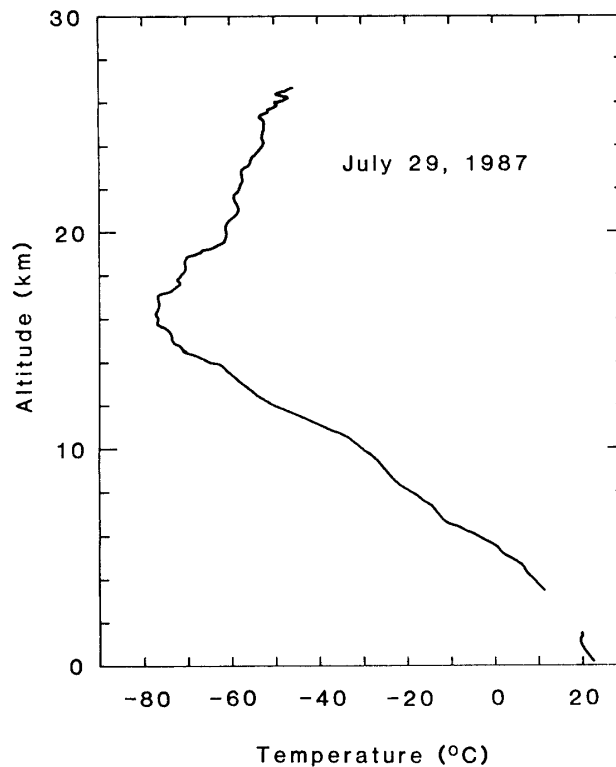


図13 上昇時に測定した気温の高度分布

スでの気球実験でも同様の効果が見られた。この時は約 250 mb で NO 測定器が観測状態に入ったため、本実験時の方がより詳細にこの計測が行えたといえる。この宇宙線による影響の測定は特に対流圏上部から下部成層圏にかけての低濃度 NO の測定精度の見積りによって貴重なデータとなった。

朝 5 時過ぎに日の出が起きるまでの夜間の間は NO が存在しない。従って日の出前に得られる観測状態での光子計測数は測定器のゼロレベルを与えることになる。このレベルは図 15 に見られるようにこれまでの観測に比べ異常に高かった。合成空気を流すことによって得られるゼロレベルとは約 0.1 ppbv の差で一致している。幸いなことにこの高いゼロレベルは日の出近くにはかなり低くなり、しかも安定してきた。今までの気球観測ではこのように高いゼロレベルが生じたことはなかった。測定器の構造的な問題ではなく、この実験の際の特殊な状態に原因があるはずである。考えられるものとしては、1) 内之浦のように地上付近が高温多湿状態になっている場合、光電子増倍管冷却に伴う、ガラスフィルター上での結露。2) 吸気パイプや反応管中の汚れ、あるいは反応部への異物の混入などといった、かなり偶然的要因が考えられる。今後このような地上付近での測定器の取り扱いには、これまで以上に注意を払う必要がある。

