## 大気成分の重力分離を利用した成層圏物質循環の研究

石戸谷重之<sup>1</sup>、菅原敏<sup>2</sup>、森本真司<sup>3</sup>、青木周司<sup>4</sup>、中澤高清<sup>4</sup>、本田秀之<sup>5</sup>、豊田栄<sup>6</sup>、 井筒直樹<sup>5</sup>、飯島一征<sup>5</sup>、山内恭<sup>3</sup>、吉田哲也<sup>5</sup>

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

## <u>はじめに</u>

成層圏における物質の生成・消滅・輸送過程の解明のため、我々のグループでは気球 搭載型クライオジェニックサンプラーを用いて成層圏における大気成分の濃度と同位 体の観測を1985年より継続している(例えば Aoki et al., 2003)。2007年の大気球シ ンポジウムでは、1999年より新たに開始した大気中の酸素( $0_2$ )濃度( $\delta(0_2/N_2)$ )、窒素 ( $N_2$ )および $0_2$ の安定同位体比( $\delta^{15}N$  of  $N_2$ 、 $\delta^{18}0$  of  $0_2$ )の高精度計測から、成層圏に おいて初めて見いだされた大気主要成分の重力分離と $0_2$ 濃度の経年変化(Ishidoya et al., 2006)について報告した。今回は2006および2007年の三陸上空、2010年の大樹 町で採取した試料の分析結果を加え、重力分離に関するその後の研究の進展(Ishidoya et al. 2008a, b)について報告する。

## 大気採取と分析

成層圏大気の $\delta(0_2/N_2)$ 、 $\delta^{15}N$  of  $N_2$ 、および $\delta^{18}0$  of  $0_2$ の分析は、三陸上空において 1999年5月31日、2000年8月28日、2001年5月30日、2002年9月4日、2004年9 月6日、2006年6月3日、2007年6月4日に採取した試料と、大樹町上空において2010 年8月22日に採取した試料、および2003年12月26日と2004年1月5日に南極昭和 基地上空で採取した試料について行った。 $\delta^{15}N$  of  $N_2$ 、および $\delta^{18}0$  of  $0_2$ の分析は、三 陸上空において1995年6月8日に採取した試料、スウェーデン・キルナ上空において 1997年3月18日に採取した試料、昭和基地上空において1998年1月3日に採取した 試料についても行った。サンプラーは大気球によって打ち上げられ、圏界面直上から高 度約35kmまでの11高度の大気採取に成功した。採取した大気試料は研究室に持ち帰り、 質量分析計によって $\delta(0_2/N_2)$ 、 $\delta^{15}N$  of  $N_2$ 、および $\delta^{18}0$  of  $0_2$ を分析した。各成分の表記 式は以下の通りである。

 $\delta(0_2/N_2) = ({}^{16}O{}^{16}O{}^{15}N{}^{14}N)_{sa}/({}^{16}O{}^{16}O{}^{15}N{}^{14}N)_{ref}-1) \times 10^6$ 

 $\delta^{15}N = (({}^{14}N^{15}N/{}^{14}N^{14}N)_{sa}/({}^{14}N^{15}N/{}^{14}N^{14}N)_{ref}-1) \times 10^6,$ 

 $\delta^{18}0 = \left( \left( \frac{18}{0} \frac{16}{0} \right) \frac{16}{160} \right)_{sa} / \left( \frac{18}{0} \frac{16}{0} \right) \frac{16}{160} \frac{16$ 

ここで、sa は測定試料、ref は標準試料を示す。標準試料は 48L 高圧シリンダーに大気 を除湿充填することで作製した。

<u>結果と考察</u>

図1に示した三陸および大樹町上空における $\delta(0_2/N_2)$ 、 $\delta^{15N}$  of  $N_2$ 、および $\delta^{180}$  of  $0_2$ は、いずれも高度増加に伴って値が減少している。この値の減少は、 $\delta^{15N}$ と $\delta^{180}$ の変動量が分子拡散による重力分離と対流による混合を考慮した定常鉛直 1 次元モデルによる計算結果と整合的なこと、またその比が重力分離から予測される1:2にほぼ等しいことから、成層圏における大気成分の重力分離によって引き起こされていることが強く示唆される(Ishidoya et al., 2006)。以下では、重力分離そのものから成層圏大気の輸

