

北極航空機観測計画 (AAMP02) と南極昭和基地,  
スウェーデン・キルナおよび日本三陸上空における  
成層圏大気採取実験によって観測された  
大気主要成分の重力分離

石戸谷重之<sup>1,2\*</sup>・菅原 敏<sup>3</sup>・森本真司<sup>4,5</sup>・青木周司<sup>2</sup>・  
中澤高清<sup>2,6</sup>・本田秀之<sup>7</sup>・山内 恭<sup>4,5</sup>

Gravitational separation of major atmospheric components observed  
in the stratosphere over Syowa Station, Antarctica,  
Kiruna, Sweden and Sanriku, Japan.

Shigeyuki Ishidoya<sup>1,2\*</sup>, Satoshi Sugawara<sup>3</sup>, Shinji Morimoto<sup>4,5</sup>, Shuji Aoki<sup>2</sup>,  
Takakiyo Nakazawa<sup>2,6</sup>, Hideyuki Honda<sup>7</sup> and Takashi Yamanouchi<sup>4,5</sup>

(2010 年 1 月 7 日受付; 2010 年 1 月 20 日受理)

**Abstract:** To investigate the gravitational separation of atmospheric components in the stratosphere, air samples collected using an aircraft during the Arctic Airborne Measurement Program 2002 (AAMP02) were analyzed for the O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> ratios ( $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ),  $\delta^{15}\text{N}$  of N<sub>2</sub>,  $\delta^{18}\text{O}$  of O<sub>2</sub> and Ar/N<sub>2</sub> ratio ( $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ ). The relationship between observed stratospheric  $\delta^{15}\text{N}$  of N<sub>2</sub>,  $\delta^{18}\text{O}$  of O<sub>2</sub> and

<sup>1</sup> (現所属: present affiliation): 産業技術総合研究所環境管理技術研究部門, Research Institute for Environmental Management Technology, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), 16-1 Onogawa, Tsukuba 305-8569.

<sup>2</sup> 東北大学大学院理学研究科大気海洋変動観測研究センター, Center for Atmospheric and Oceanic Studies, Graduate School of Science, Tohoku University, 6-3 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8578.

<sup>3</sup> 宮城教育大学, Miyagi University of Education, 149 Aoba, Aramaki, Aobaku, Sendai 980-0845.

<sup>4</sup> 情報・システム研究機構国立極地研究所, National Institute of Polar Research, Research Organization of Information and Systems, Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.

<sup>5</sup> 総合研究大学院大学複合科学研究科極域科学専攻, Department of Polar Science, School of Multidisciplinary Sciences, The Graduate University for Advanced Studies (SOKENDAI), Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.

<sup>6</sup> 海洋研究開発機構, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 3173-25 Showa-machi, Kanazawa-ku, Yokohama, Kanagawa, 236-0001.

<sup>7</sup> 宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所, Japan Aerospace Exploration Agency, Institute of Space and Astronautical Science (ISAS), 3-1-1 Yoshinodai, Chuo-ku, Sagami-hara, Kanagawa, 252-5210.

\* Corresponding author. E-mail: s-ishidoya@aist.go.jp

$\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  over the Svalbard Islands and Barrow showed mass-dependent fractionation of atmospheric components in the stratosphere, which suggested that gravitational separation could be observable in the lowermost stratosphere inside the polar vortex. By examining the rates of change in  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  and  $\delta^{13}\text{C}$  of  $\text{CO}_2$  relative to the  $\text{CO}_2$  concentration, such observed correlations were bound to be mainly attributable to upward propagation of their seasonal cycles produced in the troposphere and height-dependent air age as well as gravitational separation in the stratosphere. Air samples collected over Syowa Station, Antarctica, Kiruna, Sweden and Sanriku, Japan using balloon-borne cryogenic air samplers were analyzed for  $\delta^{15}\text{N}$  of  $\text{N}_2$  and  $\delta^{18}\text{O}$  of  $\text{O}_2$ . Strength of the gravitational separation was a function of latitude, showing the largest separation inside the polar vortex over Kiruna. It is suggested that information on increase of gravitational separation with height is useful in understanding the vertical transport of air masses in the stratosphere.

By comparing the gravitational separations, mean age of air and  $\text{N}_2\text{O}$  concentration at two height intervals with  $\text{N}_2\text{O}$  concentrations  $> 125$  ppb and  $< 45$  ppb, the effect of descending air was found to be more significant over Kiruna than over Syowa Station and Sanriku. The variation in the gravitational separation with height is found to be weaker in the region with  $\text{N}_2\text{O}$  concentrations between 45 and 125 ppb than in other regions, which might suggest that vertical mixing of air occurred in this region.

