

OBSERVATIONS OF THE ATMOSPHERIC CONSTITUENTS
RELATED TO THE STRATOSPHERIC OZONE DEPLETION
AND THE ULTRAVIOLET RADIATION

By

UPPER ATMOSPHERE PHYSICS RESEARCH DIVISION

MRI

気象研究所技術報告

第 6 号

成層圏オゾンの破壊につながる大気成分

および紫外日射の観測

気象研究所高層物理研究部

気 象 研 究 所

METEOROLOGICAL RESEARCH INSTITUTE, JAPAN

NOVEMBER 1982

Meteorological Research Institute

Established in 1946

Director : Dr. S. Matsumoto

Forecast Research Division	Head: Dr. A. Katayama
Typhoon Research Division	Head: Dr. M. Aihara
Physical Meteorology Research Division	Head: Dr. T. Okabayashi
Applied Meteorology Research Division	Head: Mr. N. Murayama
Meteorological Satellite Research Division	Head: Dr. K. Naito
Seismology and Volcanology Research Division	Head: Dr. H. Watanabe
Oceanographical Research Division	Head: Mr. T. Tada
Upper Atmosphere Physical Research Division	Head: Dr. M. Kano
Geochemical Research Division	Head: Dr. M. Ōwada

1-1, Nagamine, Yatabe-Machi, Tsukuba-Gun, Ibaraki-Ken 305, Japan

Technical Reports of the Meteorological Research Institute

Editor-in-chief : Dr. T. Okabayashi

<i>Editors</i> : Ms. T. Akiyama	Mr. J. Shiino	Dr. Y. Sasyo
Dr. S. Arakawa	Mr. I. Akita	Dr. M. Seino
Dr. M. Endo	Dr. M. Hirota	Dr. Y. Sugimura

Managing Editors : K. Nishida, H. Nishimura

Technical Reports of the Meteorological Research Institute

has been issued at irregular intervals by the Meteorological Research Institute since 1978 as a medium for the publication of survey articles, technical reports, data reports and review articles on meteorology, oceanography, seismology and related geosciences, contributed by the members of the MRI.

序

オゾン層は太陽からの有害な紫外線が地上に到達するのを阻止し、また気候の変動に重要な役割を果たしている。近年人間活動の結果成層圏にクロロフルオロメタン、窒素酸化物などの汚染物質が蓄積されつつありこのためオゾン層が破壊されて人間をはじめとする生物界の生存環境がそこなわれ、また気候にも非可逆的な変化の起こることが懸念されている。

成層圏オゾンの破壊につながる物質についての観測は主として米国・ヨーロッパにおいて1970年代中葉以後やっと本格化したものであり、オゾンの破壊に関連する物質すべてが観測されていない。

このような状況のもとで気象研究所では高層物理研究部が中心となって、国立機関公害防止等試験研究費により特別研究「成層圏オゾンの破壊につながる大気圏内のハロゲン化炭化水素等汚染物質の分布と挙動に関する研究」を昭和52年～55年の4ヶ年実施した。

上記の研究の目的は対流圏・成層圏内における各種汚染物質の濃度を測定しその鉛直方向、水平方向の分布と変動を把握し、さらにこれ等資料を用いて汚染物質がオゾン層に与える影響を明らかにすることである。

本報告は上記特別研究とこれに関連をもつ経常研究の一部の研究成果をまとめたものである。

なお、オゾン層の破壊に関連する研究は重要かつ長期の観測が必要なため、昭和57年度から4ヶ年計画で実施される特別研究「中層大気の研究」でこの成果をひきつぎ研究を発展させる計画である。

