

A-10 衛星データを利用したオゾン層変動の機構解明に関する研究  
(3) 衛星データ検証のための極成層圏雲・地上観測データの特性評価

独立行政法人 情報通信研究機構

電磁波計測部門 北極域国際共同研究グループ	村山泰啓
奈良女子大学理学部	林田佐智子
東北大学大学院 環境科学研究科	村田功
福岡大学理学部	林政彦

平成13～15年度合計予算額 36,083千円  
(うち、平成15年度予算額 11,520千円)

[要旨] 本研究では、分光観測データから大気微量気体高度分布の導出手法を改良・開発して微量気体分布の変動を明らかにするとともに、衛星・気球・地上観測データを用いて極成層圏雲やその微物理・化学過程の解明に寄与することを目標とする。得られた成果を列挙すると：①ILAS等衛星観測で得られた1996～1997年南北極域微量成分データ・化学モデルから、成層圏オゾン過程で重要な極成層圏雲(PSC)について解析した。PSC組成は1997年1月はSTS(硫酸・硝酸・水の3成分系液滴)、同3月にはNAD、NAT(硝酸2、3水和塩)粒子である可能性が高いこと、PSC上の不均一化学反応によるオゾン破壊率は他の解析結果より過小評価であることなどが明らかになった。②アラスカでの地上FTIR赤外分光器(65N)で2000～2003年のオゾン・硝酸の観測に成功した。オゾンは他の観測値と良く一致した。硝酸プロファイルの誤差は約20%以下であり、観測された約50%の季節変動が議論できるデータを得た。③ FTIR観測における高度分布解析手法の高精度化・装置関数(ILS)の評価と補正効果について検討を行った。高度分布導出にはガスセル測定結果によるILS補正が重要であること、ILS経年変化は無視できないこと、PhaseよりModulationの補正効果が大きいこと、光軸ずれは程度によってILS補正しきれないこと等がわかった。④ 2003～2004年のニーオルソン(79N、12E)での気球による直接観測・地上ライダー観測を通じて、高度26km以下の半径0.056mm以上のエアロゾルの代表的な粒径分布が詳細に測定された。PSCのない条件下でエアロゾルによる後方散乱(532nm)半径0.056～0.1 $\mu$ m粒子の寄与が数10%～100%と大きく、<1 $\mu$ m帯の光学手法でエアロゾル特性を求めるにはこの粒径領域の詳細な知見が重要である。⑤ ILAS-II検証オゾンゾンデキャンペーン観測(2002年8月、アラスカ)を行い、上部対流圏・下部成層圏のオゾン変動を捉えた。特に成層圏重力波によるオゾン変動の位相構造の観測が初めて捉えられた。重力波による水平移流のオゾン変動への寄与は、鉛直移流と同等かそれ以上であることが示された。

[キーワード] オゾン層、人工衛星、地上観測、赤外分光、気球観測

### 1. はじめに

国際的なオゾン層保護の動きの中で、わが国のオゾン層観測衛星センサー等によって得られたデータを用いた極域オゾン層変動の物理・化学的メカニズムの解明は、将来、地球環境の変動・変化へ対処していくためにも、人類社会共通の課題として緊急で重要な課題といえる。本推進費課

題中、通信総合研究所が担当する「サブテーマ3 衛星データ検証のための極成層圏雲・地上観測データの特性評価」では、分光観測データから大気中の微量気体の高度分布を得るための解析手法を開発して微量気体分布の変動を明らかにするとともに、衛星・気球・地上観測データを用いて極成層圏雲やその微物理過程を明らかにすることを目標とする。

