第2章 オゾンゾンデ観測*

2.1 はじめに

人間活動の結果大気中に放出されるクロロフルオロメタン(特に CF₂ Cl₂、CFCl₃)は成層圏で 太陽紫外線により分解し、その分解生成物がオゾンと反応し、オゾンを減少することが懸念されて いる。オゾン密度の減少率の最大の高度は約40kmであると推定されている(村松他、1982:佐々 木・村松、1985)。これ等の結果によると減少率は冬季に大きく、また高緯度ほど大きくなってい る。減少率の大きさは1980年時点で高度40kmで最大7%であるが、オゾン全量では約1%と推定 される。現在までにオゾン全量がクロロフルオロメタンのために減少したという確実な観測事実は 示されていないが、これはオゾン全量の測定精度の不十分さもあるが、オゾンの変動の自然的要因 と人為的要因の分離の困難さもある。

クロロフルオロメタンによるオゾンの変化を測定から実証するには、オゾン全量より高度分布の 測定が有利である。これは上述のごとく減少率は高度40kmでは全量よりはるかに大きいことと、全 量観測では成層圏下部一対流圏での気象による大きな変動が関係するからである。

我々は化学的オゾンゾンデによる高度40kmをめざしたオゾン測定を試みた。それには現用のオゾ ンゾンデを改良して、気圧2mbまで確実に測定できることが必要であり、このためには、気球、 気圧計、反応管、ポンプ等が問題となった。本報告ではゾンデに関する基礎的実験と、オゾン高度 分布の測定結果を述べる。

2.2 ゾンデの試験

2.2.1 気圧計

高度 40 kmの気圧は約3 mbである。この気圧をゾンデによって測定するには空盒か沸点が簡便で あるが我々は最も実績のある空盒を利用することとした。空盒気圧計を使用したときの測定誤差は どのくらいになるか検討した。

空盒はルーチン観測で使用されている RS 2 - 80 型を選んだ。まず空盒に対する温度の影響を調べた。温度を-40℃から+20℃まで変化させて温度変化に対する気圧計の変化を実験で求めた。図 2.1(a)-(b)はその結果を示す。温度変化は、

P = aT + b

で近似できる。ただしPは気圧(mb)、Tは温度(\mathbb{C})、aは温度係数、bはT = 0のときの気圧で ある。図中Noは接点の番号である。温度係数aの気圧に対する変化を図2.2に示す。飛揚したとき

* 村松久史、旭 満、広田道夫、牧野行雄、佐々木徹:高層物理研究部

-29-



図 2.1(a) 空盒気圧計の温度変化、 a は温度 係数(mb/℃)、Not接点番号



図 2.1(b) 空盒気圧計の温度変化、 a は温度 係数 (mb/℃)、Naは接点番号



図 2.1(c) 空盒気圧計の温度変化、a は温度 係数(mb/℃)、Noは接点番号



図 2.1(d) 空盒気圧計の温度変化、 a は温度 係数(mb/℃)、No.は接点番号

-30-

のゾンデ内部の温度を何回か測定し、地上での較正時の温度との差を見積り気圧計の温度補正を実施したが、この大きさは3mb付近では0.2~0.4mbであった。



図 2.2 空盒気圧計の温度係数

次に気圧計のばらつきの誤差であるが、同一接点の3回の常温での測定結果を図2.3に示す。3 個の気圧計に対する標準偏差を示すが60mb以下の気圧では0.2mb以下であることが分かる。



図 2.3 空盒気圧計(3個)のくり返し測定のばらつき たて軸は標準偏差を示す。

-31-



図 2.4 空盒気圧計の誤差(実線)とそれに対応する高度の測定誤差(破線)

このばらつきの平均的な値に、較正のときの気圧計の読取誤差 0.1 mb を加えたものを空盒気圧 計の誤差と考えて示したのが図 2.4 である(温度補正はほどこしたとして)。3 mb(約40 kmの高度) では気圧の測定誤差(実線)は約 0.23 mb であり、これに対応する高度の誤差(破線)は約 550 m となる。10mb(高度約31 km)では測定誤差は約 160 m となる。

