

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
—B₁₅-64, 66号機とオゾンゾンデ観測結果*

柴崎和夫**・岩上直幹***・北 和之***・小川利紘***

(1988年8月10日受理)

Balloon observations of the stratospheric
NO₂ and O₃ profiles :
Results from B₁₅-64, B₁₅-66 balloons and from ozonesondes

By

Kazuo SHIBASAKI, Naomoto IWAGAMI, Kazuyuki KITA
and Toshihiro OGAWA

Abstract: Balloon-borne measurements of the stratospheric NO₂ profile were made at Sanriku on October 6, 1986 (B₁₅-64) and May 19, 1987 (B₁₅-66). A NO₂ profile derived from B₁₅-64 observation was compared with that from the B₅-85 observation made on May 29, 1978. A significant difference was found in peak altitudes of two profiles. Ozone profiles obtained by electrochemical ozonesondes during the periods of the balloon observations were also presented and compared with that obtained during the B₅-85 balloon measurement. In ozone profiles also shown was a difference between the B₅-85 result and others. This difference may indicate a difference in atmospheric condition between 1986 and 1978 observation periods. We suggest that the lower stratospheric NO₂ is largely affected by dynamical processes.

* 宇宙研究特別事業費による研究論文

** 国学院大学

*** 東京大学理学部

1. はじめに

成層圏オゾンの消滅物質の1つとして NO_x (NO , NO_2)の重要性が指摘されて以来、数多くの観測、理論的研究が行われてきた[1]。しかしながら、成層圏オゾン層の変動を予測するために構築された種々の数値大気モデルは観測結果を十分に説明するまでには到っていない。しかしこれには観測の精度不足という問題があり、より高精度の観測が望まれている。また、 NO_x の高度分布の緯度変化、季節変化等の観測を系統的に実施してモデル予測の検証を行う必要性も指摘されている。

我々のグループは1978年5月に初めて三陸で NO_2 の大気球観測を行い[2]、以後アメリカ、南極、フランス等で観測を実施してきた。これらの観測結果からは高度分布に系統性のある変化は見出せない。しかしながら、最初に三陸で得た結果と他の結果との差は有意であるように見える。そこで、三陸における観測結果を追試すると同時に季節変動があるならばそれをも明らかにすることを目的として、再度三陸での観測を企画した。観測は1986年10月6日(B₁₅-64号機)と1987年5月19日(B₁₅-66機)の2度実施したが、後者の観測では測器の故障により最終的な NO_2 の高度分布を得ることはできなかった。季節変動を調べるという所期の課題は果せなかったが、前者の10月6日の結果は興味深いものであった。本報告ではこのB₁₅-64号機の結果を中心に述べる。

2. 観測装置

測器の基本構成は以前に報告[2]したものと同一である。 NO_2 測定用測器は太陽追尾装置を備えた分光計である。B₁₅-64号機で使用した測器は1978年5月29日のB₅-85号機の実験で使用し回収したものである。今回の観測では、分光器の波長走査速度を2倍にして約2分で波長域428-451 nmの太陽吸光スペクトルを1つ取得できるようにし、さらに波長走査方向逆転時に暗電流を測定するよう改造した。B₁₅-66号機に搭載した NO_2 測定用装置は分光計にJobin-Yvon社のH20分光器を使用し、約1分で1スペクトルを取得している以外は基本的にB₁₅-64号機搭載測器と同一である。

今回の実験ではオゾン測定も実施している。B₁₅-64号機には気象庁標準型のオゾンゾンデとオゾン測定用単色放射計を搭載した。この放射計は中心波長600 nm、半値全幅15 nmの干渉フィルターと光ダイオード検出器を備えオゾンChappuis帯による太陽光の吸収量を測定する。視野全角は8度で、この放射計を太陽追尾装置の太陽光導入筒に平行に取り付けた。B₁₅-66号機にはオゾン測定用の測器は搭載しなかった。その他、1986年、1987年実験のいずれの場合も大気球観測に合わせてオゾンゾンデの放球を2度づつ行った。