昭和57年5月

気象研究所 高層物理研究部長 嘉納 宗 靖

目 次

序

概要(和文)	1
アブストラクト(英文)	3

第1章 ガスクロマトグラフ法による対流圏および成層圏微量化学成分の分布の測定

1.1 はじめに	5
1.2 実 験	5
1.2.1 空気の採集	5
1.2.1.1 飛行機による空気の採集	5
1.2.1.2 気球による空気の採集	7
1.2.2 ガスクロマトグラフ測定	17
1.2.3 参照用ガス	19
1.2.4 測定の比較	20
1.3 結果と議論	22
1.3.1 対流圏における CF_2Cl_2 , CFCl_3 および N_2O の分布	22
1.3.2 成層圏における CF_2Cl_2 , CFCl_3 および N_2O の分布	33
1.4 まとめ	39

第2章 赤外分光法による微量成分の観測

2.1 はじめに	43
2.2 装 置	43
2.2.1 赤外分光装置	43
2.2.2 較 正	43
2.3 観 測	51
2.3.1 航空機観測	51
2.3.2 測定スペクトル	56
2.4 合成スペクトル	59
2.4.1 Ray Tracing	59
2.4.2 Line by Line 計算	64

2.5	解析方法	67
2.6	結 果	71
2.7	む す び	72

第3章 エーロゾルの観測

3.1	はじめに	75
3.2	対流圏エーロゾルの測定(航空機による観測)	75
3.2.1	測 定	75
3.2.2	7 km までの高度分布	78
3.2.3	圏界面付近のエーロゾル分布	82
3.3	成層圏エーロゾルの測定(気球観測用小粒子ゾンデ)	87
3.3.1	測定器の概要	87
3.3.2	地上実験	87
3.3.3	飛揚実験	88
3.4	まとめ	91

第4章 成層圏と対流圏の交換過程の観測

4.1	はじめに	93
4.2	測定要素・測定器	93
4.3	観測資料	94
4.4	解 析 例	147

第5章 数値モデル

5.1	モデルの概要	155
5.2	基礎資料	155
5.3	基礎方程式	188
5.4	定常状態	189
5.4.1	方程式	189
5.4.2	境界条件	189
5.4.3	解き方	189
5.4.4	計算フロー	191
5.4.5	計算式	192
5.4.6	結 果	198
5.4.7	我々の観測との比較	209

5.5	日変化	212
5.5.1	計算式	212
5.5.2	結果	215
5.6	オゾンに対するフレオンの影響	223
第6章 紫外日射の測定		
6.1	はじめに	229
6.2	測定	230
6.3	測定結果	231
6.4	むすび	242

成層圏オゾンの破壊につながる大気成分 及び紫外日射の観測

気象研究所高層物理研究部

概 要

人間活動の結果大気中に放出される窒素酸化物やクロロフルオロメタンの増加のため成層圏オゾンの破壊が懸念されている。これ等の物質は赤外放射による気温の変化をもたらすのみならず成層圏オゾン破壊する。成層圏オゾンの変動は地表に到達する太陽紫外線の強度の変動や成層圏内の気温の変動により地表の気候の変動をひき起す可能性がある。

本報告は窒素酸化物、クロロフルオロメタン、紫外線等の大気中の分布を観測し、特に大気オゾンに与える影響を検討したものである。

地表から高度 28km までの CF_2Cl_2 、 CFCl_3 、 N_2O の高度分布の観測を行った。対流圏内の観測には航空機を用い容積 0.3~1.0 l のステンレス製シリンダに空気試料を採取し実験室でガスクロマトグラフにより分析を行った、観測の範囲は東北、関東、関西地方である。成層圏については容積約 5 l のステンレス容器を真空にし気球で上昇させ指定された高度で空気試料を採取し地上に落下後回収しガスクロマトグラフによる分析を行った。観測は関東上空で夏期に実施した。

対流圏内の観測では、1980年12月から1981年3月までの期間の平均体積混合比は、 CF_2Cl_2 が 0.29, ppbv, CFCl_3 が 0.18, ppbv, N_2O が 0.32, ppmv であった。経年変化をみると、1978年10月から1981年3月までの期間に CF_2Cl_2 は 4%, CFCl_3 は 14% 増加し、 N_2O はだいたい一定値であった。