図 15 の測定された光強度からゼロレベルの値を差し引き、測定器の絶対感度を考慮する

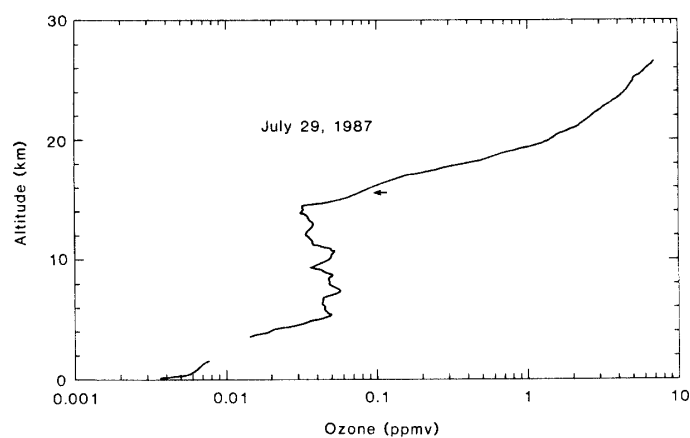


図14 上昇時にKI法オゾンゾンデにより測定されたオゾンの高度分布。矢印は対流圏界面高度を示す。

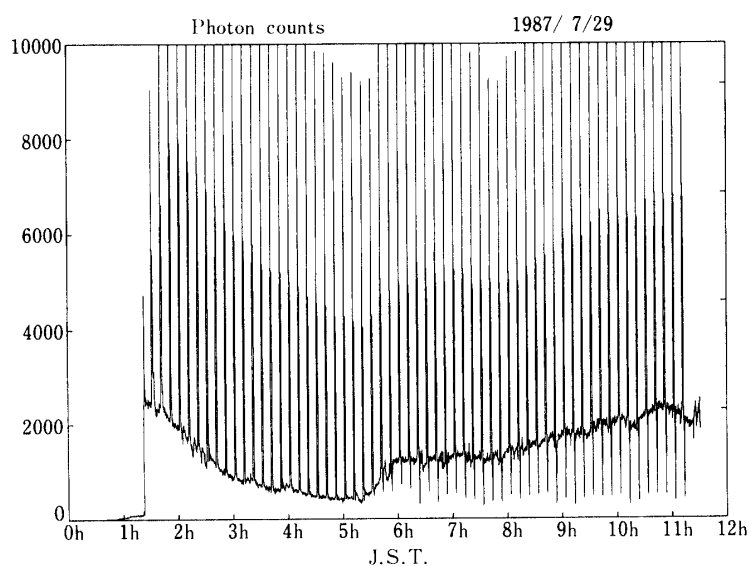


図15 10秒毎に積算された光子計測数

ことにより、NOの混合比を計算したものが図16である。11:03 JSTまでは合成空気によるゼロレベルの測定が行われたが、それ以降は合成空気を使い果たしたためそれ以降のゼロレベルとしては11:00 JST頃の値を用いた。図16から分かるように05:30 JST(太陽天頂角=92.7°)頃からNO密度の急増が始まっている。30分後の06:00 JST頃からゆっくりとした、しかしかなり一定したNOの増加が続いている。従来のRidley et al.(1977)の観測は10:00 LT頃までしか観測が行われていない。11:00 JST以後のデータも含め、日の出後のNOの全データを図17に示す。このゆっくりしたNOの増加は14:00 JST頃