**要旨:** 成層圏における大気成分の重力分離を調べるため、北極航空機観測計画 (AAMP02) において採取した大気試料の酸素・窒素比 ( $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ )、窒素と酸素の安定同位体比 ( $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ )、およびアルゴン・窒素比 ( $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ ) を分析した。AAMP02 において観測されたスバル諸島およびバロー上空の成層圏の  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  および  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  の関係は質量依存型の同位体分別を示しており、極渦内の成層圏最下部で大気主成分の重力分離が検出可能であることを示唆している。また、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) 濃度およびその安定炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) との関係からは、対流圏での高度分布が地表での季節変化の上方伝搬によって形成され、成層圏での高度分布が鉛直方向の空気塊の年代差に加えて、重力分離の影響を受けて形成されていることが示唆された。南極昭和基地上空、スウェーデン・キルナ上空および日本三陸上空において、大気球を用いたクライオジェニックサンプリングによって採取した、中部成層圏大気試料の  $\delta^{15}\text{N}$  および  $\delta^{18}\text{O}$  の分析から、重力分離は場所によって異なる高度分布を示し、その程度は極渦内で観測が行われたキルナ上空で最も大きいことが明らかとなった。このことから、重力分離の観測は成層圏における空気塊の鉛直輸送に関する情報をもたらす可能性が示唆される。重力分離、空気塊の平均年代および一酸化二窒素 ( $\text{N}_2\text{O}$ ) 濃度の関係から、 $\text{N}_2\text{O} > 125$  ppbv および  $\text{N}_2\text{O} < 45$  ppbv の領域では、空気塊の沈降の影響がキルナ上空で最大、三陸上空で最小であること、 $45 \text{ ppbv} < \text{N}_2\text{O} < 125 \text{ ppbv}$  の領域では空気塊の鉛直混合が生じていることがそれぞれ示唆される。

## 1. はじめに

大気主要成分の重力分離は高度 80 km 以上の高層大気でのみ観測されると考えられており、成層圏高度における観測も試みられているものの、重力分離が捉えられたという結果は示されていない (Bieri *et al.*, 1970)。そこで Ishidoya *et al.* (2006) は、南極昭和基地 (以下、昭和基地) 上空および日本三陸 (以下、三陸) 上空の成層圏において大気球を

用いたクライオジェニックサンプリング法 (Honda *et al.*, 1996) によって採取した大気試料を分析することで、酸素・窒素比 ( $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ), 窒素と酸素の安定同位体比 ( $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ ) の精密な高度分布をはじめて明らかにし、観測された  $\delta^{15}\text{N}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の解析と分子拡散を考慮した 1 次元モデルとの比較により、それらの分布が重力分離の影響を受けていることを強く示唆した。また、重力分離を補正した中部成層圏の  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  が対流圏と同様な経年減少を示すことを明らかにし、成層圏大気成分の濃度・同位体の精密観測には、重力分離の影響を考慮することが必要であることを示した。

また、Ishidoya *et al.* (2008b) は、スウェーデン・キルナ (以下、キルナ) 上空の中部成層圏における  $\delta^{15}\text{N}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の高度分布も報告した。また、三陸および昭和基地上空の結果との比較から、重力分離の程度が緯度によって異なることを示し、重力分離の観測が成層圏大気の鉛直方向の輸送に関する情報をもたらす可能性を示した。さらに Ishidoya *et al.* (2008a) は、北極航空機観測計画 (AAMP02) において採取した大気試料の、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  および  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  の分析から、極渦内においては成層圏最下部においても重力分離が検出可能であることを示している。以上の成果の中から、本報告では特に AAMP02 での下部成層圏の観測結果と、昭和基地上空、キルナおよび三陸上空の中部成層圏の観測結果の比較から得られた新しい知見について紹介する。

## 2. 観測方法

はじめに AAMP02 における観測方法について述べる。観測機は 2002 年 3 月 5 日に名古屋を発ち、ペトロパブロフスク、アンカレッジ、バロー、北極点を経てスバルバル諸島のロングイヤービンに到着し、同じ航路を通過して 3 月 14 日に名古屋へ帰還した (Yamanouchi *et al.*, 2003)。各経由地間の移動の際には成層圏下部での大気採取を行い、スバルバル諸島およびバロー上空では、対流圏下部から成層圏下部までの高度別の大気採取を行った。機体上部に取り付けられた外気取り込み口から 2 台の加圧ポンプを用いて大気を導入し、金属容器 41 本に加圧採取、ガラス容器 24 本に大気圧で採取した。採取装置の詳細は、菅原ほか (2002) に述べられている。採取した大気試料は国内に持ち帰った後、質量分析計 (Finnigan 社製, MAT252 および DeltaPlus-XP) を用いて  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  および  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  を分析した\*。また、 $\text{CO}_2$  の濃度と炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) をそれぞれ非分散型赤外分析計と質量分析計 (Finnigan 社製, MAT delta-S) によって分析した。なお本研究では、 $\text{O}_2/\text{N}_2$  比として質量数 32 の  $\text{O}_2$  と 29 の  $\text{N}_2$  の比を、 $\text{Ar}/\text{N}_2$  比として質量数 40 の Ar と 28 の  $\text{N}_2$  の比を測定している。

本研究で分析した成層圏大気試料は、昭和基地上空、キルナおよび三陸上空において、大気球を用いて成層圏に飛揚させたクライオジェニックサンプラーによって採取された (Honda *et al.*, 1996)。クライオジェニックサンプラーには、あらかじめ内部を高真空状態