成層圏内の CF_2Cl_2 、 CFCl_3 、 N_2O の高度分布の観測値は、光化学理論によるモデル計算とだいたい一致してそれ等の混合比が高度とともに減少しているという結果が得られた。

成層圏内の CF_2Cl_2 、 CFCl_3 、 HNO_3 、 N_2O 、 CH_4 の鉛直積分量を太陽を光源とする赤外線吸収スペクトルの測定から求めた。それには赤外干渉分光装置を航空機に搭載し日没または日出時の太陽赤外スペクトル測定を利用した。太陽赤外スペクトルの解析には赤外吸収帯をもつ気体成分の高度分布を含むモデル大気に対する ray-tracing 法による line-by-line の計算を行ない測定されたスペクトルと照合し光路中の CF_2Cl_2 、 CFCl_3 等の混合比を決定した。

測定結果の一例をあげると高度 7.6km から測定された CF_2Cl_2 、 CFCl_3 の対流圏上部一成層圏下部の平均体積混合比はそれぞれ 0.280ppbv 及び 0.183ppbv であった。 HNO_3 は高度 18km から 28 km の間で混合比が一定とすると 9.06ppbv が得られた。 N_2O 及び CH_4 の測定には波数それぞれ 2570cm^{-1} 及び 6004cm^{-1} の吸収帯が解析に有効であることが分った。

成層圏の光化学に与えるエアロゾルの効果を明らかにすることと、成層圏—対流圏間の物質の交換過程を明らかにする目的で対流圏から成層圏に到るエアロゾルの分布の観測を行った。

対流圏下部ではミ—粒子とフレオンの分布の相関、対流圏上部—成層圏下部では圏界面との関連について解析を行った。エイトケン粒子の分布を測定するためのゾンデの開発と飛揚実験を行ない高度約 8 km までの粒子濃度の分布が得られた。

対流圏と成層圏の間での物質の交換過程を明らかにするため極前面及びこれにともなうジェット流の近傍でのオゾン、水蒸気、 CF_2Cl_2 、 CFCl_3 等の分布の観測を行った。ジェット流の近傍ではその軸の北側（低気圧側）から南側（高気圧側）へ軸の下を通して成層圏から対流圏へ流入するうすい層（安定層）が存在し、その層内ではオゾン濃度が大きく、水蒸気、 CF_2Cl_2 、 CFCl_3 の濃度は小さい。この層は一般に 5 km くらいの高度までははっきり認められるが、高度 2 km くらいで認められる例があった。

鉛直 1 次元光化学拡散モデルを作りオゾンに関連する微量成分およびオゾンの日変化、高度分布の計算を行った。

モデルの計算は 35°N、春分という条件で行った。現在までに報告されている諸成分の高度分布とモデル計算によるものを比較してみて、両者の間の一致の良いものとしては、 O_3 、 N_2O 、 CH_4 、 NO 、 HNO_3 、 CF_2Cl_2 、 CFCl_3 等であった。両者の一致がやや悪いものとしては、 $\text{O}(^3\text{P})$ 、 NO_2 、 HO 等があり、一致の良くないものは、 HCl 、 ClO 、 Cl 、 CO 等であった。

成層圏オゾンに対する CF_2Cl_2 、 CFCl_3 の影響はオゾン全量に対して、現在 0.6% の減少を与えておりまた影響の最も大きい高度は約 43 km でオゾン濃度の減少は約 6 % であるという計算結果が得られた。

地上に到達する太陽紫外日射の直達成分、天空散乱成分および全天日射を測定するため回折格子と石英プリズムを組合せた複式分光器による日射計を作製し観測を行った。

オゾン全量の観測を参考にして直達日射成分に対する消散係数のオゾン成分とエアロゾル成分を分離して求められることが分った。また紫外域における天空散乱成分の全天日射に対する割合は非常に大きく、紫外日射量の長期監視のためには直達成分の測定だけでは不十分で全天日射の測定が必要であることが分った。