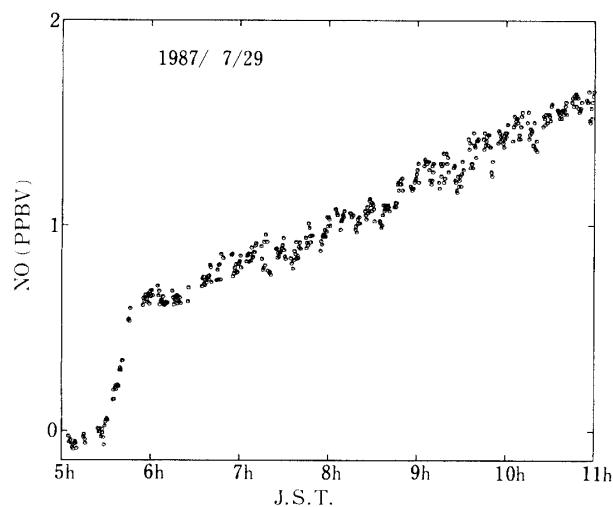


図16 日出時から11時JSTまでのNOの変化

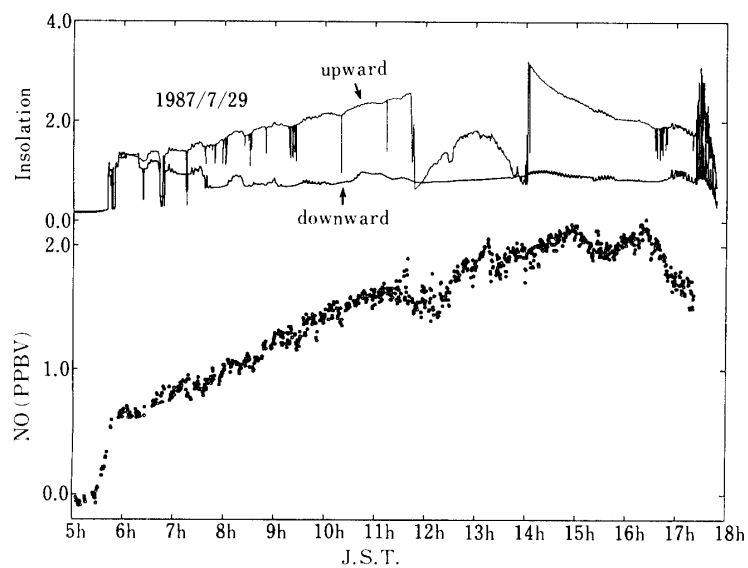


図17 日出から切り離しまでの間に測定されたNO密度及び可視部放射強度
 upward: 上向き放射計
 downward: 下向き放射計

まで続いていることが分かる。このNOは14-17 JSTの間で ± 0.2 ppbvの範囲で、つまり10%の範囲で一定である。

ここで簡単にNOの日変化に関係している光化学を説明する。表1に示したように昼間はNOは主としてオゾンにより酸化され、またその一方でNO₂は波長300-400 nmの太陽放射によって解離されNOにもどる。この酸化と還元過程のバランスでNO/NO₂比が決

表 1

Day	
R 1)	$\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$
R 2)	$\text{NO} + \text{ClO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{Cl}$
R 3)	$\text{NO}_2 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{OH}$
R 4)	$\text{NO}_2 + \text{O} \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$
R 5)	$\text{NO}_2 + h\nu \rightarrow \text{NO} + \text{O}$ ($\lambda = 300 \sim 300 \text{ nm}$)
R 6)	$\text{N}_2\text{O}_5 + h\nu \rightarrow \text{NO}_3 + \text{NO}_2$ ($\lambda = 200 \sim 300 \text{ nm}$)
Night	
	$\text{NO}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{O}_2$
	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{M} \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5 + \text{M}$

まっている。一方夜間には NO_2 はオゾンで更に酸化され NO_3 に変わる。 NO_2 と NO_3 との反応で N_2O_5 が作られる。この N_2O_5 は日の出と共に波長 200-300 nm の紫外光で解離を始め、 NO 、 NO_2 を作り出す。しかしこの N_2O_5 の解離に寄与している紫外光はかなりの波長域でオゾンの吸収帯であるハートリー帯と重なる。このため紫外光は成層圏の下層程減衰され、従って N_2O_5 の解離時定数は 26 km 位では数時間のオーダーになると推定される。またこの高度領域では NO に比べ、夜間の N_2O_5 の量は大きいと理論的に予想される。従って 26 km 高度での NO の日変化は長時間続きしかも、振幅の大きいものと考えられる。上記の観測結果はこれらの考察を裏付けるもので極めて興味深い。

また日出時に見られる NO の急増は NO_2 の光解離による。太陽天頂角が 90° の時の NO に比べ 5% になった時の太陽天頂角は約 93° である。これに相当する太陽光の tangent 高度は約 17 km である (図 18)。フランスにおける我々の観測によると 32 km, 40 km 高度での NO の急増する時刻に相当する tangent 高度は 16 ないし 17 km であり、これに近い。これらの計算には大気による屈折の効果は考慮されていない。いずれにせよ、どの高度で観測しても NO の急増が始まるのがほぼ一定の tangent 高度であるということを実証したのはこの観測が最初であるといつてよい。

17 時以降 NO は減少を始めているがこれは気球の高度が下がり始めていることによる。これまでの我々の観測結果 (Kondo et al., 1985 and 1988) では NO の混合比は 26 km 高度で最大の傾きを持っている。従って定性的にはこの時刻の NO の変化は、 NO の高度分布の反映と解釈できるが、更に定量的な解析が必要である。

