

白鳳丸船上気球実験により観測された赤道上空 成層圏大気主成分の重力分離

石戸谷重之¹、青木周司²、森本真司³、菅原敏⁴、稲飯洋一²、本田秀之⁵、中澤高清²、
村山昌平¹、植松光夫⁶、古谷浩志⁶、飯嶋一征⁵、荘司泰弘⁵、松坂幸彦⁵、井筒直樹⁵、
吉田哲也⁵

¹産業技術総合研究所、²東北大学、³国立極地研究所

⁴宮城教育大学、⁵JAXA/宇宙科学研究所、⁶東京大学

はじめに

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た成層圏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）。1999年からは同サンプルに関して新たに大気中の酸素（O₂）濃度（ $\delta(O_2/N_2)$ ）、窒素（N₂）およびO₂の安定同位体比（ $\delta^{15}N$ of N₂、 $\delta^{18}O$ of O₂）の高精度計測を開始し、成層圏における大気主要成分の重力分離を発見するとともにその成層圏物質循環研究への応用の可能性について報告を行っている（Ishidoya et al., 2006, 2008a, b; 石戸谷ら, 2011; Ishidoya et al., 2012）。成層圏大気主成分重力分離は我々の研究以外に報告例がないため、その時空間分布はまだほとんど明らかになっていないことから、今後の全球的な観測の展開が強く望まれる。しかしながら従来のクライオジェニックサンプラーは、液体ヘリウムを使用しかつ装置が大型であることから拠点観測基地以外での観測は極めて困難であった。そのため我々のグループでは液体ヘリウムを使用しない小型 J-T サンプラーを新たに開発し（Morimoto et al., 2009）、南極昭和基地や船舶を利用した赤道域における観測への応用を開始している。今回は J-T サンプラーを用いて2012年2月にペルー沖の赤道上空で採取した大気試料に関して、 $\delta^{15}N$ of N₂、 $\delta^{18}O$ of O₂に加えて新たな質量分析計によりアルゴン安定同位体比（ $\delta^{40}Ar$ ）およびアルゴン・窒素比（ $\delta(Ar/N_2)$ ）を分析し、J-T サンプラーを用いた重力分離観測の可能性について検討したので報告する。

大気採取と分析

4機の J-T サンプラーは0° N、105-115° W の赤道域において2012年2月4-8日の期間に白鳳丸船上から大気球によって打ち上げられ、高度20~28 kmまでの4高度の成層圏大気試料を採取した。J-T サンプラーはNeガスによるJ-T効果を利用しサンプラーを液体Ne温度に冷却することで、希薄な成層圏大気を固化することにより大量の大気試料の採取が可能である（Morimoto et al., 2009）。本観測では各サンプラーそれぞれに5~8 Lの試料を採取することに成功した。採取した大気試料は研究室に持ち帰り、質量分析計（Thermo Scientific DELTA V）によって、 $\delta^{15}N$ 、 $\delta^{18}O$ 、 $\delta^{40}Ar$ および $\delta(Ar/N_2)$ を分析した。各成分の表記式は以下の通りである。

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

$$\delta^{18}O = \left(\frac{{}^{18}O^{16}O / {}^{16}O^{16}O}{({}^{18}O^{16}O / {}^{16}O^{16}O)_{ref}} - 1 \right) \times 10^6,$$

$$\delta^{40}Ar = \left(\frac{{}^{40}Ar / {}^{36}Ar}{({}^{40}Ar / {}^{36}Ar)_{ref}} - 1 \right) \times 10^6,$$

$$\delta(Ar/N_2) = \left(\frac{{}^{40}Ar / {}^{14}N^{14}N}{({}^{40}Ar / {}^{14}N^{14}N)_{ref}} - 1 \right) \times 10^6.$$

ここで、saは測定試料、refは標準試料を示す。なお標準試料は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。

