

A-1. オゾン層の時間的・空間的変動の動態解明に関する研究

(1) 赤外ヘテロダイン分光計によるオゾン及び破壊関連物質の挙動解明

研究代表者 東北大学理学部 福西 浩

環境庁 国立環境研究所

地球環境研究グループ オゾン層研究チーム 中根英昭

(委託先) 東北大学理学部 福西 浩、岡野章一、田口 真

平成2—4年度合計予算額 11,715千円

〔要旨〕 日本付近でのオゾン層の時間的・空間的変動の実態を明らかにするために、東北大学で開発したレーザーヘテロダイン分光計を用いてオゾン高度分布を観測した。1991/1992及び1992/1993冬期には筑波においてオゾン層の集中観測を実施した。レーザーヘテロダイン分光計及びオゾンゾンデ観測によって得られたオゾン高度分布、TOMSオゾン全量、客観解析データより計算されたポテンシャル渦度などのデータを比較検討した結果、日本付近の冬期のオゾン変動は大気の運動による輸送効果が支配的であることがわかった。日本に運ばれてくる低オゾン濃度大気の起源は高緯度において化学的にオゾンが破壊されている領域であるとかんがえられる場合もあった。

〔キーワード〕 オゾン、大気微量成分、赤外分光、レーザーヘテロダイン分光計、リモートセンシング

1. 序

オゾン、二酸化炭素を始めとする大気微量成分は、赤外及び紫外領域における放射特性によって地球大気のエネルギー収支に関与し、グローバルな大気構造の形成に重要な役割をになっている。近年、地球大気組成の人為的変容にともなう地球温暖化やオゾン層破壊などの大規模な大気環境破壊が予測され、これらの大気微量成分の動態が注目されてきている。特に、ここ数年南極オゾンホールに続いて北極域でもオゾンホールと見られる現象が発見され、北半球中高緯度でのオゾン全量の減少傾向が報告されている。北半球は南半球と比較して人口が密集しており農耕地や森林も多く、オゾン層破壊が人間生活に与える影響はより深刻である。

オゾン層破壊の原因としては、地上から放出されたフロンガスが成層圏に達し、太陽紫外線のエネルギーによって遊離したハロゲンラジカルによる触媒反応が考えられている。ハロゲンラジカルは硫酸や硝酸エアロゾル粒子表面上での不均質反応によって効率良く生成される。オゾンホール形成には極成層圏雲上での不均質反応が重要なハロゲンラジカルの生成反応と考えられているが、1991年のピナツボ火山の噴火によって成層圏に大量に注入された火山性のエアロゾルを核とした不均質反応によるオゾン破壊の可能性も指摘されている。

2. 研究方法

オゾン及びオゾン層破壊関連物質の多くは赤外領域に振動回転遷移にともなう吸収帯を持つので、赤外領域の高分解能分光はこれらの大気微量成分の有力な測定手段となり得る。レーザーヘテロダイン分光法は赤外域における最も高分解能かつ高感度な分光法であり、大気微量成分のリモートセンシングに最適な分光法である。東北大学理学部では地上及び航空機、気球、衛星などの飛翔体からの大気微量成分のリモートセンシングを目的とした小型軽量の赤外半導体レーザーヘテロダイン分光計を開発してきた^{1)・2)}。

本研究では、レーザーヘテロダイン分光計を用いてオゾン及びオゾン層破壊関連物質の高度分布を測定し、その他の手法で得られたオゾン観測データ、気象庁全球解析データから計算されたポテンシャル渦度と合わせて比較検討することによって、日本付近のオゾン変動の原因を解明することを目的とする。

3. 観測装置

東北大学が開発したレーザーヘテロダイン分光計は1989年より大気オゾンの高度分布及び気柱全量の測定に応用されてきた。しかし開発当初のレーザーヘテロダイン分光計はオゾン観測専用であり、さらに実験室設置型なので移動観測は不可能であった。そこで新たに可搬型のレーザーヘテロダイン分光計の開発を進めてきた結果、1991年の夏に完成し実際の観測に稼働し始めた。この可搬型レーザーヘテロダイン分光計のブロック図を図1に、また諸性能を表1に示す。光学系部分の大きさは縦800mm 横600mm 高さ500mmで重量は約70kgである。