送に関する情報を抽出する試みと、重力分離の影響を補正した成層圏  $\delta(O_2/N_2)$ の長期変動について述べる。

まず重力分離の成層圏大気輸送評価への応用について述べる。ここで、<sup>16</sup>0と<sup>18</sup>0の質 量数の差が2であり<sup>14</sup>N と<sup>15</sup>N では1 であることから、 $\delta^{15}$ N と $\delta^{180}$ の両方のデータを用い た重力分離の指標として δ=(δ<sup>15</sup>N+δ<sup>18</sup>0/2)/2 を定義する。三陸および大樹町上空、昭和 基地上空、およびキルナ上空におけるδ値の高度分布を図2に示す。図には成層圏大気 と熱帯対流圏の CO。濃度の観測値を用いて推定した成層圏大気の平均年代(CO, age)も 示した。CO。age は成層圏での物質の輸送に要する時間を表す指標として用いられる。 また 2002 年 3 月に北極域で行われた航空機観測 (aamp02)の結果も併せて示す (Ishidoya et al., 2008b)。図から、δ 値は高度増加に伴い一方的に減少するのに対し、CO, age は高度 20km 以上でほぼ一定の値となることが見て取れる。また高度増加に対するδ値 の減少は極渦内で観測が行われたキルナ上空で最も大きく、次いで昭和基地上空、三陸 および大樹町上空の順に小さくなっている。分子拡散を考慮した2次元大気輸送モデル (SOCRATES) によると、CO<sub>2</sub>age は高度 80km でも7年程度で中部成層圏と大きな差はな く、一方でδ値は高度増加に伴い単調減少することが予測されていることから、CO<sub>2</sub> age が同じである空気塊を比較した場合に、より小さいδ値を持つ空気塊は、重力分離が進 んだより高い高度から輸送されてきたことが示唆される。このことから、δ値は成層圏 の特に鉛直方向の輸送について新たな有用な指標となることが考えられる(Ishidoya et al., 2008a).

図3には三陸および大樹町上空における $\delta$ 値の平均的な高度変化率と高度約20 km以上の CO<sub>2</sub> age の平均値の経年変化を示した。2次元モデルでは高度に対する $\delta$ 値の変化 は緯度によって大きく異なることが計算されており、図3に見られる $\delta$ 値の高度変化率 の年々変化は成層圏における緯度方向の輸送の変動を示している可能性がある。またモ デルでは緯度によって $\delta$ 値と CO<sub>2</sub> age の関係が異なることが示されており、図3に見ら れる両者の負相関に近い関係をより詳細に検討することで、成層圏の Brewer-Dobson 循 環の変動を捉えることが可能になるかもしれない。温室効果気体の増加によって Brewer-Dobson 循環が強化されることが Austin and Li (2006)によるモデルシミュレー ションによって予測されているが、CO<sub>2</sub>および SF<sub>6</sub>濃度による平均年代にはそのような傾 向は見られておらず、メカニズムの理解に不明な点を残している (Engel et al., 2009)。 今後 $\delta$ 値の観測を継続し、また過去のアーカイブ試料の $\delta$ 値の分析も進めることで新た な知見が得られることが期待される。