にした金属製試料容器が、液体ヘリウムで極低温に冷却された状態で搭載されており、地上からのコマンドにより所定の高度で試料採取バルブを開閉することによって、希薄な成層圏大気を大量に採取することが可能である。本研究で使用した成層圏大気試料は、昭和基地上空において1998年1月3日と2004年1月5日に、キルナ上空において1997年3月18日に、三陸上空において1995年6月8日、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日および2006年6月3日にそれぞれ採取されたものである。採取された大気試料の $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ は、東北大学において質量分析計によって分析した。

$$*\delta(\text{O}_2/\text{N}_2) = ((\text{O}_2/\text{N}_2)_{\text{sa}}/(\text{O}_2/\text{N}_2)_{\text{st}} - 1) \times 10^6, \quad (1)$$

$$\delta^{15}\text{N} = ((^{15}\text{N}^{14}\text{N}/^{14}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{sa}}/(^{15}\text{N}^{14}\text{N}/^{14}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{st}} - 1) \times 10^6, \quad (2)$$

$$\delta^{18}\text{O} = ((^{18}\text{O}^{16}\text{O}/^{16}\text{O}^{16}\text{O})_{\text{sa}}/(^{18}\text{O}^{16}\text{O}/^{16}\text{O}^{16}\text{O})_{\text{st}} - 1) \times 10^6, \quad (3)$$

$$\delta(\text{Ar}/\text{N}_2) = ((\text{Ar}/\text{N}_2)_{\text{sa}}/(\text{Ar}/\text{N}_2)_{\text{st}} - 1) \times 10^6, \quad (4)$$

ここで、sa は測定試料、st は標準試料を示す。

### 3. 結果と考察

#### 3.1. AAMP02 によって観測された北極域下部成層圏大気の重力分離

図1に、2002年3月6-7日のスバルバル諸島上空と、2002年3月12日のバロー上空、およびその周囲の北極海の上空において観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}/2$  および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ の高度分布を示す。同位体比の変動幅は、質量依存型の同位体分別の場合に質量数の差に比例することから、 $\delta^{15}\text{N}$  との比較のため、 $\delta^{18}\text{O}$  および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ をそれぞれ2

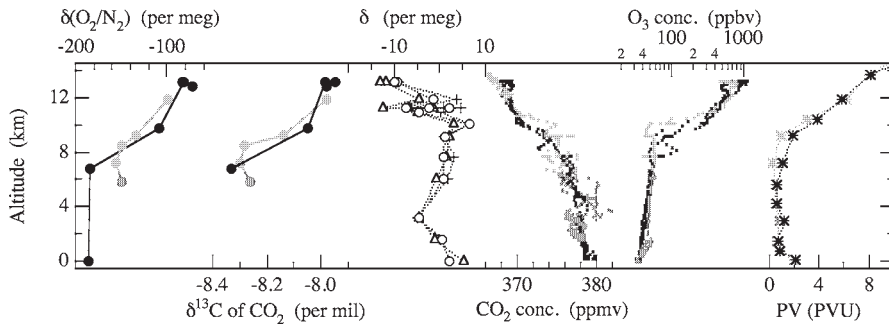


図1 2002年3月6-7日のスバルバル諸島上空(黒)および2002年3月12日のバロー上空(灰)で観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{13}\text{C}$  of  $\text{CO}_2$ 、 $\delta^{15}\text{N}$  of  $\text{N}_2$  (○)、 $\delta^{18}\text{O}/2$  of  $\text{O}_2$  (△)および $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$  (+)の高度分布。CO<sub>2</sub>濃度とO<sub>3</sub>濃度の機上連続観測結果、および渦位(PV)の高度分布も併せて示す。

Fig. 1. Vertical profiles of  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ,  $\delta^{13}\text{C}$  of  $\text{CO}_2$ ,  $\delta^{15}\text{N}$  of  $\text{N}_2$  (open circles),  $\delta^{18}\text{O}/2$  of  $\text{O}_2$  (open triangles) and  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$  (crosses) observed over Svalbard Islands (black) on March 6-7, 2002, and over Barrow on March 12, 2002 (gray). The continuously measured  $\text{CO}_2$  and  $\text{O}_3$  concentrations and the calculated potential vorticity (PV) are also shown.

および 12 で除することによって規格化した。図には同時に観測された  $\text{CO}_2$  濃度と  $\text{O}_3$  濃度の連続観測結果 (森本, 2002; 町田ほか, 2002) と, スバルバル諸島のニーオールスン基地で観測された地表の  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ,  $\delta^{15}\text{N}$  および  $\delta^{18}\text{O}/2$ , さらに NCEP/NCAR 再解析データから計算したスバルバル諸島およびバロー上空における渦位 (PV) のデータも併せて示した。

図 1 から,  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  は地表から下部成層圏にかけて高度と共に値が増加していることが分かる。一方,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}/2$  および  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$  は対流圏においてほぼ一定の値を示すが, 成層圏では高度の上昇に伴う値の減少傾向を示した。観測された  $\delta^{18}\text{O}$  と  $\delta^{15}\text{N}$  の比および  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  と  $\delta^{15}\text{N}$  の比は, それぞれ  $2.1 \pm 0.2$  および  $12.1 \pm 1.5$  per meg per meg $^{-1}$  であり,  $\delta^{15}\text{N}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  および  $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  それぞれの測定対象分子の質量数の差に比例した結果となった。このことは, 北極極渦内の成層圏最下部において大気の主成分が重力分離の影響を受けていることを示唆している。

また,  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の高度分布は  $\text{CO}_2$  濃度の変化と逆相関関係にあることが分かる。この関係を詳細に検討するため, 図 1 の観測値に  $70^\circ\text{N}$  以北の高度 9.6–13.1 km の水平飛行時に採取された成層圏試料の観測値を加え,  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  および  $\delta^{13}\text{C}$  の  $\text{CO}_2$  濃度との関係をプロットした結果を図 2 に示す。対流圏においては,  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\text{CO}_2$  濃度の関係, お