望遠鏡で集光された太陽光はチョッパーで変調され、回折格子で必要な周波数域のみ取り出されたのち、HgCdTe フォトミキサーに結象される。一方、局発半導体レーザー光の半分は半透鏡で太陽光と重ねられたのち、同じパスを通過してフォトミキサーに結象される。フォトミキサーには振幅が太陽光とレーザー光のパワーの積の平方根に比例し両者の差の周波数を持った光電流が流れる。フォトミキサーからの光電流出力は増幅、濾過、検波されたのち、チョッパーからの信号を参照してロックインアンプで同期検波される。半導体レーザーの発振周波数は供給する電流を変調することによって掃引可能である。通常のRF帯域のスペクトルアナライザーと同様に、IF信号の帯域を十分狭ばめて局発レーザーの周波数を掃引することによって太陽赤外光のスペクトルが得られる。

レーザー光の半分は半透鏡を透過したのち、エタロン干渉計を通過して別のHgCdTe デテクターで検出される。このデテクターからの信号は局発レーザーの発振周波数の校正に用いられる。ヘテロダイン信号、光電流直流成分及び周波数校正用HgCdTe デテクター出力はA/Dコンバーターを介してコンピューターで記録される。また、半導体レーザーに流す電流はコンピューターからコントロールされる。

このレーザーヘテロダイン分光計は2個の局発レーザーを内蔵しており、それらを切り替えることによって異なる波数域を分光することが可能である。冷却が必要な赤外素子、すなわち半導体レーザー及び赤外検出器は全て共通の液体窒素デュワーに搭載されている。この液体窒素デュワーは1回の補給で2日間以上液体窒素を保つので、液体窒素の蒸発による光軸のずれはわずかである。観測時には液体窒素の容器内を真空ポンプで減圧することによって、液体窒素の沸点を

65Kまで下げ、ヒーターと温度センサーを使用してレーザーの温度を 65-90K の範囲で 0.01K の精度でフィードバック制御している。この温度制御によって広い分光波数域と高い波数再現性が達成されている。