3. 実験経過

3.1 1986年度実験

B₁₅-64号機は1986年10月6日7時44分(JST)に三陸大気球実験場より放球された。図1に大気球の航跡を、図2に高度曲線を示す。気球は放球後約90分で約31 kmの水平浮遊高度に達し以後東へと流され続けた。

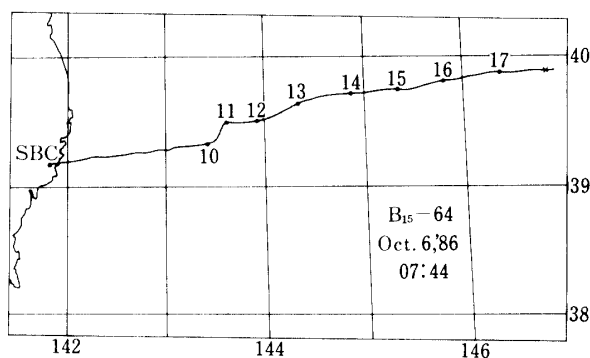


図1 1986年10月6日放球されたB₁₅-64号機の航跡図。
図中の数字は時刻(JST)である。

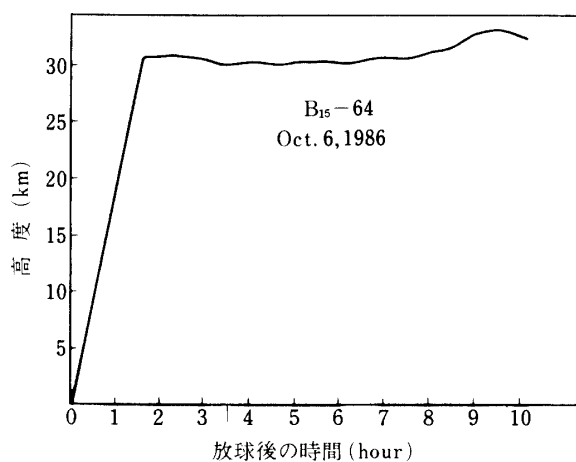


図2 B₁₅-64号機の高度曲線。

太陽スペクトルの取得を10時20分頃から開始し17時10分頃まで継続した。高度分布を求めるには日没時の観測データが重要であり、より高々度までの分布を求めるため上空日没前に全てのバラストを投下した。その結果気球は高度33 kmまで上昇した。観測終了後の17時50分頃ゴンドラを切り離し全ての実験を終えた。NO₂測定用分光計、O₃用単色放射計による観測は成功裡に終了したが、大気球搭載のオゾンゾンデは不調で良好なデータを得ることはできなかった。なお大気球実験に先立つ10月3日14時30分、実験当日の10月6日16時にオゾンゾンデの放球を行い、各々高度約36 km, 31 kmまでのオゾン高度分布を測定した。

