

## 2010年クライオサンプリング実験の成果と 成層圏メタン濃度の長期トレンド

菅原敏<sup>1</sup>, 青木周司<sup>2</sup>, 中澤高清<sup>2</sup>, 本田秀之<sup>3</sup>, 森本真司<sup>4</sup>, 豊田栄<sup>5</sup>,  
石戸谷重之<sup>6</sup>, 井筒直樹<sup>3</sup>, 吉田哲也<sup>3</sup>

<sup>1</sup>宮城教育大学, <sup>2</sup>東北大学, <sup>3</sup>宇宙科学研究所, <sup>4</sup>国立極地研究所,  
<sup>5</sup>東京工業大学, <sup>6</sup>産業技術総合研究所

### 1. はじめに

成層圏大気の化学過程や輸送過程が、長期的な視点で、現在進行しつつある地球温暖化とどのようにリンクし、応答するのか、あるいはどのような相互作用があるのかという問題は、現在の大气科学の大きな課題の一つである。この問題を観測から明らかにするためには、数十年以上の期間にわたって、精度の良い観測を継続しなければならない。我々クライオサンプリング実験グループが継続してきた成層圏大気の直接採取は、様々な大气成分の分析を通して、成層圏の輸送過程と化学過程の長期変化の解明に貢献しようとしている。その一つは、成層圏における化学過程にほとんど関与しない微量成分（ $\text{CO}_2$ や $\text{SF}_6$ などの、いわゆるクロック・トレーサー）の濃度を計測することにより、成層圏大気の平均年代を推定し、その長期的な変化を検出することである。この平均年代の長期変化は、成層圏における平均子午面循環の強さの変化に対応するものと考えられている。一方、成層圏大気中の化学過程において中心的な役割を担っている反応性の長寿命種について、その濃度や関与する化学過程の長期変化を明らかにすることも我々の重要課題である。しかし、一般的に、反応性の気体成分については、頻度が小さい気球観測によって、特定の成分濃度や同位体比などの時系列データから長期変化を直接検出することは、それらの時間空間的変動性の大きさからみて、不可能である。個々の成分濃度や同位体比の変動性が大きく、一見して不規則な時間空間変動を示す場合であっても、複数の濃度どうしや、濃度と同位体比の間には、極めて緊密な相関関係が見られる場合がある。そのような相関関係を利用することで、それらが関与する化学過程の長期変化を検出することが可能であ

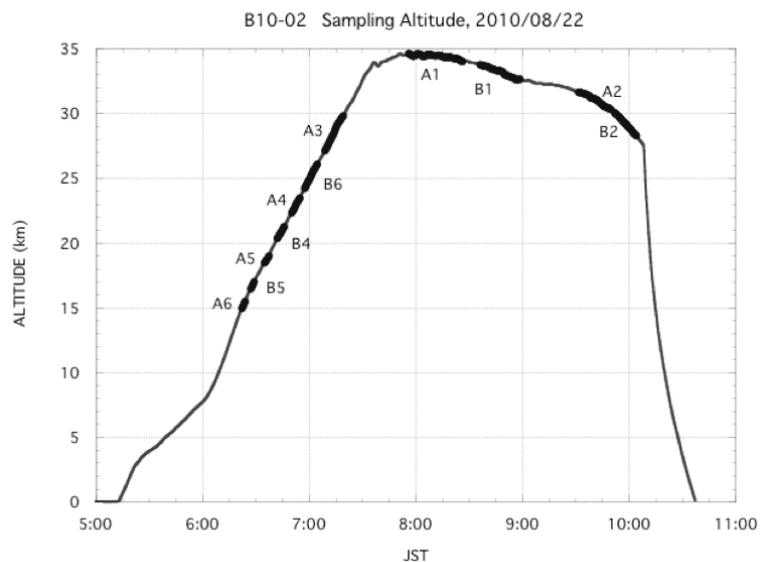


図1. B10-02の高度の時間変化(実線)とサンプリング実施高度(太線)。

る。この方法は、観測頻度が小さいという気球実験のデメリットを補い、同一の空気サンプルから多数の成分を高精度で分析できる本研究の特徴を活かした手法である。本研究では、2010年の夏に実施された気球実験の最新の成果を報告し、特に  $\text{CH}_4$  濃度と  $\text{N}_2\text{O}$  濃度の相関関係に上記の手法を適用し、成層圏における  $\text{CH}_4$  濃度の長期トレンドについて調べた。