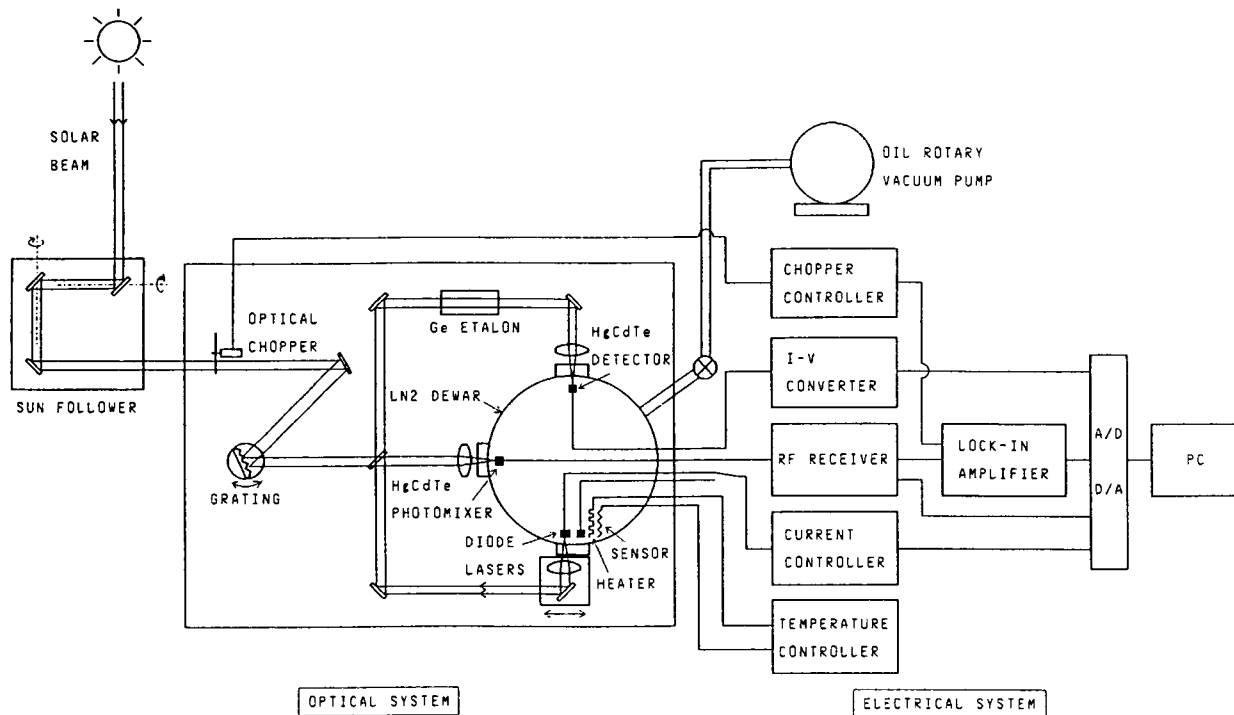


図1 東北大学可搬型レーザーヘテロダイン分光計のブロック図。

表1 可搬型レーザーヘテロダイン分光計の諸性能

Size	80cm×60cm×50cm
Weight	70kg
Spectral region	1100cm ⁻¹ , 1160-1280cm ⁻¹
Bandwidth (Resolution)	40MHz (0.0013cm ⁻¹)
Resolving power	8.5 - 9.6 × 10 ⁵
Temperature range of TDL	65-90K
Temperature stability	<0.01K
Liquid N ₂ holding time	>2days
Scan time	9min/spectrum
Data size	18kByte/spectrum

第1のレーザーでは波数 1100cm^{-1} でオゾン、また第2のレーザーでは波数 1180cm^{-1} で一酸化二窒素と波数 1220cm^{-1} でメタンを測定可能である。それに対して装置帯域幅は 0.0013cm^{-1} であるので、 $8.5\text{--}9.4 \times 10^5$ という高い周波数分解能を実現している。図2にレーザーヘテロダイン分光計で観測された大気オゾン吸収スペクトルの例を示す。この図から解るようにレーザーヘテロダイン分光計は個々の吸収線の形まで分解する能力を持つ。

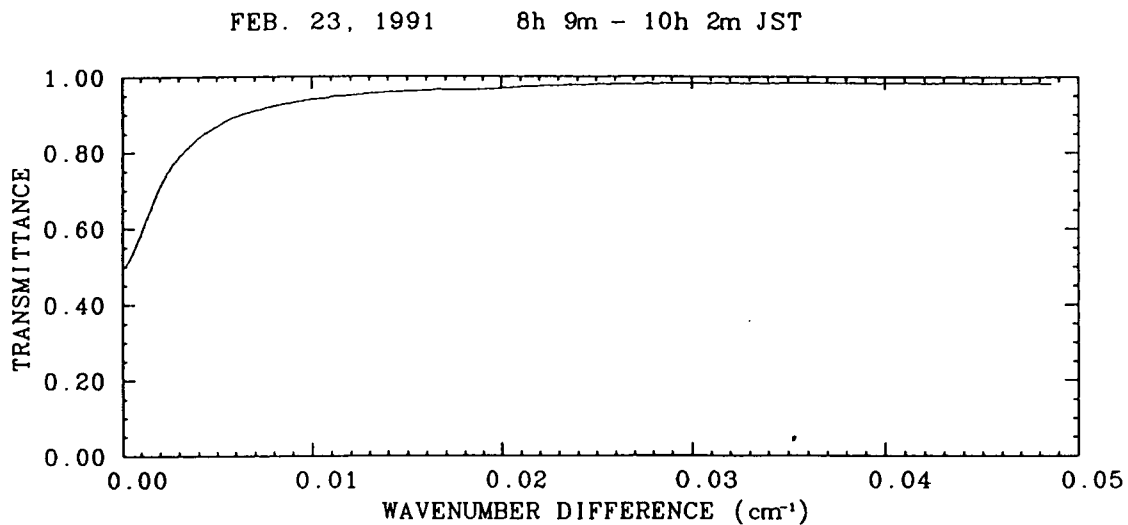


図2 レーザーヘテロダイン分光計で得られた大気オゾン吸収線スペクトルの例。

4. 観測

図2に示したようなオゾン吸収線プロファイルから反転法を用いて、大気中のオゾンの高度分布を導出できる。図3はレーザーヘテロダイン分光計によって観測されたオゾン分圧の高度分布である。比較のためにオゾンゾンデによって同時に測定された大気オゾン分圧の高度分布も重ねて示してある。レーザーヘテロダイン分光計による観測から求められる高度範囲は5-30km、高度分解能は約5kmである。細かい構造を除いてレーザーヘテロダイン分光計で観測されたオゾン分圧はオゾンゾンデによる値とよく一致している。レーザーヘテロダイン分光計による大気オゾンの高度分布観測はオゾンゾンデによる観測と比較して、高度分解能では劣るものの、絶対精度、時間分解能、労力、コストなどの点で優れている。