3.2 1987年度実験

B₁₅-66号機は1987年5月19日7時3分(JST)に放球された。放球作業は順調であった

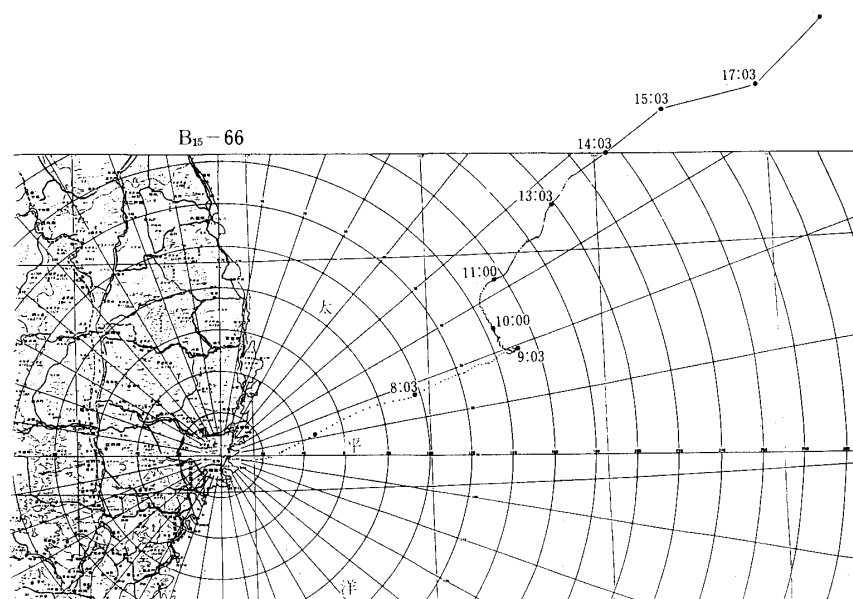


図3 1987年5月19日放球されたB₁₅-66号機の航跡図。

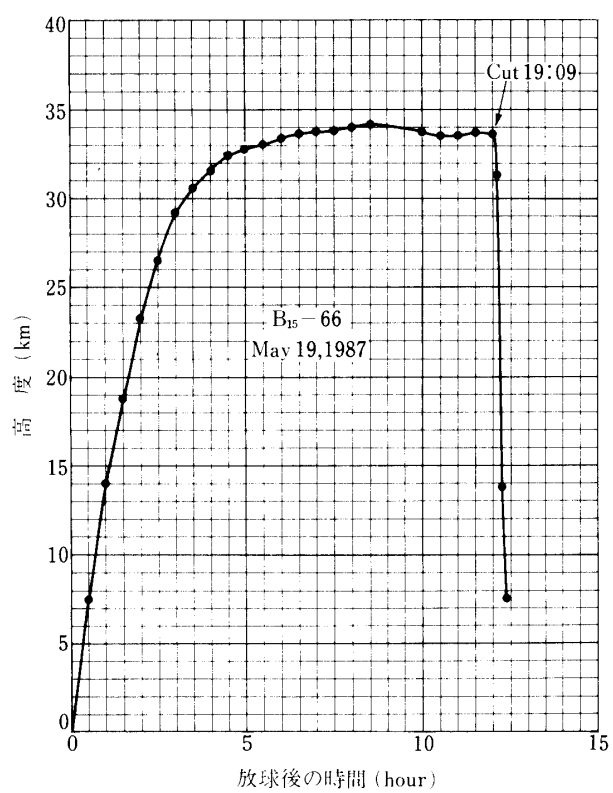


図4 B₁₅-66号機の高度曲線。高度は新受信点からの測距データによる。

が気球の上昇速度が異常に遅く、約8時間後に水平浮遊高度34 km(新受信点データ)に到達した。図3に航跡図を、図4に新受信点測距データに基づいた高度曲線を示す。なお旧受信点データは新受信点データより約1 km低い高度を示す。

観測は13時40分頃開始した。しかしながら16時少し前からNO₂測定用分光計の太陽追尾装置が不調になった。測器電源 on, off の反復により一時的に回復したが、16時45分頃再度追尾系のモーター停止と思われる症状を示して太陽追尾が不能になり、この時点で実質的に観測を打ち切った。故障の理由として、非常に遅い気球上昇速度だったために下部成層圏の低温域通過に予想以上の時間を要し測器が過度に冷却したことが推測できる。けれども確実な原因については不明である。

1987年度実験でもオゾンゾンデ観測を2度実施した。1度目は大気球実験前日の5月18日14時に放球し、2度目は実験当日の5月19日17時放球で、各々高度約25 km, 32 kmまでのオゾン高度分布を測定した。

4. データ解析

4.1 気柱密度の導出

二酸化窒素(NO₂)

太陽スペクトル中のNO₂の吸収量を抽出し、太陽光路に沿ったNO₂の積分気柱密度を求める手法は既に報告している([2], [3])。

波長 λ の参照スペクトル強度 I_0 、測定スペクトル強度 I としてBeerの法則を適用すると両スペクトルの強度の比は以下の式で表わせる。

$$\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} = A \exp\{-\sigma_{\text{NO}_2} \cdot N_{\text{NO}_2} - \sigma_{\text{O}_3} \cdot N_{\text{O}_3}\} \quad (1)$$