## 2. 結果と考察

### 2-1. 2010年のクライオサンプリング実験の成果

2010年第二次気球実験の一環として、大樹航空宇宙実験場において成層圏大気のカリオサンプリング実験 (B10-02) が実施され、8月22日に放球および回収が行われた。カリオサンプラーには、成層圏内の異なる高度においてそれぞれサンプリングが実施できるように、

11本の独立したサンプリング容器が内蔵されている。フライ

トの高度変化とサンプリングを実施した高度を図1に示す。気球の放球後、高度15 km付近から、最初の空気採集を開始し、高度30 km付近までの上昇中に、7本の容器を用いてサンプリングを行った。その後、最高高度の34.6 kmから高度28 km付近までの緩降下中に4本のサンプリングを実施した。予定していた合計11本全てのサンプリングを終えた後、十勝港東南東約25 kmの海上にパラシュートにより降下した。サププリングのシーケンスは、フライトプランに基づいて、バルブの開口量と開口時間をあらかじめ設定し、搭載回路によってコントロールされる。それぞれの容器ごとに、サンプリングにおける高度とその幅、およびサンプリングに要した時間を図2に示す。気圧が低いほど大気の捕集効率は低下するので、どの

高度でも概ね同程度のサンプル量を確保するためには、高高度であるほど長いサンプリング時間を必要とする。最高高度ではサンプリングに1800秒の時間がかかっているが、気球の最高高度到達直後から緩降下の開始に合わせてサンプリングを行

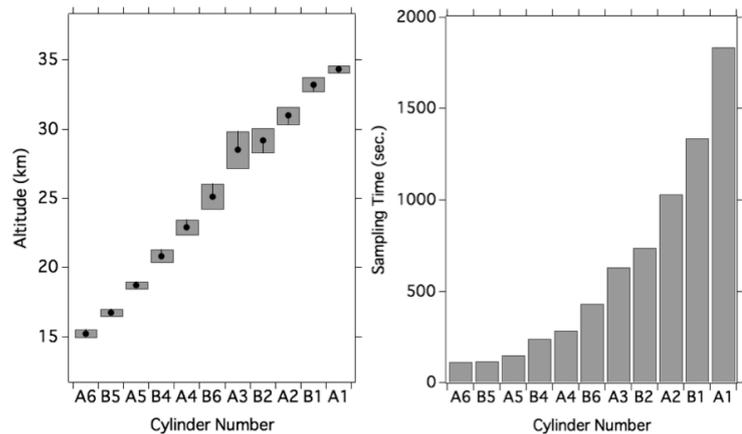


図2. 採取容器ごとの採取高度とその幅 (左図)、および採取時間 (右図)。

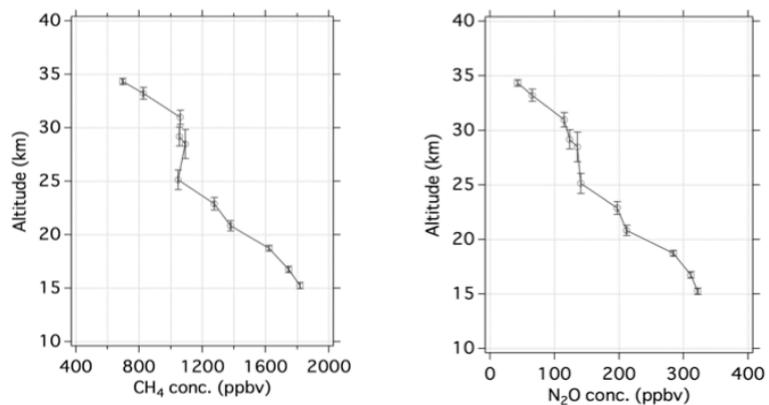


図3. B10-02により観測された  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  濃度の鉛直分布。