結果と考察

図 1 に、J-T サンプラーを用いて観測した赤道上空成層圏の $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{40}\text{Ar}$ および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ の高度分布を示す。図には従来のクライオジェニックサンプラーを用いて得られた日本三陸上空における 2007 年の観測結果も合わせて示した。なお各 δ 値はつくばにおける地上大気の観測値を基準とし、それからの差を表している。赤道上空の $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{40}\text{Ar}$ および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ は、日本上空と同様に対流圏に比べて低い値を示した。日本上空の観測では、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{40}\text{Ar}$ および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ と $\delta^{15}\text{N}$ との関係が重力分離から予測される関係と整合的であり、重力分離が観測値の変動の主要因であることが明らかになっている (Ishidoya et al., 2012)。そこで同様の手法により赤道上空における観測値の変動の原因を調べた結果を図 2 に示す。なお図には原点の値としてつくば地上大気の観測値も併せて示している。 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{40}\text{Ar}$ は対流圏においてはほぼ一定であると考えられ、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ も 20 per meg 程度の小さな季節変化を示すものの (Cassar et al., 2008) 図 12 の縦軸スケール (45 x 12 = 540 per meg) ではその変動はほぼ無視できる。成層圏においては重力分離に加えて日射による J-T サンプラー試料導入口の加熱に起因する熱拡散分離の影響 (Blaine et al., 2006) が観測値に重畳している可能性があるが、本研究で得られた $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{40}\text{Ar}$ および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ と $\delta^{15}\text{N}$ の関係は図 2 に実線で示した純粋な重力分離による質量依存型の変動から予測される関係に近く、破線で示した熱拡散分離から予測されるものとは異なる関係になっていた。このことから、従来のクライオジェニックサンプラーと同様に、小型 J-T サンプラーによっても成層圏大気主成分の重力分離の観測が可能であることが強く示唆される。

図 3 に、本研究で得られた赤道上空の高度 28 km における重力分離 (δ) と、 CO_2 濃度から計算した空気塊の平均年代 (CO_2 age) の高度 24 km 以上の領域における平均値とを示す。図には過去のクライオジェニックサンプラー観測で得られた日本三陸上空、北極キルナ上空および南極昭和基地上空の成層圏における同様の結果も併せて示した。なおここで $\delta = (\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12 + \delta^{15}\text{N} + \delta^{18}\text{O}/2 + \delta^{40}\text{Ar}/4)/4$ は質量数 1 に規格化した重力分離の指標を示す (Ishidoya et al., 2012)。図 3 から重力分離は赤道上空で最小値、極渦内のキルナ上空で最大値をとる緯度分布を示し、その傾向は CO_2 age とほぼ正相関の関係になっていることが初めて明らかになった。また図 2 には 2 次元大気輸送モデル (SOCRATES) によって計算された δ 値と CO_2 age の年平均値の緯度分布も示した。なお本計算では CO_2 age がモデルの初期設定状態による計算値の 1.3 倍になるようモデルの平均子午面循環強度を弱めている。モデルは観測された δ 値と CO_2 age の緯度分布の傾向を概ね再現するが、子午面循環強度の調整を行わない場合には両成分の絶対値は観測に比べて大幅な過小評価となる。3 次元モデルの場合でも CO_2 age の過小評価はこれまで未解決の問題であり、成層圏大気輸送過程の理解の向上のためには CO_2 age のみならず新たな束縛条件としての重力分離のモデルによる再現も今後の重要な課題となると考えられる。

参考文献

- 石戸谷重之、菅原敏、森本真司、青木周司、中澤高清、本田秀之、山内恭、南極資料 54 号、426~437 頁、2011.
- 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.

- Blaine, T. W., R. F. Keeling and W. J. Paplawsky, An improved inlet for precisely measuring the atmospheric Ar/N₂ ratio, *Atmos. Chem. Phys.* 6, 1181-1184, 2006.
- Casser, N., G. A. Mckinley, M. L. Bender, R. Mika and M. Battle, An improved comparison of atmospheric Ar/N₂ time series and paired ocean-atmosphere model predictions, *Journal of Geophys. Res.*, 113, D21122, doi:10.1029/2008JD009817, 2008.
- Ishidoya, S., S. Sugawara, G. Hashida, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, Vertical profiles of the O₂/N₂ 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 O₂/N₂, δ¹⁵N of N₂, δ¹⁸O of O₂, Ar/N₂ 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.
- Ishidoya, S., S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa, H. Honda and S. Murayama, Gravitational separation of trace gases in the stratosphere - A new indicator of atmospheric circulation, submitted to *Nature*, 2012.
- Morimoto, S., T. Yamanouchi, H. Matsueda, H. Honda, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Sugawara, S. Ishidoya, I. Iijima and T. Yoshida, A new compact air sampler and its application in stratospheric greenhouse gas observation at Syowa station, Antarctica, *Journal of Atmospheric and Oceanic and Technology*, 2009.