1991年2月20日から3月1日にかけて第1回のオゾン層集中観測を実施した。期間中、札幌では国立環境研究所が毎日オゾンゾンデ観測を行い、仙台では東北大学がレーザーヘテロダイン分光計による観測を、筑波では国立環境研究所がオゾンライダーによる観測を行った。そのうち仙台では2月21, 23, 26日の3日間のオゾン高度分布と全量が得られた。

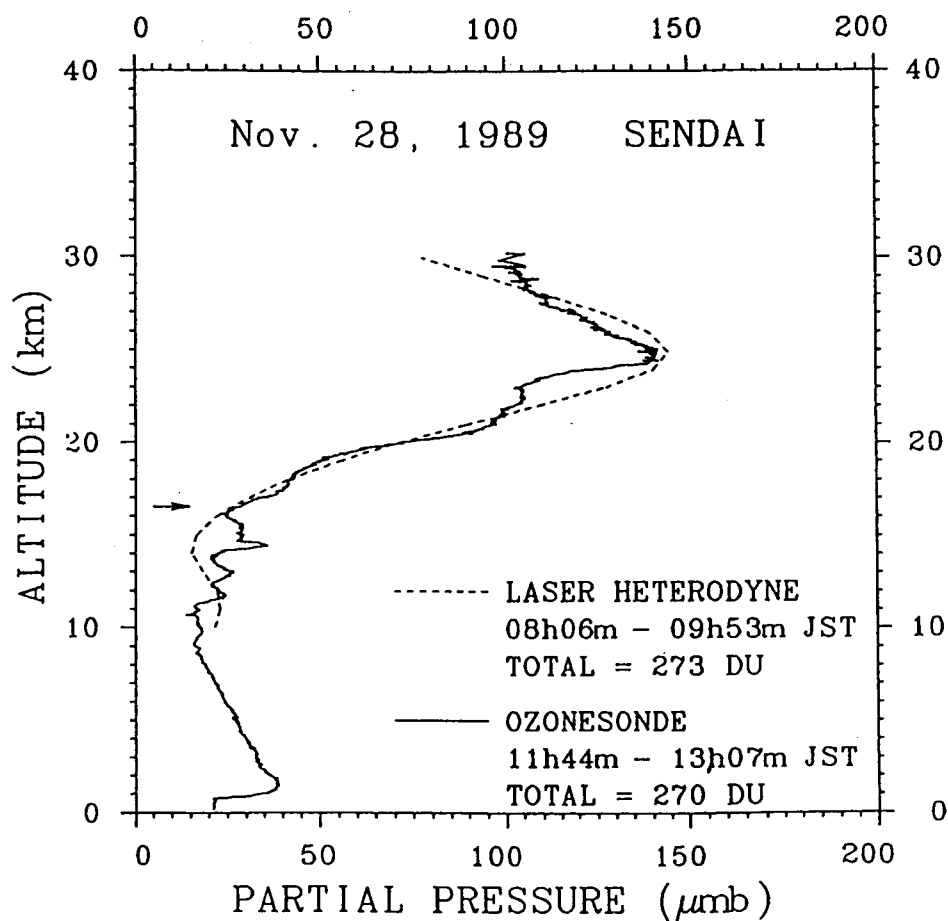


図3 仙台において観測された大気オゾン高度分布。点線及び実線はそれぞれレーザーヘテロダイン分光計及びオゾンゾンデで観測された大気オゾン分圧を示す。

1991年12月から1992年2月にかけて筑波の国立環境研究所において、東北大学の可搬型レーザーヘテロダイン分光計のほか、オゾンゾンデ、オゾンライダー、ミリ波分光計、エアロゾルライダーなどを使用して第2回のオゾン層の集中観測を実施した。東北大学のレーザーヘテロダイン分光計はオゾンについては1991年12月に6日間、1992年1月に12日間、2月に6日間の合計24日間観測を行った。オゾンゾンデ観測を1991年12月と1992年1月に5回ずつ行い、そのうち7回はレーザーヘテロダイン分光計によるオゾン観測と同日に行われた。レーザーヘテロダイン分光計によってそれ以外に全期間合わせてメタンについて14日間、一酸化二窒素について8日間の観測を行った。