ここで σ_{NO_2} 、 σ_{O_3} はNO₂とO₃の吸収断面積、 N_{NO_2} 、 N_{O_3} はNO₂、O₃の積分気柱密度である。Aには空気分子、エアロソル粒子による吸収、散乱および装置特性を全て含ませている。波長430~450 nmの約20 nm間の各 λ について(1)を仮定し、統計的に N_{NO_2} 、 N_{O_3} を求めている。参照スペクトル(理想的にはNO₂による吸収を含まないもの)としては同一大気球実験中の太陽天頂角が小さい時に取得したスペクトルを採用している。またAとしては(1)の比スペクトルを幅2.5 nmの数値フィルターで平滑化したものを用いている。

オゾン(O₃)

O₃による吸収も原理的には(1)式で表わせる。単色放射計のデータでAに含まれるRayleigh散乱、屈折によるdilution効果についてはモデル大気を用いて計算により求める。残りの吸収成分は全てO₃に由来するものとしてO₃量を求めている。ここではエアロソル粒子による吸収、散乱を考慮していないので、エアロソル層の存在する下部成層圏ではO₃量を過大評価することになる。

4.2 高度分布の導出

以前の論文で我々が採用していた高度分布決定法は、いわゆる‘玉ねぎの皮むき法(onion peeling method)’と呼ばれるものであった([2], [3])。この方法は気球高度より下層の分布を厳密に求めることが可能だが、気球高度より上層のNO₂密度を求めることはできない。そのために逐次近似法により上層分布を求める試みも行った([4])。またこ

の皮むき法には誤差が次々と下層に伝播していく欠点もある。そこで我々は、Twomey の拘束線型反転法(constrained linear inversion method)を用いて高度分布を求める手法([5])を採用することにした。

数学的にはベクトル $\mathbf{y}=(y_i)$ と $\mathbf{a}=(a_j)$ が係数行列 $\tilde{X}=(x_{ij})$ によって線型に結びついた系

$$\mathbf{y}=\tilde{X}\cdot\mathbf{a} \quad (2)$$

を考え、 \tilde{X} が与えられて \mathbf{y} の観測値が存在するとき、 \mathbf{a} を推定するという問題になる。我々の場合では \mathbf{y} がある太陽天頂角のときの積分気柱密度を成分としたベクトル、 \mathbf{a} が各層内密度を成分とした高度分布を表わし、 \tilde{X} はある天頂角のときの各層内光路長を成分とする行列となる。すなわち(2)は

$$\mathbf{a}=({}^t\tilde{X}\cdot\tilde{X})^{-1}\cdot{}^t\tilde{X}\cdot\mathbf{y} \quad (3)$$

の形に変形でき \mathbf{a} を計算できる。ここで ${}^t\tilde{X}$ 、 \tilde{X}^{-1} はそれぞれ \tilde{X} の転置行列、逆行列である。しかし現実には(2)の系は singular に近い系であり、 \mathbf{y} 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{y} を観測値 \mathbf{y}^{obs} と誤差 $\boldsymbol{\epsilon}$ から構成される系とみなして(2)を、

$$\mathbf{y}^{obs}+\boldsymbol{\epsilon}=\tilde{X}\cdot\mathbf{a} \quad (4)$$

と書き換えておく。通常 $\boldsymbol{\epsilon}$ の厳密な形は未知なので直接(4)式の逆変換を実施しても解の安定性は保証の限りでない。そこで Twomey は \mathbf{a} の2次微分の平方和と誤差の平方和の和が極小になるという拘束条件下で、最小二乗法に従って \mathbf{a} を推定する。すると(4)の逆変換は

$$\mathbf{a}^{est}=(\tilde{X}\cdot{}^t\tilde{X}+\gamma\tilde{H})^{-1}\cdot{}^t\tilde{X}\cdot\mathbf{y}^{obs} \quad (5)$$

と表わすことができる。 \tilde{H} が拘束条件を表現する行列であり、 γ がその拘束の強さを決める任意定数である。このとき標準偏差 σ 、ランダム誤差 $\boldsymbol{\epsilon}$ は各々、

$$\sigma^2=\frac{1}{N}\sum(\mathbf{y}^{obs}-\mathbf{y}^{cal})^2\approx(\text{雑音})^2$$