2.2.2 ポンプ

現用のオゾンゾンデ(RSII-KC79型)及び以前の型(RSII-KC68型)に使用されているポ ンプの流量は次式で表わされる(Kobayashi and Toyama, 1966)

$$V_P = V_S^* (1 - \frac{K}{P})$$
 (2.1)

 $t t V_s^* = f N V_s$

$$K = \varDelta P \cdot \frac{V_D}{V_S^*} = \frac{1}{fN} \frac{V_D}{V_S} \cdot \varDelta P$$

ここで V_P は一定気圧 P (mb) でのポンプの流量、 V_s 、 V_D は図 2.5 に示すように、1ストローク の容積及びデッドスペース容積を示す。Nはストローク数 (r.p.m)、fはロスファクター、APは外 気を注入する管が反応液に浸っている深さ Ah に依存する負荷の気圧(mb)である。(2.1) 式で分 るようにKはバブリングがストップする気圧であり、これは AP、 V_D/V_s 、fにより決まるが個々 のポンプに対して実験で決定されるべき値である。

我々の目標は3mbまでオゾンを測定することでありそのためには少なくとも2mb以下の気圧ま で確実にバブリングが必要である。

-32-



図 2.5 ポンプの模式図 V_s はポンプの1ストロークの容積、 V_D はデッドスペース 容積を、1h は反応液の深さを示す。

バブリングが止まる気圧、Kの基本的性質を調べるため、反応液のほかに飽和蒸気圧の異なるグ リセリン、シリコンオイルを用いてKの値を実験的に決定した結果、(2.2)の実験式で表されるこ とが分った。

$$K = \sqrt{aP_{sol} + b \Delta P} \cdot \sqrt{\frac{V_D}{V_S}}$$
(2.2)

ただしa、bは定数、 P_{sol} は溶液の飽和蒸気圧(mb)で、現用ポンプではa = 1.07(mb)、b = 0.11(mb)でありまた $V_D/V_S = 1.25$ である。

ここで新たに分ったことは、溶液の飽和蒸気圧が関係すること、したがって温度がKに関係する



図 2.6 オゾン反応溶液(破線)と水(実線)の飽和蒸気圧



図 2.7 バブリングの止まる気圧

実線Aはルーチンのポンプ ($V_D/V_S = 1.25$)、実線Bは改良したポンプ ($V_D/V_S = 0.82$) に対して (2.2) 式から求めた曲線 ($\Delta P = 3.0 \text{ mb}$ とした)。 丸、三角形等の記号は60年度に試験した 5 個のポンプの値を示す。

ことである。オゾン反応溶液の飽和蒸気圧を実験で求め図 2.6 に示す(破線)。この飽和蒸気圧を 用いて(2.2)式から計算したKの値の温度依存性を図 2.7 に示す。ただし *AP* は 3.0 mbとした。 曲線A は現用ルーチンで使用しているボンプに対するもので($V_D/V_s = 1.25$)ある。温度は反応 管の値である。冬期の飛揚実験では反応管の温度は 0 ~ - 5 ℃である。したがって現用ルーチンの ンプではK は約 2 mb 前後である。このKの値はできるかぎり小さい方が望ましい。このためには V_D/V_s を小さくするか、 P_{sol} を小さくするかである。 P_{sol} を小さくするためには反応管を低温に すればよいがこれは実行上制御がむずかしく、また - 13.8 ℃では凍結する。*AP* は溶液の深さを浅 くすれば小さくなるが、白金網の電極が露出してはいけないので限度がある。したがって最も妥当なのは V_D/V_s を小さくすることである。今回の実験では V_s を約50%大きくして(流量約 600 cc/min) $V_D/V_s = 0.82$ とした。(流量を大きくすると反応が完全に行われなくなる危険がある)。図 2.7 で曲 線 B がこの改良形ポンプに対するものである。この曲線によると、バブリングが止まる気圧は 5 ℃ で約 2 mb、0 ℃ で 1.7 mb、-5 ℃ で約 1.3 mb である。同図に示した、丸、三角形等の記号は60年 度に試験した 5 個のポンプに対する実験値で、各 2 点の異なる温度でKを求めた。ポンプの個々の 加工精度が異なるためと思われるが、ばらつきが見られる。しかし 1 個を除くと0 ℃以下ではK は 2 mb以下となっている。