1992年12月及び1993年1月に筑波の国立環境研究所において第3回のオゾン層集中観測行われた。12月の観測では晴天が続き連続したデータが得られたが、1月の観測では天候が悪かったことと期間が短かったために、よいデータはほとんど得られなかった。

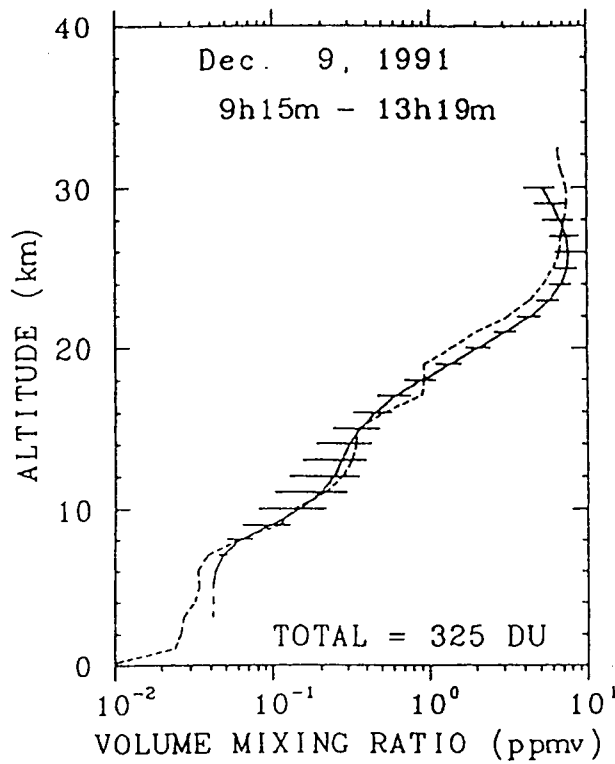


図4 筑波における第2回オゾン層集中観測期間の1991年12月9日に可搬型レーザーヘテロダイン分光計（実線）及びオゾンゾンデ（破線）によって観測されたオゾン混合比高度分布。