ところで図 17 には上下方向の放射強度の変化も示してある。スパイク的な強度の変化は

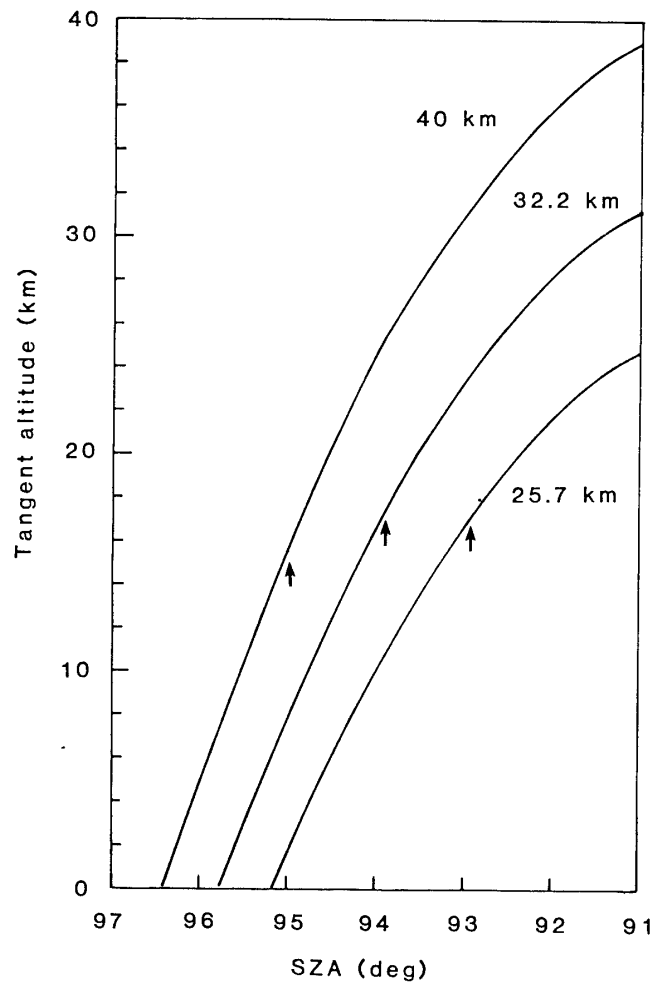


図 18 太陽天頂角と tangent 高度との関係
 矢印は日出時に急速な NO の増加が始まる太陽天頂角
 及び tangent 高度を示す。

放射計がゴンドラの影になっていることを意味している。11:45 JST 位から 14:00 JST 位まで上向きの放射計の信号が大幅に減少している。11:45 及び 14:00 JST での太陽天頂角は約 19° である。図 9 に示した気球とゴンドラの位置関係から計算するとゴンドラから見て太陽が気球にさえぎられる太陽天頂角は約 23° である。上空での気球の大きさに大きな不確かさがあることを考えれば、この放射強度の減少はゴンドラが気球の影に入ったことに対応すると考えられる。この時間帯では NO の不規則な変動が見られる。既に述べたように 11:00 JST 以降のデータの誤差はそれ以前に比べ大きいという事情があるが、データ上で見る限り、日射量の減少が NO の減少を引き起こしているように見える。太陽の可視部の日射は NO_2 を NO に解離するが、この速度が減少すれば NO の一部が NO_2 に変換されてしまい、NO が減少するはずである。ゴンドラは風とほぼ同じ速度で動いており