-34-

2.2.3 反応管

現用ルーチンの反応管は単管式である(広田、村松、1986)。高度40kmまで気球が上昇するのに 110-120分かかるため長時間のバブリングが必要であることと、流量を50%増したためバブリン グが激しくなり、単管式の反応管では溶液がバブリングのため排気管に直接的に逃げるおそれがあ る。このような理由で反応管に側管を付けた(図2.8 で側管 ST を示す)。



図 2.8 反応管の構造 ST は付加した側管を示す。

側管を付けたため、反応液の減少の大きさ、応答速度、オゾンの反応割合(反応効率)のチェッ クを行った。

まず反応液の減少であるが、飛揚実験と同じ上昇速度で気圧を減少して3mbまでの連続バブリングでは(反応管の温度は3℃~-4℃の範囲)、反応液の減少はほとんど認められなかった(す

なわち1m以下)。

次に応答速度であるが、オゾン濃度を階段状に増加、または減少させたとき、最終平衡値の63% まで変化するに要する時間を測定した。結果を図2.9に示す。オゾンを増加させたときの方が、減 少させたときより数秒大きいが平均的に約30秒である。



ポンプの流量を増したためオゾンが完全に反応するかどうかの実験を行った。試験方法は2本の 反応管を直列に結び、地上気圧で第1の反応管に濃度既知のオゾンを吸入させ、第2の反応管は第 1の反応管の排気を吸入させた。

表 2.1 に結果を示す。

| オゾン混合比 (ppbV) | 50 | 100 | 200 | 250 | 300 | 380 | 498 |
|---------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 反応效率(%) | 100 | 100 | 100 | 98 | 98 | 92 | 91 |

表 2.1 反応管のオゾン反応効率

表 2.1 から分るように 0.3 ppm V以下のオゾン濃度では 98%が反応する。実際の大気中のオゾン 濃度は30mbで約6 ppm Vである。反応管に吸入されるオゾン量は 1,000 mbに換算すると 0.18 ppm Vに相当する。また50mbで6 ppm Vのオゾン濃度を仮定すると(ほとんど観測されない高濃度であ が)、1,000 mbでは 0.3 ppm V に相当する。

したがって、この反応管はオゾンの98%はつかまえていることが分る。

2.2.4 信号切換及び資料整理

オゾンの反応電流、0及び10 μ A標準信号、さらに気温、液温、HR(ハイレハレンス)、LR(ロ ーレハレンス)、気圧信号を切換器により切換え低周波発振器へ接続する。順次切換えられる各要素(電圧変化)に応じて V-f変換を行い低周波パルスを発生し、搬送波発振器を ON、OFF して、100~1,000 Hz 間の変調をかける。

信号の切換順序及び標準信号の変調周波数は次のとおりである。

 P : 気圧信号
 T_s : 液温信号

オゾン量、気温の算出は、特殊ゾンデ観測実施要領(観測資料整理編、1974)に従った。

2.3 飛揚実験及び結果

オゾンゾンデの重量は約1.30 kg であるが、パラシュート、ナイロン糸、注水(注水電池用)を加え ると、ペイロードは約1.90 kgとなる。この測器を40 kmまで上昇させるためには,約5 kgのゴム気球 が必要である。気球の材質としては天然ゴムと人造ゴムがある。この両者の小切片の地上での性能 試験では、人造ゴムが天然ゴムにまさっているが、気球に成形しての飛揚結果では破裂高度に関し て両者の差は、はっきりしなかった(または天然ゴムの方がむしろ破裂高度は高かった)。