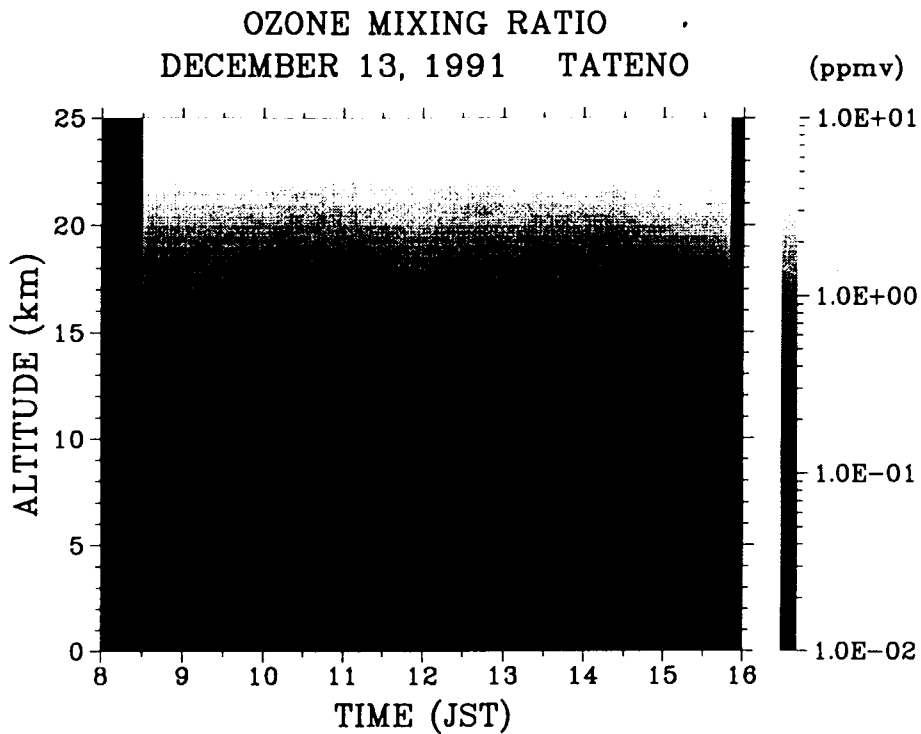


図5 筑波における第2回オゾン層集中観測期間中の1991年12月13日に可搬型レーザーヘテロダイン分光計によって観測されたオゾン混合比高度分布の日変化。

5. 解析結果

図4は第2回オゾン層集中観測期間の1991年12月9日にレーザーヘテロダイン分光計(実線)及びオゾンゾンデ(破線)によって観測されたオゾン混合比高度分布を示す。レーザーヘテロダイン分光計観測値は日中9時15分から13時19分に得られた全高度分布の平均値で、誤差棒は1標準偏差を表わす。オゾンゾンデは夕方17時に放球された。両観測値は下部成層圏ではよい一致を示しているが、高度20-25kmの範囲ではレーザーヘテロダイン分光計の観測値がオゾンゾンデの観測値を上回り、逆に高度30km付近ではレーザーヘテロダイン分光計の観測値はオゾンゾンデの観測値より小さい。この傾向は他の観測日のデータを比較した場合も見られた。原因はレーザーヘテロダイン分光計による吸収線スペクトルの中心付近の測定精度に問題があったと考えられる。

図5は同じく第2回オゾン層集中観測期間の1991年12月13日にレーザーヘテロダイン分光計によって観測されたオゾン混合比高度分布の日変化を濃淡表示で示してある。時間分解能は約1時間である。朝方から夕方にかけて対流圏のオゾン低濃度領域が上昇していく様子がとらえられている。この集中観測期間中、下部成層圏に大量のエアロゾルが存在していたことが国立環境研究所のエアロゾルライダーによって観測されていた。これは1991年6月に大噴火したフィリピンのピナツボ火山起源のエアロゾルであると考えられる。しかし、このオゾン層の集中観測ではピナツボ火山起源のエアロゾルの存在によると考えられる有意な変動は検出されなかった。