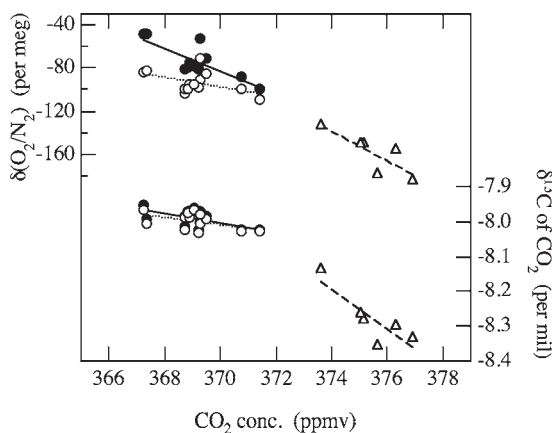


図 2 2002 年 3 月 6 日のスバルバル諸島上空と 2002 年 3 月 12 日のバロー上空, および  $70^\circ\text{N}$  以北の北極海上空において観測された  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\text{CO}_2$  濃度の関係 (上図) と,  $\delta^{13}\text{C}$  of  $\text{CO}_2$  と  $\text{CO}_2$  濃度の関係 (下図)。○と△はそれぞれ成層圏と対流圏における観測値を示し, ●は成層圏の観測値に重力分離の影響による補正を加えた結果を示す。

Fig. 2. Relationships between  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  and  $\text{CO}_2$  concentration (upper part) and between  $\delta^{13}\text{C}$  of  $\text{CO}_2$  and  $\text{CO}_2$  concentration (lower part) observed over Svalbard Islands on March 6, 2002, Barrow on March 12, 2002 and over the Arctic Ocean north of  $70^\circ\text{N}$ . Open circles and open triangles represent the results from the stratosphere and the troposphere, respectively. Closed circles denote the results obtained after correcting for the gravitational separation.



よび  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\text{CO}_2$  濃度の関係はそれぞれ  $-13.8 \pm 4.6 \text{ per meg ppmv}^{-1}$  ( $r = -0.83$ ), および  $-0.057 \pm 0.017 \text{ ‰ ppmv}^{-1}$  ( $r = -0.85$ ) であった。これらの値は、北半球の対流圏における  $\text{CO}_2$  濃度と  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ ,  $\delta^{13}\text{C}$  の季節変化から求められた約  $-10 \text{ per meg ppmv}^{-1}$  (Keeling and Shertz, 1992), および約  $-0.05 \text{ ‰ ppmv}^{-1}$  (Nakazawa *et al.*, 1993) とほぼ同等である。これらのことから、観測された対流圏における  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\text{CO}_2$  濃度の高度分布は、主として両者の地表での季節変化の上方伝搬によって形成されていることが示唆される。

一方で、図 2 に示した成層圏での  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\text{CO}_2$  濃度の関係、および  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\text{CO}_2$  濃度の関係は、それぞれ  $-4.5 \pm 2.4 \text{ per meg ppmv}^{-1}$  ( $r = -0.50$ ),  $-0.011 \pm 0.005 \text{ ‰ ppmv}^{-1}$  ( $r = -0.52$ ) であった。 $\delta^{13}\text{C}$  と  $\text{CO}_2$  濃度との比は対流圏における両者の経年増加率の比から得られる  $-0.019 \text{ ‰ ppmv}^{-1}$  (Nakazawa *et al.*, 1993) に近い。このことから、成層圏での  $\text{CO}_2$  濃度の高度分布は、成層圏大気の鉛直方向の年代差を反映して形成されていると考えられる (Aoki *et al.*, 2003)。しかしながら、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\text{CO}_2$  濃度の比 ( $-4.5 \pm 2.4 \text{ per meg ppmv}^{-1}$ ) は、地表観測の経年変化から得られる  $-9.0 \sim -13.0 \text{ per meg ppm}^{-1}$  (Battle *et al.*, 2000) と比べて小さい値となっており、この原因は大気成分の重力分離にある可能性がある。すなわち、高度上昇に伴う  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の増加は重力分離によって抑制されており、その影響は測定対象分子の質量数の差が 3 ( $^{16}\text{O}^{16}\text{O}$  と  $^{15}\text{N}^{14}\text{N}$ ) である  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  のほうが、同じく 1 ( $^{13}\text{C}$  と  $^{12}\text{C}$ ) である  $\delta^{13}\text{C}$  の 3 倍大きいと考えられる。そこで、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の観測値から  $3 \times \Delta\delta^{15}\text{N}$  と  $1 \times \Delta\delta^{15}\text{N}$  (もしくは  $1.5 \times \Delta\delta^{18}\text{O}$  と  $0.5 \times \Delta\delta^{18}\text{O}$ ) をそれぞれ差し引く事で、両者に重畳している重力分離の影響を除去することを試みた。ここで、 $\Delta$  は成層圏での  $\delta^{15}\text{N}$  ( $\delta^{18}\text{O}$ ) 値と地上での値との差である。なお  $\delta^{15}\text{N}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  は AAMP02 の一部の試料でしか測定していないため、重力分離補正のための値として、Ishidoya *et al.* (2008b) で示した三陸上空、昭和基地およびキルナ上空における  $\text{N}_2\text{O}$  濃度と  $\delta^{15}\text{N}$  の関係を利用することで、 $\text{N}_2\text{O}$  濃度観測値から推定した  $\delta^{15}\text{N}$  値を用いた。この推定値の高度分布は、図 1 の  $\delta^{15}\text{N}$  の実測値の分布とよく一致することが確かめられている。