純浮力(フリーリフト) 3.50 kgとしたときのゾンデの上昇曲線の例を図 2.10 に示す。この例は 代表的なもので、ペイロード 1.9 kg、純浮力 3.5 kg、気球 5.2 kg である。約 110分間で高度 40 kmま で達していて、平均の上昇速度は約 360 m/min である。5 km区間の上昇速度を表 2.2 に示す。

| 高度区間(km) | 0-5 | 5-10 | 10-15 | 15-20 | 20-25 | 25-30 | 30—35 | 35—40 |
|-------------|-----|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 上昇速度(m/min) | 234 | 308 | 306 | 366 | 393 | 447 | 479 | 543 |

表 2.2 気球の上昇速度



気球 5.2 kg である。

飛揚実験は1983年の2月から1985年12月までの間で主として冬期を中心に実施した。表2.3 に 飛揚実験の日付、気球の到達高度、気圧、時間等を示す。

個々の飛揚実験から得られたオゾン、気温、風等の高度分布を図 2.11(a)、(b)~図 2.27(a)、(b)に示す。

図中(a)の左側はオゾン分圧の高度分布を、右側は温度の高度分布を示す。*T_A*は外気温、*T_s*は反応管の温度を示す。*T_{IN}*はゾンデ内部の温度を示すが、これは外気温測定用のサーミスタを用いた。 この場合には外気温としては09JSTのルーチン観測の気温*T_{AR}*を示してある。(b)図は風速(左側)、風向(右側)を示す。

図 2.28(a)、(b)、(c)には10mb(高度約 31 km)、6 mb(高度約 34.5 km)、4 mb(高度約 37.5 km) におけるオゾン質量混合比、気温、風速の東西成分 V_xと南北成分 V_yを示す。

| E | | 付 | 最高点 | | 点 | ペイロード | 純浮力 | 気 球 | |
|----|-----|------|---------|--------|-------|-------|------|------|---|
| | | | 高 度(km) | 気圧(mb) | 時間(分) | (kg) | (kg) | (kg) | |
| 4 | FEB | 1983 | 37.50 | 4.1 | 122 | 1.68 | 1.50 | 4.23 | |
| 25 | MAR | 1983 | 36.34 | 5.0 | 140 | 1.77 | 1.73 | 4.05 | |
| 3 | DEC | 1983 | 38.54 | 3.5 | 122 | 2.01 | 2.00 | 5.10 | |
| 5 | DEC | 1983 | 42.38 | 2.2 | 135.5 | 1.99 | 2.30 | 5.06 | |
| 10 | JAN | 1984 | 38.55 | 3.3 | 116 | 1.89 | 2.50 | 4.92 | 0 |
| 12 | JAN | 1984 | 40.71 | 2.7 | 116.5 | 1.89 | 2.30 | 4.90 | |
| 2 | FEB | 1984 | 39.06 | 3.2 | 135 | 1.94 | 2.50 | 4.95 | 0 |
| 7 | MAR | 1984 | 39.52 | 3.1 | 104 | 1.95 | 3.55 | 5.04 | |
| 8 | NOV | 1984 | 43.71 | 1.7 | 115 | 1.90 | 3.50 | 5.20 | |
| 5 | DEC | 1984 | 37.48 | 4.2 | 101 | 1.71 | 3.50 | 5.20 | 1 |
| 9 | JAN | 1985 | 38.41 | 3.2 | 96.5 | 1.65 | 3.00 | 5.25 | |
| 6 | FEB | 1985 | 39.43 | 3.0 | 105.5 | 1.94 | 3.00 | 5.20 | |
| 7 | FEB | 1985 | 43.05 | 1.8 | 124 | 1.91 | 3.00 | 5.25 | 0 |
| 18 | OCT | 1985 | 37.40 | 4.1 | 105 | 1.85 | 3.05 | 5.10 | |
| 12 | NOV | 1985 | 40.55 | 2.7 | 112 | 1.88 | 3.12 | 5.14 | |
| 19 | NOV | 1985 | 35.61 | 5.6 | 98 | 1.88 | 3.12 | 5.15 | |
| 2 | DEC | 1985 | 37.88 | 3.8 | 104 | 1.91 | 3.29 | 5.15 | 0 |