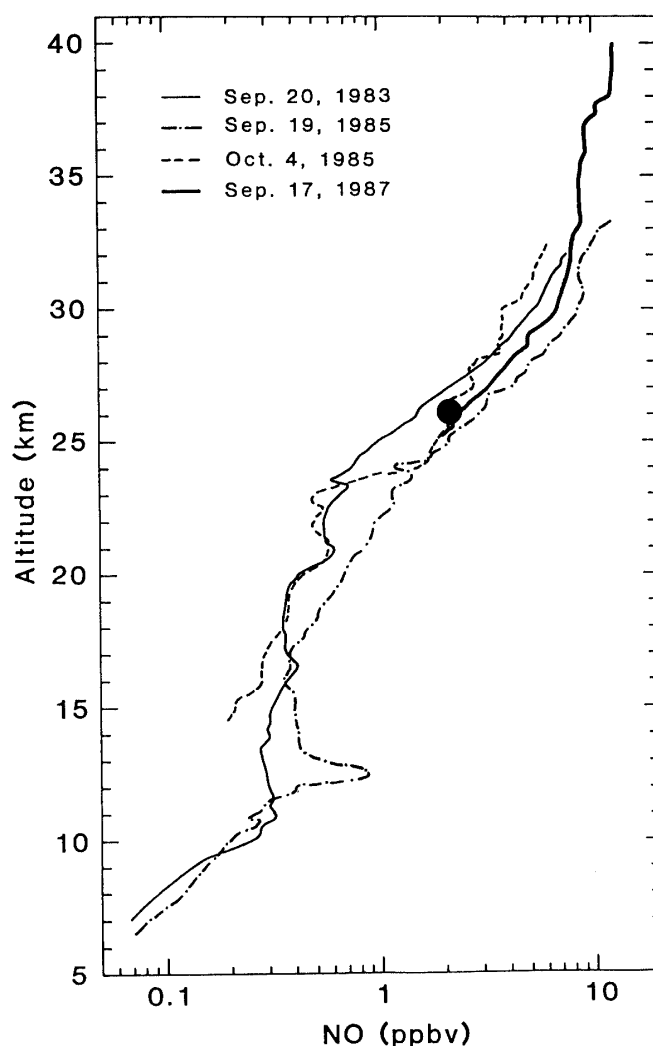


図19 フランス(44°N)で測定されたNO密度と今回26 km高度で測定された昼間のNOの値(黒丸)との比較

局所的な光化学が重要になるがその一方で乱流も含めて拡散があるため、ゴンドラ付近の大気は周囲の大気と混合されるはずである。従ってどの程度局所的な放射場が局所的なNO密度を左右するかということは、光化学と混合の時定数のかねあいである。光化学の時定数は1分の程度である。この観測結果は混合の時定数もこの値から著しく異なっていないことを示していると考えられる。

図17の下向き放射計の信号を見ると10:30 JST頃に上向き放射強度の増加が見れる。これは前述の125°E付近の雲の位置に対応しているように見える。12:00 JST頃から再び増加が始まり14:30 JST頃最大になる。この現象も雲の位置と関係が深いように見える(図12)。しかしこの下面からの放射の変動に対応するNOの変動は明確ではない。その

理由はNOのゆっくりした増加が基本的にあることやNOの不規則な変動(これは測定誤差も部分的には原因している)があることなど他の変動と区別しにくいことにもよる。

既に述べたように、14:00~16:00 JSTのNOの値は約2 ppbvであるが、この値を従来の我々のフランスでの気球実験の結果と比較した(図19)。この値はフランスでの同じ高度の値と極めてよく一致していることが分る。このことは我々の測定は異なった測定器を用いて、異なった条件で行っているにもかかわらず、再現性が良いことを意味しており、測定値に対する信頼性を裏付けている。

謝 辞

内之浦での日中共同気球実験を実施するにあたり、宇宙科学研究所の西村純教授、広沢春任教授、奥田治之教授、矢島信之助教授をはじめとする皆様に多くの御協力を頂きました。また中国科学院の誠意ある協力によりこの実験を成功させることができました。ここに深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- [1] Kondo, Y., A. Iwata, M. Takagi, and W. A. Matthews, Balloon-borne chemiluminescent sonde for the measurement of tropospheric and stratospheric nitric oxide, *Rev. Sci. Instrum.*, 55, 1328-1332, 1984.
- [2] Kondo, Y., W. A. Matthews, A. Iwata, and M. Takagi, Measurement of nitric oxide from 7 to 32 km and its diurnal variation in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 90, 3813-3819, 1985.
- [3] Kondo, Y., W. A. Matthews, P. Amedieu, and D. E. Robbins, Diurnal variation of nitric oxide at 32km : Measurements and interpretation, *J. Geophys. Res.*, 93, 2451-2460, 1988.
- [4] Kondo, Y., A. Iwata, P. Amedieu, W. A. Matthews, W. R. Sheldon, and J. R. Benbrook, Nitric oxide in the upper stratosphere, *Proc. Int. Ozone Symp.*, 1988(submitted).
- [5] Ridley, B. A., M. McFarland, J. T. Bruin, H. I. Schiff, and J. C. McConnell, Sunrise measurements of stratospheric nitric oxide, *Can. J. Phys.*, 55, 212-221, 1977.