Observation of the Atmospheric Constituents Related
to the Stratospheric Ozone Depletion and the Ultraviolet Radiation

Upper Atmosphere Physics Research Division

Meteorological Research Institute

Abstract

There is a potential threat to the ozone shield for the solar ultraviolet radiation due to anthropogenic emissions of nitrogen oxides and chlorofluoromethanes. Changes in the stratospheric ozone concentration can affect the ultraviolet radiation at the ground and the temperature in the lower stratosphere with corresponding changes in the earth's weather and climate. The purpose of the present study is to make measurements of the relevant species and the ultraviolet radiation to make clear the effects of anthropogenic emissions on the atmosphere.

Air samples were collected over Japan, and analysed for CF_2Cl_2 , CFCl_3 and N_2O by a GC-ECD method. Mean mixing ratios in the troposphere were 0.29₄ ppbv for CF_2Cl_2 , 0.18₄ ppbv for CFCl_3 , and 0.32₈ ppmv for N_2O between December 1980 and March 1981. It was also observed that the mean mixing ratios of CF_2Cl_2 and CFCl_3 increased by 4% and 14% respectively from October 1978 to March 1981. The mixing ratios of CF_2Cl_2 , CFCl_3 and N_2O in the stratosphere decreased with increasing altitude in accordance with the photochemical theory.

The atmospheric absorption spectra of CF_2Cl_2 , CFCl_3 , HNO_3 , N_2O and CH_4 were observed since October 1979, using the air-borne Fourier transform infrared spectrometer. The measurements of black-body radiation were used to obtain an instrumental calibration function and to correct the spectra. The synthetic spectra were obtained from ray-tracing through the model atmosphere and the line-by-line calculations to compare with the observed spectra.

The mean mixing ratios were 0.280 ppbv for CF_2Cl_2 and 0.183 ppbv for CFCl_3 assuming the uniform mixing along the optical path. Assuming the uniform mixing between the altitudes of 18 km and 28 km, the mixing ratio of HNO_3 was estimated to be 9.06 ppbv. The measured transmittances at 2570 cm^{-1} (N_2O) and 6004 cm^{-1} (CH_4) absorption bands were also analysed using the model distributions of N_2O and CH_4 .

Aerosol observations were made to make clear the role of aerosols for the stratospheric

photochemistry and the mass exchange processes between the stratosphere and the troposphere. Some results concerning the relations between the Mie particles and chlorofluoromethanes in the lower troposphere and the relation between Mie particles and the tropopause in the upper troposphere were obtained. The aerosol sonde to observe the vertical distribution of Aitken particles was developed and the preliminary profile was obtained.

The spatial distributions of ozone and other constituents were observed around the tropopause gap and the frontal boundaries. The intrusion of the stratospheric air into the troposphere occurred in a thin layer under the jet axis from the cyclonic side to the anticyclonic side of the jet axis. This layer was associated with the high ozone concentration and the low concentration of CF_2Cl_2 , CFCl_3 and water vapor.

One-dimensional model dealing with the vertical distributions of 34 species in the stratosphere was developed. The mixing ratios of CF_2Cl_2 , CFCl_3 , CH_4 , N_2O and water vapor that we observed were used as the lower boundary values. The estimation shows that the total amount of ozone has been decreased by about 0.6% by CF_2Cl_2 and CFCl_3 , and the maximum decrease (about 6%) of the ozone concentration has occurred at the altitude of 43 km.

The ultraviolet solar radiation in the wavelength region from 300 to 400 nm was measured by using the spectro pyrhelimeter and spectro pyranometer. To get the effects of aerosols, the direct, global and diffuse components were measured separately.

The direct component gives the wavelength distribution of the extinction coefficient of the atmosphere. With the aid of the measurements in the visible region using the spectro pyrhelimeter and the data of total amount of ozone from the Aerological Observatory, the extinction coefficient was separated into ozone and aerosol component, respectively.

Diffuse component showed a large part of the global ultraviolet solar radiation in the region considered, so the measurement of this component is essential in the problem.