表 2.3 気球の到達高度等

○印はゾンデ内部温度測定



図 2.11(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1983年2月4日 T_A:気温、T_s:反応管温度



図 2.12(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1983 年 3 月25日 *T*_A:気温、*T*_s:反応管温度



図 2.13(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1983 年12月 3 日 *T*_A:気温、*T*_s:反応管温度

-40-



図 2.14(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1983 年12月 5 日 *T_A*:気温、*T_s*:反応管温度



図 2.15(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1984年1月10日 *T_{IN}*:ゾンデ内部温度、*T_{AR}*:09 JSTの観測、*T_s*:反応管温度

-41-



図 2.16(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1984年1月12日 *T_A*:気温、*T_S*:反応管温度



図 2.17(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1984年2月2日 T_{IN}: ゾンデ内部温度、T_{AR}: 09 JSTの観測、T_s:反応管温度



図 2.18(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1984年3月7日 *T_A*:気温、*T_s*:反応管温度



図 2.19(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1984 年11月 8 日 T_A:気温、T_S:反応管温度



図 2.20(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1984年12月5日 T_A:気温、T_s:反応管温度



図 2.21(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1985年1月9日 *T_A*:気温、*T_s*:反応管温度



図 2.22(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1985 年 2 月 6 日 *T_A*:気温、*T_s*:反応管温度



図 2.23 (a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1985 年 2 月 7 日 *T*_{IN}: ゾンデ内部温度、*T*_{AR}: 09 JSTの観測、*T*_S:反応管温度



図 2.24(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1985 年10月18日 *T_A*:気温、*T_s*:反応管温度



図 2.25(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、 1985 年11月12日 *T_A*:気温、*T_s*:反応管温度



図 2.26(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1985年11月19日 T_A:気温、T_s:反応管気温



図 2.27(a)、(b) オゾン、気温、反応管温度、風向、風速の高度分布、1985 年12月 2 日 *T_A* : ゾンデ内部温度、*T_{AR}*: 09 JSTの観測、*T_s* : 反応管温度

-47-



図 2.28(a) 10mb面におけるオゾン質量混合比、気温、風 *TEM* (℃) は気温、V_x及び V_y は各々風速の西風及び南風成分を示す。



図 2.28(b) 6 mb面におけるオゾン質量混合比、気温、風 TEM (°C) は気温、 V_X 及び V_Y は各々風速の西風及び南風成分を示す。



図 2. 28(c) 4 mb面におけるオゾン質量混合比、気温、風
 TEM (℃) は気温、Vx 及び Vr は各々風速の西風及び南風成分を示す。

2.4 解析

オゾン混合比と気温、風向、風速等の関係について10mb、6 mb、4 mbの各気圧面での若干の解 析結果を次に示す。

オゾン混合比と気温との関係は、気温が上昇するとオゾン混合比が減少する傾向が認められる。 図 2.29 に 4 mb における関係を示す。ばらつきが大きいが、相関が認められる。 6 mb、10mb でも 同様の関係が弱いながらも認められる。

風速とオゾン混合比の関係については、4mbについて図2.30に示すようにはっきりしない。6 mb、10mbに関しても同様である。

風の東西成分との関係は、4mbで西風が強くなるとオゾン混合比が増加する傾向があるがこれ を図2.31に示す(ただし非常にとび離れた測定点が2点あるがこれは測定に何らかの異常があっ たためであろう)。

一方風の南北成分との関連は、図 2.32 に10mbの例を示す。*V_r*の大きいときの1点を除外すると、 南風成分が増すとオゾン混合比は減少するように見える。この関係は6mbでも認められるが4mb でははっきりしなくなる。