またこの期間に観測された大気メタンの吸収線スペクトルから大気メタンの高度分布が地上からのリモートセンシングとしては初めて導出された³⁾。

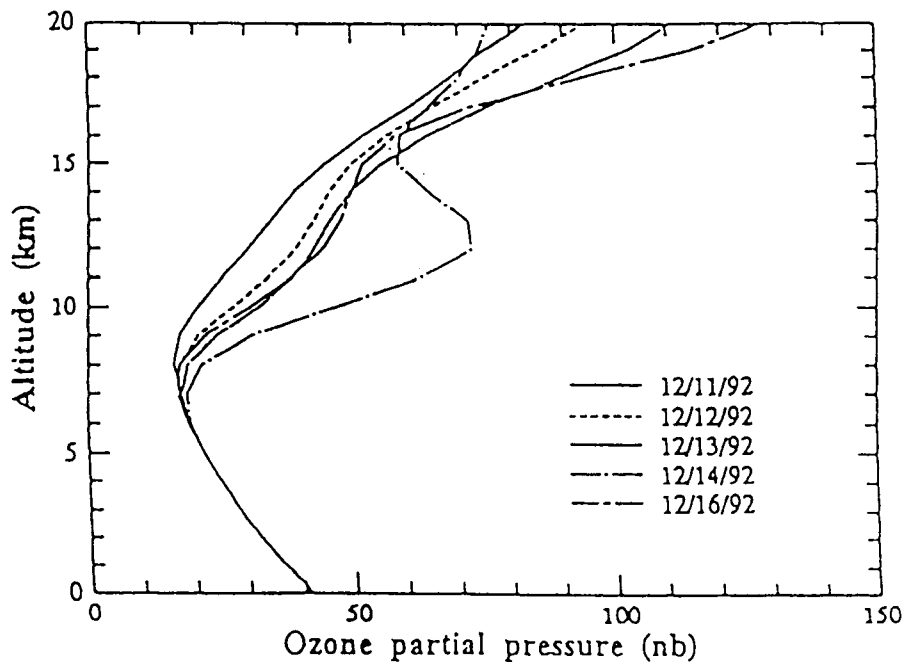


図6 筑波における第3回オゾン層集中観測期間にレーザーヘテロダイン分光計によって観測されたオゾン分圧高度分布。

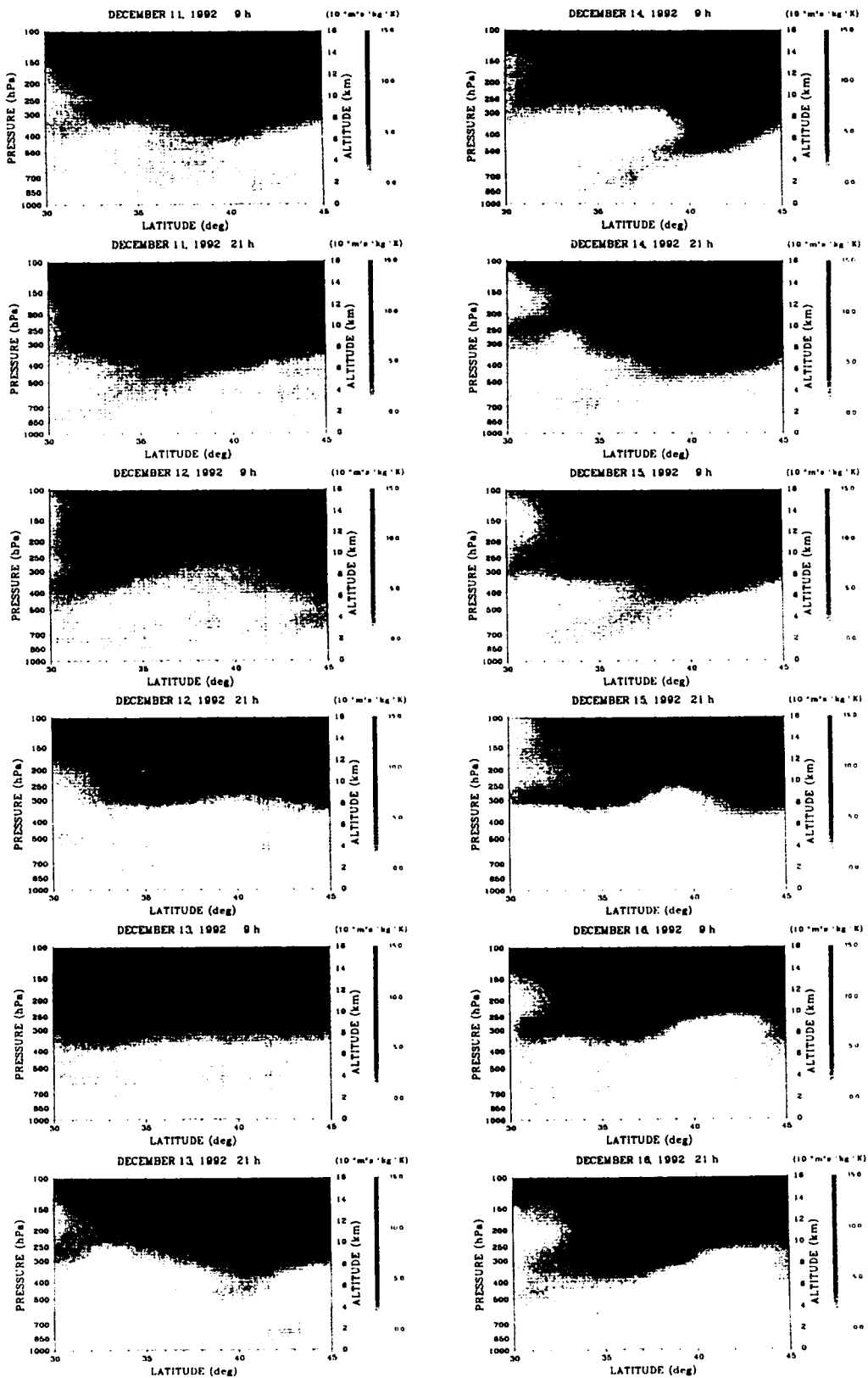


図7 ポテンシャル渦度の東経140度子午面断面図。

図6に第3回オゾン層集中観測期間に連続して観測ができた1992年12月11-14日、16日の日平均オゾン分圧高度分布をひとつの図に重ねて示す。ただし、有意な変動が見られた高度20km以下の領域のみ示してある。高度12km付近のオゾン分圧に着目すると12月11日から14日までは連続して増加し16日にはやや減少していることがわかる。ただし14日は観測数が少なく、この日のオゾン分圧高度分布に見られるピークは、有意ではない。これを除いて考えるとオゾンは対流圏界面付近で増大傾向にあったと言える。