## 2. ILASで観測された消散係数および硝酸データから求めた極成層圏雲組成推定の研究

### (1) 目的

極域における成層圏オゾン破壊は、不活性化されていた塩素化学種から不均一反応を通して活性塩素が放出されることによって引き起こされる。この塩素活性を左右する不均一反応は、極成層圏雲(Polar Stratospheric Cloud : PSC)の表面で引き起こされる。このため、成層圏オゾン破壊量を推定するにはPSCの発生頻度や表面積を観測から推定することが非常に重要である。さらにオゾン破壊量の将来予測のためには、気温変化や水蒸気量の変動に対応してPSCの発生量の変化を推定する必要があり、PSCの組成・生成過程を理解することが不可欠である。しかしながらPSCの観測データは限られており、理論的にもまだ未解明な部分が多く残されている。本研究課題ではPSCの化学組成をILASの観測データから推定することを目的としている。これまで奈良女子大の研究グループでは、ILASの消散係数データを解析し、PSC(極成層圏雲)の出現状況・頻度・発生場所などの解析を行ってきた[Hayashida et al., 2000]<sup>1)</sup>。本研究課題ではさらに、同時に観測された硝酸のデータからPSC組成の判定をおこなった[Saitoh et al., 2002]<sup>2)</sup>。またPSC上で進行した塩素活性反応によって破壊されたオゾン量を、化学反応モデルを用いて推定した[Kagawa and Hayashida, 2003]<sup>3)</sup>。さらに最終年度には、クロリンナイトレイト( $\text{ClONO}_2$ )がILASの新しいアルゴリズムバージョン(version 6)で新たに導出されたことを受け、PSCの発生と連動してクロリンナイトレイトの挙動を解析した。クロリンナイトレイトは塩素化学種のうち不活性塩素の代表的な化学種であり、塩素の活性化・不活性化を調べる上で重要である。

### (2) 極成層圏雲組成推定

#### ① 極成層圏雲(PSC)の判定方法

極成層圏雲(PSC)の判定は基本的にはILAS可視消散係数データから特異的に高い値を検出することで行われる。本研究ではPSC判別は[Poole and Pitts, 1994]<sup>4)</sup>、[Fromm et al., 1997]<sup>5)</sup>と同様の手法で行った。極渦内で気温200 K以上の領域の消散係数を平均してバックグラウンドレベルと定義し、平均値と標準偏差 $\sigma$ を指標とした消散係数の分布を調べ、平均値+5 $\sigma$ を閾値と設定し、これを越えてかつ相対エラーが100%未満のものをPSCと判定した<sup>1)</sup>。南極については高温域のデータが乏しいため、5、6月二ヶ月間のデータすべてを対象として高度ごとに閾値を設定し、PSCイベントの判定を行った。その結果、北極では65プロファイル、242イベントが、南極では85プロファイル、360イベントがそれぞれPSCsと判定された<sup>1,2)</sup>。

さらに、ILASデータと理論から予想される値を比較することによって、観測されたPSCsの化学組成を推定した。ILASでは消散係数だけでなく硝酸、水蒸気の観測が行われている。このように消散係数と微量気体成分データを組み合わせてPSCの組成を推定する方法はSanteeによって初めて行われたが、複数の異なるセンサーのデータの組み合わせでは観測対象となる空気塊が完全には一致しておらず、技術的な困難が伴う。ILASでは同一のセンサーで消散係数と硝酸、水蒸気

が観測されており、同一の空気塊を対象に複数のデータが得られた貴重なデータである。

まず観測データの消散係数および硝酸・水蒸気高度分布値を元に、熱力学的平衡を仮定して候補となる PSC の組成について理論値を計算した。この理論値と実測値との比較から、最も実測に近い理論値の組成を持った PSC と判定した。ここでは、PSC の組成として、過冷却三成分水溶液滴 STS (Supercooled Ternary Solution)、二水和硝酸 NAD (Nitric Acid Dihydrate)、三水和硝酸 NAT (Nitric Acid Trihydrate) を PSC の組成の候補として考慮した。熱力学理論に使用する硫酸全量などの条件は出来る限り ILAS の実測値に基づいて現実的な値を採用した。詳細は[Hayashida et al., 2000]<sup>1)</sup>を参照されたい。STS については Carslaw の理論式[Carslaw et al., 1995]<sup>6)</sup>から計算した。NAD・NAT 粒子については、[Worsnop et al., 1993]<sup>7)</sup> および[Hanson and Mauersberger, 1998]<sup>8)</sup>をもとに計算した。粒径分布は OPC データから得られた bimodal 粒径分布を仮定した。

## ② 1997 年 1 月から 3 月の北極域 PSC 観測結果

ILAS によって、1997 年 1 月に 90°W-90°E の広い領域で北極域の PSCs が観測された。2 月中旬から 3 月中旬は、経度 0°より東側、特に 3 月では、120°E 付近で PSC が観測された。