次に重力分離の影響を補正した成層圏  $\delta(0_2/N_2)$ の長期変動について述べる。図 4 に、 三陸および大樹町上空の成層圏における  $\delta(0_2/N_2)$ の観測値に重畳している重力分離効 果を評価し、補正した結果を示す。この補正は、 $\delta(0_2/N_2)$ の観測値から、測定分子の質 量数の差を考慮して3 x  $\Delta\delta$ を差し引くことで行った。ここで  $\Delta$  は成層圏と対流圏で観 測された  $\delta$  値の差を示す。補正した  $\delta(0_2/N_2)$ は、併せて示した  $CO_2$  濃度とは逆に経年的 な減少を示し、その高度分布の形も  $CO_2$  濃度と逆に下層で値が低い結果となっていた。 このことは対流圏で観測される  $CO_2$  濃度の経年増加と  $\delta(0_2/N_2)$ の経年減少が時間の遅れ を伴って成層圏に伝わっていることを示していると考えられる。また 2007 年の三陸上 空の  $\delta(0_2/N_2)$ の高度分布のばらつきが他と比べて非常に小さくなっているが、この観測 では試料採取容器に取り付けるメタルシールバルブを全て新品に交換して実験を行っ ており、今後同様に実験を行うことで  $\delta(0_2/N_2)$ を高精度で観測できる可能性がある。図 5 に、図 4 の  $\delta(0_2/N_2)$  と  $CO_2$  濃度を高度約 20km 以上において平均した結果を示す。図に は航空機による日本上空対流圏上部の観測値も示した。Ishidoya et al. (2006)では2004 年までの観測結果を用いたため不確定要素も残されていたが、さらに期間が延長された 今回の結果から中部成層圏での $\delta(0_2/N_2)$ の明らかな経年減少が示された。 $\delta(0_2/N_2) \geq CO_2$ 濃度の両者から推定される中部成層圏と対流圏上部の空気塊の年代差は共に約4年と 整合的であった。今後も観測を続けることで、成層圏と対流圏の $\delta(0_2/N_2)$ および $CO_2$ 濃度の経年変化率の違いなどから新たな情報を得ることを目指したい。

## 参考文献

- Aoki, S., T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Morimoto, G. Hashida, T. Yamanouchi, K. Kawamura, and H. Honda, Carbon dioxide variations in the stratosphere over Japan, Scandinavia and Antarctica, *Tellus, 55B*, 178-186, 2003.
- Austin, J. & F. Li, On the relationship between the strength of the Brewer-Dobson circulation and the age of stratospheric air. Geophys. Res. Lett. 33, L17807, 2006.
- Engel, A., T. Mobius, H. Bonisch, U. Schmidt, R. Heinz, I. Levin, E. Atlas, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Sugawara, F. Moore, D. Hurst, J. Elkins, S. Schauffler, A. Andrews and K. Boering, Age of stratospheric air unchanged within un-certainties over the past 30 years, Nature Geoscience, 2, 28-31, doi:10.1038/Ngeo388, 2009.
- Ishidoya, S., S. Sugawara, G. Hashida, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, Vertical profiles of the O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> ratio in the stratosphere over Japan and Antarctica, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L13701, doi:10.1029/2006GL025886, 2006.
- Ishidoya, S., S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki, and T. Nakazawa, Gravitational separation of major atmospheric components of nitrogen and oxygen in the stratosphere, Geophys. Res. Lett., 35, L03811, doi:10.1029/2007GL030456, 2008a.
- Ishidoya, S., S. Morimoto, S. Sugawara, T. Watai, T. Machida, S. Aoki, T. Nakazawa, and T. Yamanouchi, Gravitational separation suggested by  $O_2/N_2$ ,  $\delta^{15}N$  of  $N_2$ ,  $\delta^{18}O$ of  $O_2$ ,  $Ar/N_2$  observed in the lowermost part of the stratosphere at northern middle and high latitudes in the early spring of 2002, Geophys. Res. Lett., 35, L03812, doi:10.1029/2007GL031526, 2008b.



図 1:日本三陸上空および大樹町 上 空 に お い て 観 測 さ れ た  $\delta(0_2/N_2), \delta^{15}N \text{ of } N_2, および \delta^{18}0 \text{ of } 0_2 の高度分布。$ 



図 2:三陸および大樹町上空、南極昭和基地 上空およびスウェーデン・キルナ上空で観測 された  $\delta$  値と CO<sub>2</sub> age (本文参照)の高度分 布。北極域航空機観測 (aamp02)における結 果も併せて示す。



図 3:三陸および大樹町上空で観測された  $\delta$  値の平均的な高度変化率と高度約 20km 以上の  $CO_2$  age の平均値の経年変化。



図 4:三陸および大樹町上空で観 測された重力分離効果を補正した δ(0<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>)とCO<sub>2</sub> 濃度の高度分布。



図 5:三陸および大樹町上空で観測された 重力分離効果を補正した高度約 20km以上 の  $\delta(0_2/N_2)$ と  $CO_2$  濃度の平均値(〇)の 経年変化。日本上空上部対流圏の結果 (\*) も併せて示す。