図7にこの期間の東経140度子午面上のポテンシャル渦度を示す。ここに示したポテンシャル渦度は気象庁の全球解析データをもとに計算された。ポテンシャル渦度は下部成層圏においては保存量であるので、大気の運動の力学的トレーサーとして利用できる。筑波（北緯36度）でのポテンシャル渦度の変動を見ると、オゾン分圧の変動が比較的大きかった高度12km付近では、11日及び12日はポテンシャル渦度はやや小さく13日に増大した。14日も高度12kmではやや大きかった。北緯42度、高度8kmあたりから伸びてきたフォールディングが筑波上空では高度2kmまで降りてきている。15日には比較的是っきりとした別のフォールディングが発生し、16日には北上して、筑波上空では高度10km付近に第一のピークができていた。

両者を比較すると、この期間を通して高度12km付近では両者共に増加傾向にあった。13日にポテンシャル渦度に見られる増加はオゾン分圧には見られない点など、細かいところで食い違いも見られたが、だいたいの傾向としてはオゾンとポテンシャル渦度は良い相関を示している。このことは日本付近のオゾン変動は大気の運動による輸送効果が支配的であることを示唆する。しかしその後、1992年1月に北ヨーロッパ上空に現れたオゾンホールによると思われる低オゾン濃度大気が、日本上空まで輸送されてきていることがTOMSオゾン全量水平分布と流跡線解析を使った研究で示されている。

6. まとめ

本研究では、レーザーヘテロダイン分光計を用いた大気オゾン観測データ、オゾンゾンデデータ、客観解析データから計算されたポテンシャル渦度データを用いて、日本付近のオゾン変動の原因について探った。その結果、日本付近の冬期のオゾン変動の原因は主に大気の輸送効果によるが、低オゾン濃度大気の起源についてはもともとオゾンの少ない低緯度からきたと考えられる例とのものと、高緯度においてオゾンが化学的に破壊された大気が輸送されてきた結果と考えられる例があった。今後このようなオゾン高度分布とポテンシャル渦度の比較を全球的に進めると、オゾン変動の諸要因がより明瞭に分離されることが期待される。

7. 参考文献

- 1) Okano, S., M. Taguchi, and H. Fukunishi, Stratospheric ozone measurements with a tunable diode laser heterodyne spectrometer, *Geophys. Res. Lett.*, 16, 551-554, 1989.
- 2) Fukunishi, H., S. Okano, M. Taguchi, and T. Ohnuma, Laser heterodyne spectrometer using a liquid nitrogen cooled tunable diode laser for remote measurement of atmospheric O_3 and N_2O , *Appl. Opt.*, 29, 2722-2728, 1990.

- 3) 小出理史、レーザーヘテロダイン分光法によるメタン高度分布の導出、東北大学大学院理学研究科修士論文、1993.

国際共同研究等の状況

研究発表の状況

- 小出理史、岡野章一、田口 真、福西 浩、中根英昭、オゾンキャンペーン期間に観測された札幌上空でのオゾン変動、第90回地球電磁気・地球惑星圏学会講演会、1991年10月2-4日.
- 小出理史、田口 真、岡野章一、福西 浩、中根英昭、林田佐智子、松井一郎、杉本伸夫、湊 淳、笹野泰弘、ピナツボ火山エアロゾルの存在下でのオゾン層集中観測、第91回地球電磁気・地球惑星圏学会講演会、1992年4月7-10日.
- Wilson, S., M. Koide, M. Taguchi, S. Okano, H. Fukunishi, and H. Nakane, A study to measure the effect of Mt. Pinatubo aerosol particles on ozone amounts over Japan, 第92回地球電磁気・地球惑星圏学会講演会、1992年10月20-22日.
- 重松直子、田口 真、小出理史、岡野章一、福西 浩、中根英昭、つくばにおける可搬型レーザーヘテロダイン分光計によるオゾン観測、第16回レーザーセンシングシンポジウム、1993年6月3-4日.
- 小竹知紀、福西 浩、中根英昭、TOMSデータを用いた札幌上空の1月のオゾン全量変動の解析、日本気象学会1993年秋季大会、1993年10月26-28日.
- 重松直子、田口 真、小出理史、岡野章一、福西 浩、中根英昭、1992年12月/1993年1月のつくば上空のオゾン変動の解析、日本気象学会1993年秋季大会、1993年10月26-28日.