図 2-1 は、1 月中旬の高度 22km での ILAS の消散係数と UKMO の気温、ILAS で観測された硝酸と UKMO の気温である。図 2-1a 中、太実線・細実線はそれぞれ PSC 粒子・バックグラウンドに対応する理論値である。消散係数が小さい(非 PSCs を示唆)データはバックグラウンドの状態における硫酸の熱力学平衡値によく対応する。図中、黒丸で示した PSC イベント値は STS の理論曲線に最も近い傾向があり、1 月中旬のこの高度では PSC が STS であったことが強く示唆される。図 2-2 は 3 月初旬高度 17, 18km での消散係数データ、硝酸データの散布図である。3 月初旬には、消散係数値、硝酸値ともに NAD/NAT 粒子の存在を示唆されている。理論値との比較解析から、明確な特徴をもったデータの多くを NAD/NAT に分類できた。

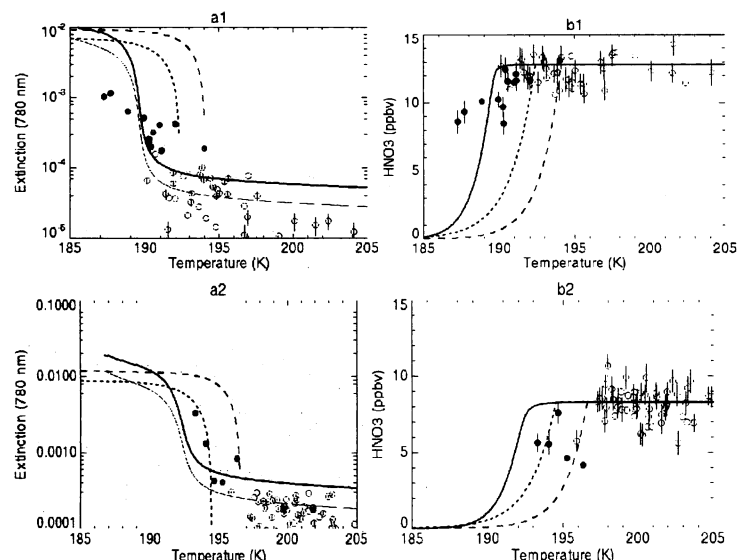


図2-1 1月中旬高度22kmにおけるILAS消散係数とUKMO気温 (a)、ILAS硝酸とUKMO気温 (b)。黒丸はPSCsイベント。STS(実線)、NAD(点線)、NAT(破線)の理論曲線もあわせて示す。

図2-2 3月初旬高度18kmにおけるILAS消散係数とUKMO気温 (a)、ILAS硝酸とUKMO気温 (b)。

1997 年 1 月から 3 月のすべての PSC イベントの観測地点から後方流跡線を計算し、粒子が経てきた気温履歴を調べたところ、1 月の STS と考えられる PSC イベントの多くについては、観測直前以外に氷点付近の低温を経験しておらず、液相粒子が形成されやすい状況であったこと、3 月の観測については NAT 飽和温度( $T_{NAT}$ )以下を数日間以上連続して経験しており、homogeneous

nucleation によって NAD/NAT が形成されたと考えられることなどが分かった。この研究成果は Saitoh et al., 2002<sup>2)</sup>として公表され、WMO/UNEP によるオゾンアセスメント<sup>9)</sup>にもレビューされた。

### ③ 1997 年 6 月の南極域 PSC 観測結果

前述のように ILAS データと様々な組成の PSC 理論値とを比較することで、観測された PSCs の化学組成を推定することが可能となる。ILAS は観測時期が 1996 年 10 月から 1997 年 6 月末までと限られたために南極の冬季には 1 年を通しての観測が出来なかった。しかし、1997 年には 5 月から 6 月にかけて多くの PSC イベントを観測することができた。これらの南極のデータは上記北極のデータに比べ、典型的なイベントとしての分類が困難であったので、PSCs の組成分類を客観的に行うための指標  $\Delta$  を導入して解析を行った。

$$STS, NAD, NAT ;$$

$$\Delta_{STS, NAD, or NAT} = \sqrt{\frac{(Ext^{ILAS} - Ext^{theory})^2}{Err_{total}^2 + Err_{conversion}^2} + \frac{(HNO_3^{ILAS} - HNO_3^{theory})^2}{Err_{total}^2}}$$

$$ice;$$

$$\Delta_{ice} = \sqrt{\frac{(Ext^{ILAS} - Ext^{theory})^2}{Err_{total}^2 + Err_{conversion}^2} + \frac{(H_2O^{ILAS} - H_2O^{theory})^2}{Err_{total}^2}}$$