オゾン混合比の経年変化については、測定期間が短いため確定的なことは言えないが、約4年間



図 2.29 オゾン質量混合比と気温との関係、4mb。



図 2.30 オゾン質量混合比と風速との関係、4 mb。

の冬期の値の変動を、比較のため反転観測とともに図 2.33 に示す。図中黒丸は反転観測による値で1月の平均値を示す。白丸はオゾンゾンデによる値で冬期の平均的値と見なせる。矢印は 1982 年のエルチチョンの噴火を示す。

反転観測は天頂方向の太陽の散乱光を利用してオゾンの高度分布を出す方法であるから、成層圏 内のエーロゾルの影響を受ける。火山噴火によるエーロゾルは第6層以上で見掛け上オゾン濃度が

-50-



図 2.31 オゾン質量混合比と風の東西成分 Vx との関係、4 mb。



図 2.32 オゾン質量混合比と風の南北成分 Vyとの関係、10mb。

減少したような効果を与える。

我々のオゾンゾンデの測定値は、反転観測の値と似た経年変化をしている。すなわち1982-1983 年の冬期のオゾン濃度が小さくその後の年に回復しているように見える。1982年以前の資料がな いので確定的なことは言えないが、1982-83年の冬期に極小があった可能性がある。

火山噴火による成層圏エーロゾルのオゾンに対する化学的効果は現在はっきりしない。1982 - - 83 年のオゾンの減少がエーロゾルの直接的効果によるか、大気の循環による効果によるか、今

-51-

後の課題である。



図 2.33 反転観測とオゾンデの結果の比較
 黒丸は反転観測(舘野)、白丸はオゾンゾンデによる。破線は反転観測によるオゾン分圧の1982年以前の 2 standard deviationsの範囲を示す。矢印は1982年のエルチチョンの噴火の時点を示す。

2.5 まとめ

高度40kmまでのオゾンの高度分布を測定するために、オゾンゾンデ、気球の開発・改良の研究を 実施した。気球はゴム気球で5kgのものを使用すればよいことが分った。表 2.3 に示した 17回の 飛揚の平均到達高度は 39.2 ± 2.1 kmでありばらつきがやや大きい。

気圧測定には空盒気圧計を用い、温度補正を行えば、3mbで0.23mb位の誤差で測定でき、高度40kmでの高度測定誤差は約550mとなる。

外気吸入のためのポンプの流量は、気圧が低いところでは、液温と負荷(外気注入管の反応液に 浸っている深さ)により決まることが分った。またバブリングがストップする気圧を小さくするた めにストロークの容積を大きくし、流量を約 600 cc / min とした。

飛揚実験ではオゾン濃度、気温、液温、風向、風速を測定した。また何回かの飛揚では気温のか わりにゾンデ内部の温度を測定し、気圧計の温度補正に使用した。

1983 年 2 月から 1985 年12月までの期間で冬期に観測を実施した。 1982 - 1983 年の冬期に10 mbより上層でオゾン濃度の低下がみられた。これはエルチチョンの噴火の影響かどうか今後の解 析を必要とする。

謝 辞

5 kg ゴム気球の作製にあたっては、トーテックス株式会社に、オゾンゾンデの作製には明星電気 株式会社の方々のご協力をいただき感謝します。

またオゾンゾンデの飛揚に際しては高層気象台観測第2課の方々にご協力いただき、またオゾン 全量観測値は観測第3課から速報値をいただき感謝します。

参考文献

Kobayashi, J. and Y. Toyama, 1966 : On Various Methods of Measuring the Vertical Distribution of Atmospheric Ozone (II).

Pap. Met. Geophys., 17, 97-112,

広田道夫、村松久史、1986: KC 79 型オゾンゾンデ用オゾンセンサーの性能試験、研究時報(投稿中)。

村松久史、牧野行雄、広田道夫、1982:数値モデル、気象研究所技術報告、第6号、155-227。 佐々木徹、村松久史、1985:2次元モデルによる成層圏オゾンの変化の予測、昭和60年度発表会誌、

気象研究所、32-41。

特殊ゾンデ観測実施要領・観測資料整理編、 1974:気象庁観測部 1 — 59 。