うことで、サンプリングの高度幅をできるだけ小さくしている。回収後の実験室での圧力測定の結果、常温における容器の内部圧力は 2.8~3.0MPa であり、すべての高度において、ほぼ設計通りに 20~22LSTP の量の空気がサンプリングされていたことが確認された。さらに、これらのサンプルはクライオ実験に参加している研究機関に配分され、現在も一部の同位体成分について解析が進行中である。各種気体成分濃度の分析は、東北大学において実施された。図 3 に  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  のそれぞれの濃度の鉛直分布を示す。これらの濃度はガスクロマトグラフ法によって決定されており、それぞれのサンプルについて 3 回の分析を繰り返している。個々のサンプルについての繰り返し分析の際の標準偏差は、 $\text{CH}_4$  濃度では 0.3~3.5 ppb、 $\text{N}_2\text{O}$  濃度では 0.02~0.45ppb である。それぞれの濃度の高度に伴う変化の大きさに比べると、極めて高い精度で測定されていることがわかる。これら以外にも、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{H}_2$  の各濃度についても良好な結果が得られているが、ここでは省略する。

## 2-2. $\text{CH}_4$ と $\text{N}_2\text{O}$ の濃度の相関を利用した $\text{CH}_4$ 濃度の長期変動の解析

成層圏メタンは、それ自体の反応消滅を通して成層圏に水蒸気を供給すると共に、塩素ラジカルとの反応によって塩素の消滅源になるという重要な働きを持っている。したがって、将来的に成層圏の化学過程の変化を予測しようとするとき、これまでの  $\text{CH}_4$  濃度の長期的なトレンドがどうであったのかを明らかにすることは重要である。クライオ実験による空気採集は 1985 年に開始され、 $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  の濃度の測定は 1988 年に開始されている。22 年間の長期にわたって、成層圏大気の高精度、かつ同一

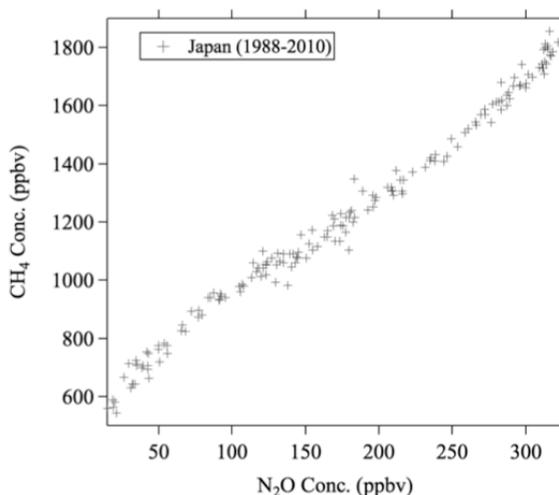


図 4. 日本上空における成層圏大気中の  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2\text{O}$  濃度の関係。

の測定方法、統一された濃度スケールで計測している例にはない。前述の 2010 年の観測結果からもわかるとおり、両者の濃度の変化には明らかな相関が見られている。過去の気球観測の結果も含めて、両濃度の間には、ほぼ直線に近い関係が見られており、個々のデータの直線関係からのずれは極めて小さい (図 4)。対流圏内での  $\text{N}_2\text{O}$  濃度は、過去数十年間にわたって比較的単調に増加していることが知られている。一方、対流圏  $\text{CH}_4$  の長期的な増加傾向は単調ではなく、特に 1999 年から 2008 年頃にかけては、ほぼ増加が止まった状態が継続するなど、特異な変動を示している。対流圏内ではそれぞれのシンク・ソースの影響を受けて、両成分が全く独立に変化しているにもかかわらず、観測された成層圏内の  $\text{N}_2\text{O}$  濃度と  $\text{CH}_4$  濃度との相関関係は、一見してどの年のデータでも一致した傾向を示している。成層圏内での両者の反応過程は異なっているにもかかわらず、ゆっくりと輸送されながら一連の光化学反応過程の結果として、類似した相対的強度の反応消滅を受けること