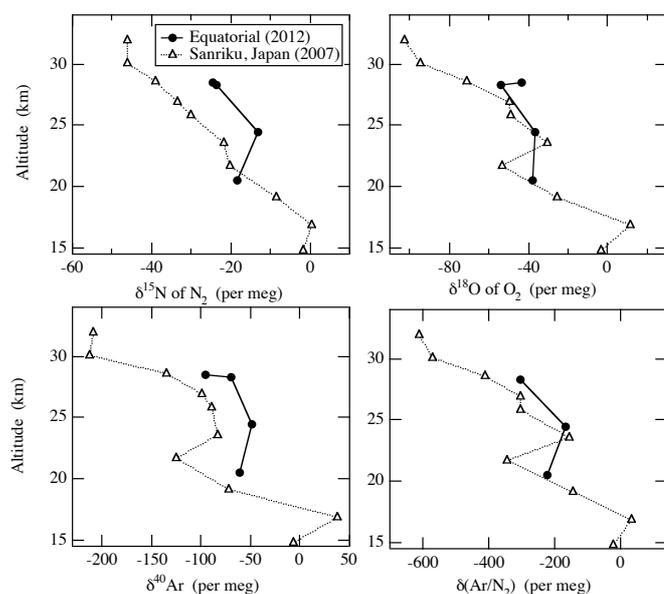


図1: J-T サンプラーを用いて赤道上空で2012年2月に観測された δ¹⁵N、δ¹⁸O、δ⁴⁰Ar および δ(Ar/N₂) の高度分布 (●)。値はつくば地上大気の観測値からの差として示した。従来のクライオジェニックサンプラーにより日本三陸上空で2007年に観測された各成分の高度分布も併せて示す (△)。

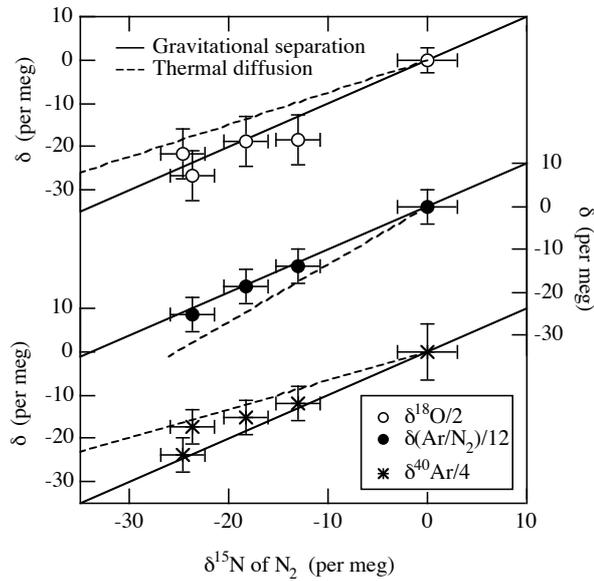


図 2 : 赤道上空成層圏で観測された大気中 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{40}\text{Ar}$ および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ と $\delta^{15}\text{N}$ の関係。原点 (0 per meg) の値として対流圏大気の観測値も併せて示す。実線および破線は重力分離および熱拡散分離から予測される関係を示す。

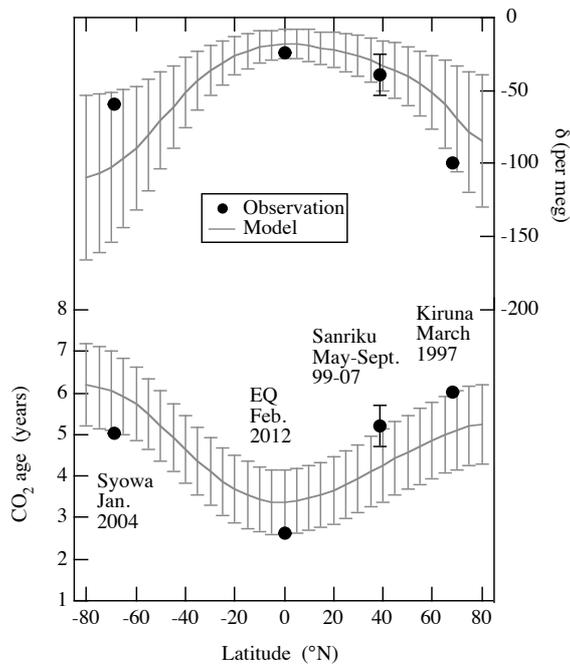


図 3 : 赤道上空、日本三陸上空、北極キルナ上空および南極昭和基地上空の成層圏において観測された高度 28 km での平均的な重力分離 (δ) と高度 24 km 以上の領域での空気塊の平均年代 (CO_2 age) の平均値。2次元大気輸送モデル (SOCRATES) による両成分の計算結果も併せて示す。