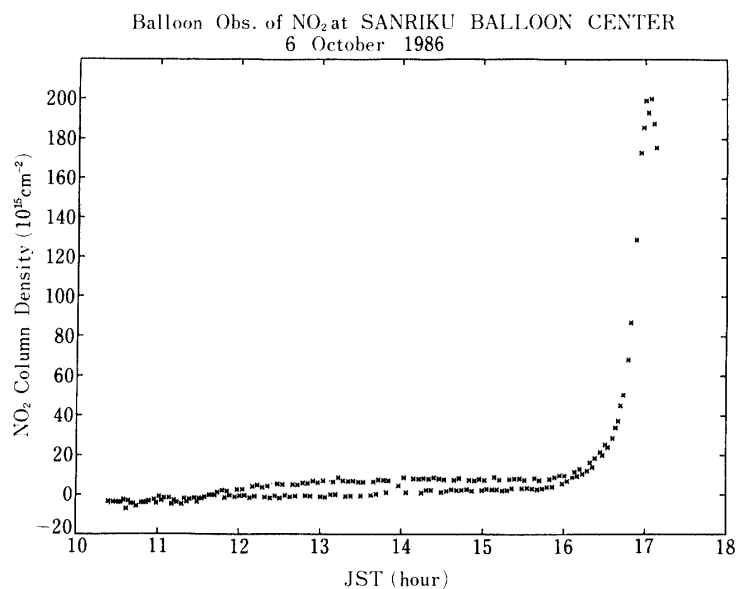
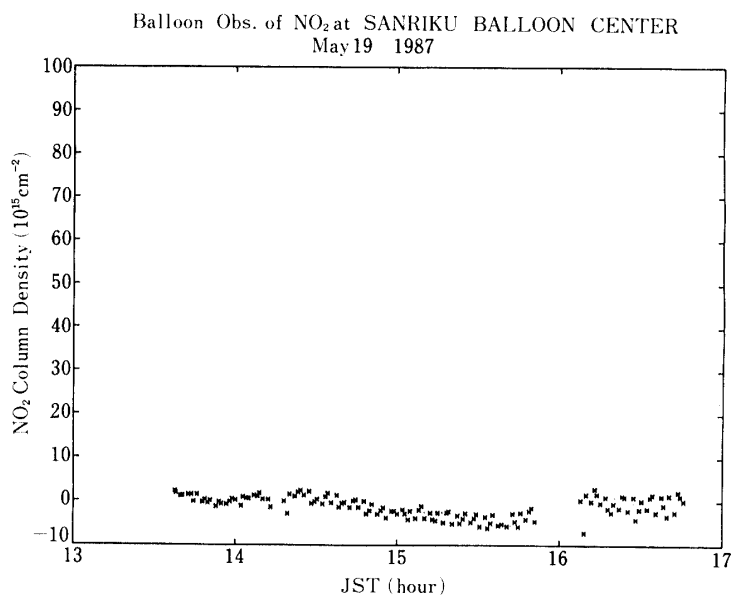
$$\boldsymbol{\epsilon}=-\gamma({}^t\tilde{X}^{-1})\cdot\tilde{H}\cdot\mathbf{y}^{obs}$$

で求まる。ここで \mathbf{y}^{cal} は(5)で求めた \mathbf{a}^{est} を(2)式の右辺に代入して求めたものである。(5)式では \tilde{X} 、 \tilde{H} は観測条件、拘束条件で決まるので、観測データを全て用いて \mathbf{a} の各成分を誤差伝播なく同時に、我々の場合ならば気球高度より上層、下層の NO_2 密度分布を同時に、導出できる。

ただし、拘束の強さを決める定数 γ は全く任意である。数学的には γ を一意的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われやすくなり、大きすぎると過剰に平滑化された解を得る結果になる。 σ や $\boldsymbol{\epsilon}$ が最小になるように γ を決定するというのが基本方針であるが、現実の観測データでは難しい場合もある。結局、Twomey の方法では皮むき法で見られたような誤差の伝播は回避できるが、完全に一意的に解(\mathbf{a})が求まるのではなくやはりある程度の任意性は残ることになる。それでも上層から下層への誤差の伝播がなく、誤差の評価もきちんとでき、気球高度上層の密度分布を特別な前提条件なく(もち論拘束条件はあるが)求めることができるのは皮むき法より格段にすぐれている点である。

5. 結果と検討

図5 a), b)に B₁₅-64, 66号機各々の観測で得た NO₂ 積分気柱密度の時間変化を示す。3節で述べたように, B₁₅-66号機での観測は上空日没以前に停止したので図5 b)のデー

a) B₁₅-64号機.b) B₁₅-66号機.図5 NO₂ 積分気柱密度の時間変化.