によって、両濃度の上に強い相関関係が生ずると考えられる。そこで、N<sub>2</sub>O 濃度の代わりに、反応消滅の進行の程度を表す指標として、N<sub>2</sub>O 減少量を導入する。N<sub>2</sub>O 減少量は、熱帯対流圏における N<sub>2</sub>O 濃度と成層圏で観測された N<sub>2</sub>O 濃度との差として定義する。ただし、対流圏における単調な N<sub>2</sub>O 濃度の増加を考慮して、観測し

表 1. N<sub>2</sub>O 減少量の区分ごとの CH<sub>4</sub> 濃度平均増加率。

N <sub>2</sub> O-depression range (ppbv)	2000年までの平均増加率		2000年以降の平均増加率	
	(ppb yr <sup>-1</sup> )	(% yr <sup>-1</sup> )	(ppb yr <sup>-1</sup> )	(% yr <sup>-1</sup> )
0-50	7.4±1.9	0.46	1.1±1.5	0.07
50-100	5.7±1.0	0.41	0.4±1.4	0.03
100-150	2.5±1.7	0.21	---	---
150-200	0.7±1.1	0.06	---	---
200-250	1.3±1.4	0.14	---	---
250-300	2.9±2.6	0.41	---	---
平均		0.28±0.17		0.05±0.02

た空気の平均年代に相当する年月分を遡った時点の熱帯対流圏における N<sub>2</sub>O 濃度を用いた。なお、平均年代は、同じ空気サンプルを用いて分析された CO<sub>2</sub> 濃度から推定された。N<sub>2</sub>O 減少量と CH<sub>4</sub> 濃度との関係を見ると、N<sub>2</sub>O 濃度と CH<sub>4</sub> 濃度との相関関係では見られなかった年による違いが分離されて表され、一定の N<sub>2</sub>O 減少量でみたときに CH<sub>4</sub> 濃度の経年的な変化が検出されることがわかる。この方法により、全体的に 2000 年以前の顕著な CH<sub>4</sub> 濃度増加と、その後の明らかな増加の停滞が見られる。そこで、N<sub>2</sub>O 減少量について、ゼロから 300ppb までの間を 50ppb ごとに 6 つに区分し、その区分に含まれる CH<sub>4</sub> 濃度を観測ごとに平均値を計算した。N<sub>2</sub>O 減少量の区分ごとに得られる平均 CH<sub>4</sub> 濃度の時系列について、最小二乗法により直線をあてはめ、平均の変化率を求めた (表 1)。ただし、この際には、それぞれの N<sub>2</sub>O 減少量の区分に相当する大気平均年代を考慮した。その結果、成層圏下部に相当する N<sub>2</sub>O 減少量 0~100ppb の区分では、2000 年以前と以降における CH<sub>4</sub> 濃度の平均変化率が、それぞれ+0.41~+0.46%/year と、+0.03~+0.07%/year であった。この変化率は、Rohs ら (2006) が報告している 1978 年から 2003 年までの期間の下部成層圏における CH<sub>4</sub> 濃度増加量 207ppb とほぼ一致している。一方、ATMOS/ACE-FTS 観測の結果として報告されている 1985 年と 1994 年の濃度増加率、1.95 と 0.87%/year (Rinsland ら、2009) に比べると、かなり小さい。ただし、Rinsland らの研究では、2000 年以前のデータが 1985 年と 1994 年の 2 点しかないので、成層圏 CH<sub>4</sub> 濃度の長期トレンドを過大評価している可能性がある。

#### 参考文献

- Rohs, S. et al., Long-term changes of methane and hydrogen in the stratosphere in the period 1978–2003 and their impact on the abundance of stratospheric water vapor, *J. Geophys. Res.*, 111, D14315, doi:10.1029/2005JD006877, 2006.
- Rinsland et al., Trend of lower stratospheric methane (CH<sub>4</sub>) from atmospheric chemistry experiment (ACE) and atmospheric trace molecule spectroscopy (ATMOS) measurements, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 110, 1066–1071, doi:10.1016/j.jqsrt.2009.03.024, 2009.