重力分離の影響を補正した  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  と  $\delta^{13}\text{C}$  の  $\text{CO}_2$  濃度に対する変化率はそれぞれ  $-10.7 \pm 2.6 \text{ per meg ppmv}^{-1}$  ( $r = -0.79$ ), および  $-0.013 \pm 0.005 \text{ ‰ ppmv}^{-1}$  ( $r = -0.59$ ) であり、これらの値は、それぞれの成分の経年変化率の比から得られる値と整合的であった。このことから、北極極渦内の成層圏最下部における  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  の高度分布は、空気塊の鉛直方向の年代差に加えて重力分離の影響を強く受けていることが示唆される。

### 3.2. 昭和基地上空、キルナおよび三陸上空で観測された中部成層圏大気の重力分離

ここで、重力分離の指標として、 $\delta$  を定義する。

$$\delta = (\delta^{15}\text{N} + \delta^{18}\text{O}/2)/2. \quad (1)$$

図 3 に、昭和基地上空、キルナおよび三陸上空における  $\delta$  値の高度分布を示す。図には

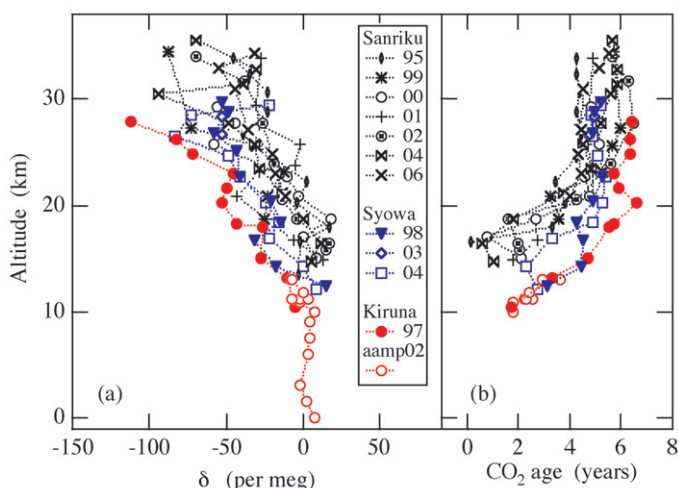


図3 三陸上空、昭和基地およびキルナ上空で観測された (a)  $\delta$  値 (本文参照) と (b)  $\text{CO}_2$  age の高度分布。AAPM02 での観測結果も併せて示す。

Fig. 3. (a) Vertical profiles of  $\delta$  values (see text) observed over Sanriku, Japan, Syowa Station, Antarctica and Kiruna, Sweden. Lowermost stratospheric data observed over the Arctic Ocean during the Arctic Airborne Measurement Program 2002 (AAMP02) are also shown. (b) Same as in (a) but for  $\text{CO}_2$  age.

AAMP02 によるスバル諸島上空での  $\delta$  値の観測結果と、成層圏における  $\text{CO}_2$  濃度観測値と赤道域対流圏での  $\text{CO}_2$  濃度の経年変化から推定した、成層圏試料の空気塊が対流圏よりどれだけ古いかを示す  $\text{CO}_2$  age (Engel *et al.*, 2008) も併せて示した。

図3から分かるとおり、 $\delta$  値は高度の上昇に伴って減少し、同一高度での値は極渦内で観測が行われたキルナおよびスバル諸島上空において最も低く、極渦崩壊後に観測が行われた昭和基地上空の値は、下部成層圏ではキルナ上空とほぼ同等であり、中部成層圏では三陸上空の値とほぼ同程度であった。これらの結果は、対流圏において少なくとも数百年のタイムスケールでは均一な値をとる  $\delta$  値が (Bender *et al.*, 1994)、成層圏では観測場所によって大きく異なることを示している。気象データを解析した結果、観測場所による  $\delta$  値の変化は等温位面の緯度変化では説明できないことから、成層圏における  $\delta$  値の空間変動は、極夜の成層圏極渦内における空気塊の非断熱降下に起因すると考えられる。

$\text{CO}_2$  age は下部成層圏において高度の上昇に伴って増加しているが、高度 20–25 km 以上では、観測時期や場所によらずほぼ一定であった。 $\delta$  値と  $\text{CO}_2$  age の高度分布の違いの原因を調べるために、1次元の定常分子拡散・渦拡散モデルを用いた  $\delta$  値の高度分布と、1次元の時間発展を考慮した渦拡散モデルで  $\text{CO}_2$  age の高度分布を計算した結果を図4(a)に示す。図には、計算に用いた渦拡散係数も併せて示している。図4(a)から、計算された  $\delta$  値は高度上昇に伴い値が単調に減少するが、 $\text{CO}_2$  age は 35 km 高度以上で値がほぼ一定とな