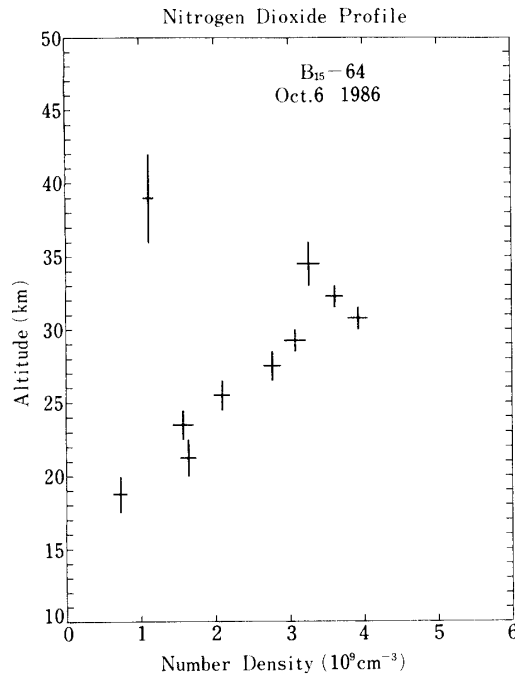


図6 B₁₅-64号機の観測で得たNO₂高度分布。縦棒は層厚を横棒はランダム誤差の大きさを示す。

タから高度分布を求めることはできなかった。

図5 a)のデータを用いて Twomey の手法で求めた NO₂ 高度分布を図6に示す。我々の観測では太陽光球全体を視野に収めて分光しているので、空間(高度)分解能は太陽天頂角に従って変化する。つまり気球より下層では正接高度近傍の NO₂ 吸収の寄与が大きく、その高度域での太陽光球の見かけの大きさが高度分解能を決める。気球高度上方でも原理的には層厚は任意に取って細かく高度分布を求めることは可能である。しかし NO₂ のように構造の乏しい高度分布(と我々は考えている)の場合、(2)式の係数行列 \tilde{X} の太陽天頂角 90 度未満の各成分は互いに独立とはいいい難くなる。それ故、気球高度上方で細かい層に分割する意味は小さい。図6の各層厚は以上の原則に従って決めている。気球高度上層は2層のみを考えている。

図7 a), b)には 1986 年度, 1987 年度に実施したオゾンゾンデ観測および単色放射計観測によるオゾン分布測定結果を各々示した。前にも述べたように単色放射計の結果は、エアロソル粒子による散乱、吸収や Rayleigh 散乱成分以外の他大気分子による吸収等を考慮していないので、特に下部成層圏で O₃ 量を過大評価していることがわかる。そのような影響の少ない 25 km 以上ではゾンデの結果とほぼ一致している。

図8に1978年5月29日に実施した B₅-85号機による NO₂ 高度分布の測定結果と B₁₅-64号機の結果を比較して図示した。なお B₅-85号機で得た高度分布は今回採用した方法で

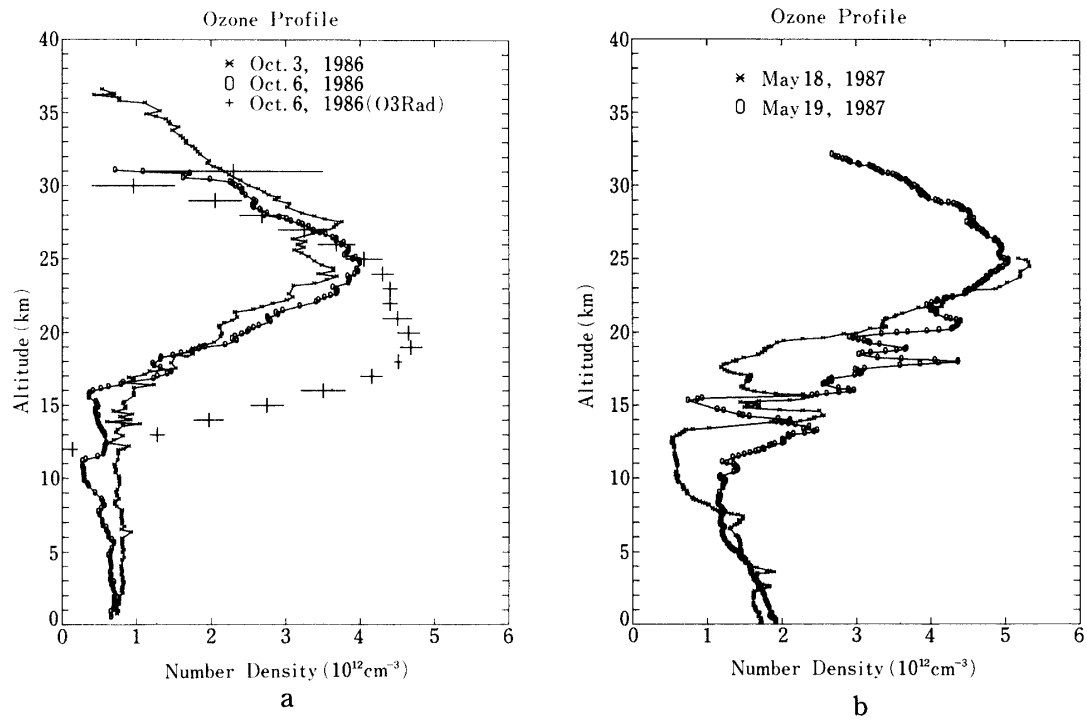


図7 a) 1986年10月3日, 6日のオゾンゾンデ観測およびB₁₅-64号機塔載単色放射計によるオゾン高度分布測定結果. b) 1987年5月18日, 19日のオゾンゾンデ観測結果.

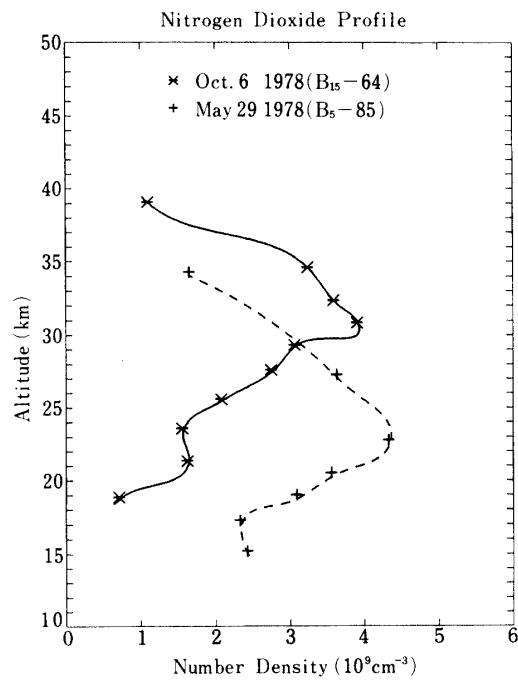


図8 B₅-85号機とB₁₅-64号機で測定したNO₂高度分布比較.