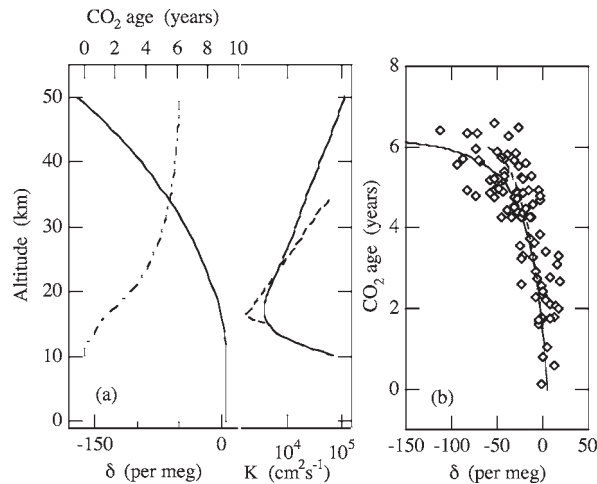


図 4 (a) 1次元モデルにより計算された  $\delta$  値 (実線) と  $\text{CO}_2$  age (1点鎖線) の高度分布. モデル計算に用いた渦拡散係数 ( $K$ ) として, Massie and Hunten (1981) による値 (実線) と三陸上空で観測された  $\delta$  値から見積もった値 (破線) を併せて示した. (b)  $\delta$  値と  $\text{CO}_2$  age の関係. 観測値における結果 ( $\diamond$ ) とモデル計算値における結果 (実線および破線. 実線と破線の違いは (a) に示した渦拡散係数の違いに対応する.) の両方を示す.

Fig. 4. (a) Vertical profiles of model calculated  $\delta$  (solid line) and  $\text{CO}_2$  ages (dashed-dotted line). The vertical eddy-diffusion coefficients ( $K$ ) used for the calculation (solid line) and those estimated from the  $\delta$  values observed over Sanriku (dashed line) are also shown. (b) Relationship between the  $\delta$  values and  $\text{CO}_2$  ages for both observations (rhombic symbols) and calculated values using 1-dimensional models (solid and dashed lines, corresponding to the above-mentioned two kinds of eddy-diffusion coefficients).

ることが分かる. これらの高度分布は観測値とほぼ整合的である. 図 4(b) に,  $\delta$  値と  $\text{CO}_2$  age の関係を示す.  $\delta$  値と  $\text{CO}_2$  age の関係は計算値と観測値とでよく一致し,  $\text{CO}_2$  age が 4 年以上の場合に  $\delta$  値は指数関数的な減少を示した.

$\delta$  値の高度分布は, 主に質量数の異なる  $\text{N}_2(\text{O}_2)$  に対する重力による拡散分離によって形成され, 高度上昇に伴って分離の効果は大きくなる. 一方  $\text{CO}_2$  age の場合, Zhu *et al.* (2000) による 2次元モデルを用いた計算では, 高度 100 km でも空気塊の平均年代は約 7 年であると見積もられており, 本研究で 20–25 km 以上の高度での  $\text{CO}_2$  age が 6 年程度で一定となったことと整合的である. 従って, 重力分離は  $\text{CO}_2$  age と異なり, 高度上昇に伴いシグナルが強度を増すことから, 中部成層圏大気の鉛直輸送に関する有用な情報をもたらす可能性がある.

$\delta$  値の持つ情報をさらに検討するため, 同時に観測された  $\text{N}_2\text{O}$  濃度との関係を調べた.  $\text{N}_2\text{O}$  は, 成層圏において  $\text{O}(^1\text{D})$  との反応によって消滅するために, 高度の上昇に伴って濃度が減少する. 図 5(a) に示すとおり,  $\text{N}_2\text{O}$  濃度と  $\delta$  値および  $\text{CO}_2$  age との関係はある曲線上に乗り,  $\text{N}_2\text{O}$  濃度  $> 125$  ppb (Region I) および  $\text{N}_2\text{O}$  濃度  $< 45$  ppb (Region III) の領域



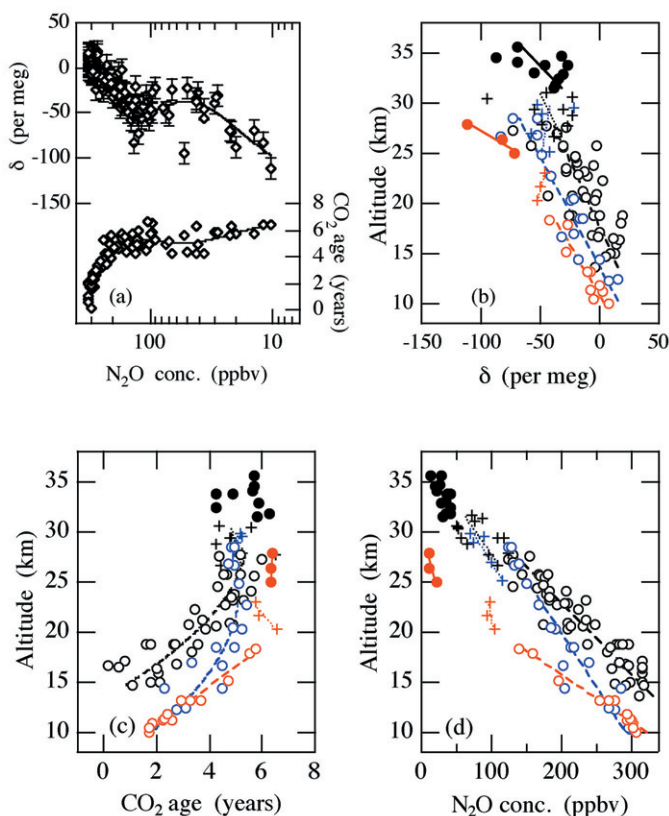


図5 (a) 図3に示した  $\delta$  値および  $\text{CO}_2$  age と  $\text{N}_2\text{O}$  濃度との関係。(b)  $\delta$  値と  $\text{N}_2\text{O}$  濃度との関係に基づいて3つの領域に分類した  $\delta$  値の高度分布。●および○は  $\text{N}_2\text{O}$  濃度が 45 ppb 以下 (Region III) および 125 ppb 以上 (Region I) の試料の  $\delta$  値を示し、+は 45 ppb <  $\text{N}_2\text{O}$  濃度 < 125 ppb (Region II) の試料の  $\delta$  値を示す。黒、青および赤はそれぞれ三陸上空、昭和基地およびキルナ上空での観測結果を示す。(c) (b)に同じ、ただし  $\text{CO}_2$  age における結果。(d) (b)に同じ、ただし  $\text{N}_2\text{O}$  濃度における結果。