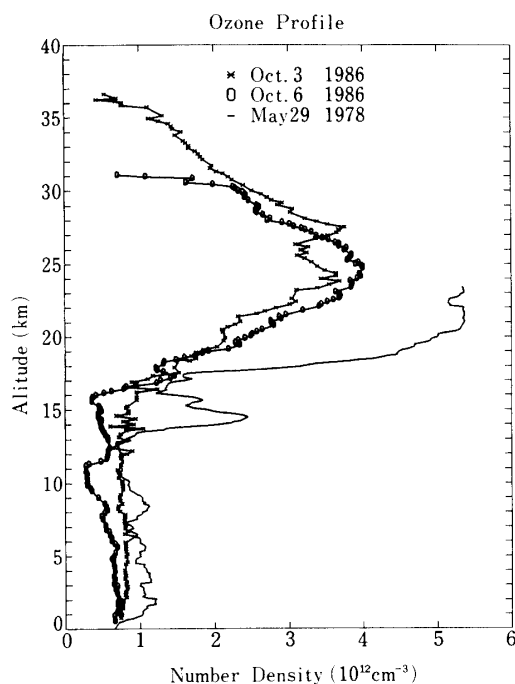


図9 B₅-85号機搭載のオゾンゾンデ観測結果と1986年度のオゾンゾンデ観測結果との比較。

改めて解析した結果である。両者を比較すると NO₂ ピーク高度に 8 km 程の違いが存在する。この違いの原因は何であろうか。観測時期の違い、5月29日(B₅-85)と10月6日(B₁₅-64)、を考慮して季節変化であると結論するには、測定例が1例ずつで少な過ぎる。そこでオゾン分布を調べて見る。図9にB₅-85号機搭載のオゾンゾンデで気球上昇時に測定したオゾン分布と1986年度実験で実施したオゾンゾンデ観測結果を比較して示した。図9で明らかのように1978年の観測結果では、15 km 領域に副ピークが存在する。このような高度分布は中緯度の冬季から春季にかけて良く現われる型で、高緯度域のオゾン濃度の高い気塊が下層に入り込んでいると思われる。それに対し1986年10月の結果はいわゆる夏型と呼ばれるような1つの主要ピークを持つ分布となっている。オゾンは下部成層圏での寿命が長く大気運動の追跡物質として用いられていることを考慮すると、図9の結果は1978年5月と1986年10月の気球観測時では下部成層圏の大気条件が異っていたことを意味する。図8に見られるNO₂高度分布の違いはこの下部成層圏の大気状態の違いを反映したものと理解したい。なお5月と10月のピーク密度の違いはオゾン全量の季節変化に対応している。

もち論、広義にはこれも季節変化である。しかしながら図7b)からも理解できるように、三陸の初夏におけるオゾン分布はかなり複雑な様相を示す。中緯度上空の成層圏は熱帯域(低緯度)と極域(高緯度)の気塊が混合している領域である。従ってこの両者の季節的消長により混合領域は移動する。またその移動の様相こそが中緯度の季節変化といえる。通常

気球観測の時期は上空の季節の変わり目(東西風の交替期)に当たるので、熱帯域の気塊と極域の気塊が複雑に入り組むことになる。このような状況を反映して下部成層圏ではNO₂分布の変動も大きいと考えられる。1987年5月の観測でNO₂高度分布を得ることができなかったのは本当に残念であった。

いずれにしても単純に平均的な季節変化という枠組で捉える前に、同時観測したオゾン分布に現われる大気状態の違いなどを良く吟味して比較を行うことが重要であろう。今後は、以上述べてきた点をより明確にするためにも、これまで我々が実施してきたアメリカ、フランス等での観測結果と高層気象データの詳細な付き合わせを実施し、下部成層圏でのNO₂分布の変動に対する知見を得たいと考えている。

6. 謝 辞

最後に、2回の大気球実験、オゾンゾンデ観測に際し西村 純教授をはじめ西村研究室の方々には大変お世話になった。ここに記して深く感謝の意を表す。

参 考 文 献

- [1] WMO, Atmospheric Ozone 1985 : WMO Global Ozone Research and Monitoring Project, Report No.16, 1986.
- [2] 柴崎和夫, 鈴木勝久, 小川利紘, 東京大学宇宙航空研究所報告, **15**, 243, 1979.
- [3] Ogawa, T., K. Shibasaki, and K. Suzuki, J. Meteorol. Soc. Japan, **59**, 410, 1981.
- [4] Iwagami, N., T. Ogawa, and K. Shibasaki, J. Meteorol. Soc. Japan, **63**, 325, 1985.
- [5] Twomey, S., J. Assoc. Comp. Mach., **10**, 97, 1963.