Fig. 5. (a) Relationship between  $\delta$  values,  $\text{CO}_2$  ages and  $\text{N}_2\text{O}$  concentration for the data shown in Fig. 1. (b) Stratospheric  $\delta$  values separated into three regions based on the relationship between the  $\delta$  values and  $\text{N}_2\text{O}$  concentration. Filled and open circles represent  $\delta$  values for air samples of  $\text{N}_2\text{O}$  concentration lower than 45 ppb (Region III, see text) and higher than 125 ppb (Region I), respectively. Cross symbols indicate those with  $\text{N}_2\text{O}$  concentrations between 45 and 125 ppb (Region II). Black, blue and red symbols represent data over Sanriku, Syowa Station and Kiruna, respectively. (c) Same as in (b) but for  $\text{CO}_2$  ages. (d) Same as in (b) but for  $\text{N}_2\text{O}$  concentrations.

では  $\text{N}_2\text{O}$  濃度の減少とともに  $\delta$  値が減少し、45 ppb <  $\text{N}_2\text{O}$  濃度 < 125 ppb (Region II) の領域では  $\delta$  値がほぼ一定の値となった。Region I, II および III における  $\delta$  値,  $\text{CO}_2$  age および  $\text{N}_2\text{O}$  濃度の高度分布を図5(b), (c) および (d) に示す。以下、各領域での特徴を述べる。

Region I および III では重力分離が高度と共に単調に増加しており、高度に対する変化率

は Region III のほうが大きい。Region III での  $\text{CO}_2$  age および  $\text{N}_2\text{O}$  濃度は高度に対する変化は小さい。また Region III では同程度の重力分離が検出される高度が、キルナ上空で三陸上空より約 10 km 低いことが分かる。同時に観測した  $\text{SF}_6$  濃度から導出した  $\text{SF}_6$  age が  $\text{CO}_2$  age に比べて約 3 年大きく、 $\text{SF}_6$  が分解される中間圏大気の影響が示唆されることから、キルナ上空で重力分離の進んだより高高度からの空気塊の沈降の影響が大きいことが考えられる。2003 年の極渦内のキルナ上空において、高度 25 km 以上で中間圏高度の空気塊が観測されたという報告 (Engel *et al.*, 2006) も、このことを支持していると考えられる。

Region I では昭和基地上空、キルナおよび三陸上空の  $\delta$  値は、高度の上昇に伴ってほぼ等しい減少率で直線的に減少しており、同高度での絶対値は三陸上空が最も高く、昭和基地上空、キルナ上空の順に低くなっていた。 $\delta$  値の高度分布は、各地点での空気塊の非断熱降下に関係していると考えられることから、この領域において空気塊の沈降の影響がキルナ上空、昭和基地上空、三陸上空の順に小さくなっていることが示唆される。

Region II での  $\delta$  値は、昭和基地上空とキルナ上空において高度の上昇に伴い値が増加しており、Region I および III での結果と傾向が逆になっていた。このことは、昭和基地上空とキルナ上空の Region II に相当する領域で、空気塊の鉛直方向の混合や置換が起きていることを示唆している。この解釈は、キルナ上空における同領域の  $\text{CO}_2$  age が高度の上昇に伴い減少していること、 $\text{N}_2\text{O}$  濃度の高度に対する変化率が、Region I および III での  $\text{N}_2\text{O}$  濃度の観測値を内挿した場合に予想される変化率よりも小さくなっていることと整合的であり、また、高緯度域成層圏において空気塊の平均年代が、高度の上昇に伴い減少するというモデル計算結果 (Jones *et al.*, 2001) とも整合的である。

#### 4. まとめと今後の課題

AAMP02 において、極渦内の北極域成層圏最下部における詳細な  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  を初めて測定した。 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$  の関係から、同領域において大気主成分の重力分離が検出可能であることが示唆された。また、観測された  $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$  および  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\text{CO}_2$  濃度との関係から、対流圏での高度分布は、地表での季節変化の上方伝搬により形成されており、成層圏での高度分布は、空気塊の鉛直方向の年代差に加えて、重力分離効果が影響を及ぼして形成されていると考えられる。

昭和基地、キルナおよび三陸上空において、重力分離の指標として  $\delta^{15}\text{N}$  および  $\delta^{18}\text{O}$  を観測した。観測された重力分離の程度は観測地と時期により異なっており、極渦内のキルナ上空で最も大きい分離を示した。この結果と、1 次元モデル計算によって重力分離が高度とともに強度を増すこと、 $\text{CO}_2$  age は約 35 km 以上の高度で一定値となることが示されていることから、重力分離は  $\text{CO}_2$  age からは得られない、成層圏大気成分の鉛直方向の輸送

に関する情報をもたらす可能性が示唆される。

今後、2次元もしくは3次元の現実的な成層圏大気輸送モデルに重力分離の効果を組み込み、観測値の再現を試みる事ができれば、成層圏大気輸送の理解の向上につながると期待される。

## 謝 辞

成層圏大気のクライオジェニックサンプリングにご協力頂きました、宇宙科学研究開発機構・宇宙科学研究本部・気球工学グループの皆様にご心より感謝致します。また本研究の一部には、文部科学省科学研究費補助金・特定領域研究(11208201)および学術創生研究(2005/17GS0203)と、環境省・地球環境研究総合推進費(A-071)によるご支援を頂きました。

## 文 献

- Aoki, S., Nakazawa, T., Machida, T., Sugawara, S., Morimoto, S., Hashida, G., Yamanouchi, T., Kawamura, K. and Honda, H. (2003): Carbon dioxide variations in the stratosphere over Japan, Scandinavia and Antarctica. *Tellus*, **55B**, 178–186.
- Battle, M., Bender, M.L., Tans, P.P., White, J.W.C., Ellis, J.T., Conway, T. and Francey, R.J. (2000): Global carbon sinks and their variability inferred from atmospheric O<sub>2</sub> and  $\delta^{13}\text{C}$ . *Science*, **287**, 2467–2470.
- Bender, M., Sowers, T. and Labeyrie, L. (1994): The Dole effect and its variations during the last 130,000 years as measured in the Vostok ice core. *Global Biogeochem. Cy.*, **8**, 363–376.
- Bieri, R.H., Koide, M., Martell, E.A. and Scholz, T.G. (1970): Noble gases in the atmosphere between 43 and 63 kilometers. *J. Geophys. Res.*, **75**, 6731–6735.
- Engel, A., Möbius, T., Haase, H.-P., Bönnisch, H., Wetter, T., Schmidt, U., Levin, I., Reddmann, T., Oelhaf, H., Wetzel, G., Grunow, K., Huret, N. and Pirre, M. (2006): Observation of mesospheric air inside the arctic stratospheric polar vortex in early 2003. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 267–282.
- Engel, A., Möbius, T., Bönnisch, H., Schmidt, U., Heinz, R., Levin, I., Atlas, E., Aoki, S., Nakazawa, T., Sugawara, S., Moore, F., Hurst, D., Elkins, J., Schauffler, S., Andrews, A. and Boering, K. (2008): Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years. *Nature Geosci.*, **2**, 28–31, doi:10.1038/ngeo388 (online).
- Honda, H., Aoki, S., Nakazawa, T., Morimoto, S. and Yajima, N. (1996): Cryogenic air sampling system for measurements of the concentrations of stratospheric trace gases and their isotopic ratios over Antarctica. *J. Geomag. Geoelectr.*, **48**, 1145–1155.
- Ishidoya, S., Sugawara, S., Hashida, G., Morimoto, S., Aoki, S., Nakazawa, T. and Yamanouchi, T. (2006): 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.
- Ishidoya, S., Morimoto, S., Sugawara, S., Watai, T., Machida, T., Aoki, S., Nakazawa, T. and Yamanouchi, T. (2008a): Gravitational separation suggested by O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>,  $\delta^{15}\text{N}$  of N<sub>2</sub>,  $\delta^{18}\text{O}$  of O<sub>2</sub>, Ar/N<sub>2</sub> 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.
- Ishidoya, S., Sugawara, S., Morimoto, S., Aoki, S. and Nakazawa, T. (2008b): Gravitational separation of major atmospheric components of nitrogen and oxygen in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, **35**, L03811, doi:10.1029/2007GL030456.
- Jones, D.B.A., Andrews, A.E., Schneider, H.R. and McElroy, M.B. (2001): Constraints on

- meridional transport in the stratosphere imposed by the mean age of air in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, **106** (D10), 10243–10256.
- Keeling, R.F. and Shertz, S.R. (1992): Seasonal and interannual variations in atmospheric oxygen and implications for the global carbon cycle. *Nature*, **358**, 723–727.
- 町田敏暢・Maksyutov, S.・菅原 敏・森本真司 (2002): 北極域対流圏及び下部成層圏における二酸化炭素濃度の航空機観測. 南極資料, **46** (1A), 125–138.
- 森本真司 (2002): 北極圏航空機観測 (AAMP98) におけるオゾン濃度連続観測. 南極資料, **46** (1A), 139–146.
- Nakazawa, T., Morimoto, S., Aoki, S. and Tanaka, M. (1993): Time and space variations of the carbon isotopic ratio of the tropospheric carbon dioxide over Japan. *Tellus*, **45B**, 258–274.
- 菅原 敏・森本真司・青木周司・中澤高 (2002): AAMP98 における温室効果気体の航空機観測. 南極資料, **46** (1A), 147–154.
- Yamanouchi, T., Wada, M., Shiobara, M., Morimoto, S., Asuma, Y., Yamagata, S., Yamazaki, T., Ishidoya, S., Kawahara, T., Yabuki, M., Inomata, Y., Herber, A., Graeser, J., Hara, K., Hirasawa, N., Aoki, S., Sugawara, S., Machida, T., Watai, T. and Treffeisen, R. (2003): Preliminary report of “Arctic Airborne Measurement Program 2002” (AAMP02). *Polar Meteorol. Glaciol.*, **17**, 103–115.
- Zhu, X., Yee, J.-H. and Strobel, D.F. (2000): Middle atmosphere age of air in a globally balanced two-dimensional model. *J. Geophys. Res.*, **105** (D12), 15201–15212.