ここで、 $Ext^{ILAS}$ 、 $HNO_3^{ILAS}$ 、 $H_2O^{ILAS}$  はそれぞれ ILAS のエアゾール消散係数、硝酸、水蒸気であり、 $Ext^{theory}$ 、 $HNO_3^{theory}$ 、 $H_2O^{theory}$  はそれぞれの組成を仮定した時の理論的予測に基づく消散係数、硝酸、水蒸気である。 $Err^{total}$  は ILAS の観測誤差であり、 $Err^{conversion}$  は理論体積から理論消散係数に変換する際のエラー幅である。すべての PSC イベントについてそれぞれの組成の  $\Delta$  を計算し、 $\Delta$  の値が最も小さいものが最も可能性が高い組成であるとみなした。

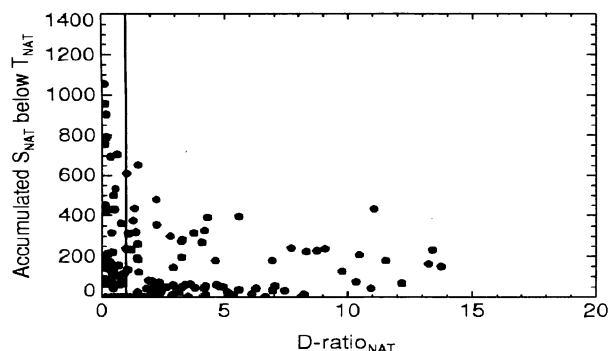


図2-3 南極6月中旬に観測されたすべてのPSC イベントについて、観測時から遡って気温が  $T_{NAT}$  以下であった期間の NAT の過飽和度( $S_{NAT}$ )の積算値と  $\Delta$ -ratio $_{NAT}$  の散布図 ( $\Delta$ -ratio $_{NAT} = \Delta_{NAT} / \Delta_{STS}$ )

南極の 1997 年 6 月上旬に観測された PSC のほとんどは STS に分類されたが、中旬以降は NAD/NAT に分類される例が多くなった。図 2-3 は観測時から遡って気温が  $T_{NAT}$  以下であった期間の NAT の過飽和度( $S_{NAT}$ )の積算値と  $\Delta$ -ratio $_{NAT}$  の散布図である ( $\Delta$ -ratio とは  $\Delta_{NAT}$  を  $\Delta_{STS}$  で割った値である;  $\Delta$ -ratio $_{NAT} = \Delta_{NAT} / \Delta_{STS}$ )。過飽和度の積算値が高いところでは  $\Delta$ -ratio $_{NAT}$  が 1 より小さい、つまり NAD/NAT であると分類されており、これは均一核生成 (homogeneous freezing) で形成された可能性があることを示唆している。

核生成理論に関しては Tabazadeh らによって過飽和度から activation energy( $G_{act}$ )を推定し、homogeneous nucleation rate を計算する研究がなされている (Tabazadeh et al.<sup>10)</sup>, Knopf et al.<sup>11)</sup>などを参照)。これらの理論を元に粒子体積、粒子個数を計算したが、見積もられた半径はこれまで観測された PSCs の粒子半径[Fahey et al., 2001]<sup>12)</sup>より数桁大きいものとなった。このことは、現在

知られている PSCs の形成理論のみでは観測を十分に説明できないことを示している。

### (3) PSC 上での不均一反応がもたらす塩素活性化とオゾンの化学的破壊率の推定

#### ① Chemical Species Mapping on Trajectories を用いたオゾンの化学的破壊量推定

成層圏大気微量成分のメカニズムを解明する上で、化学種の空間分布を地球規模で把握する事は重要である。しかし現実には、観測が行われている期間や場所が限られているため、全球分布を知る事は困難である。このため、化学種分布の総観図を作成する様々な手法が提案されてきた (e.g., Schoeberl, et al., 1989<sup>13</sup>)。その中で Morris, et al. (1995; 2000)<sup>14,15</sup> は長寿命化学種と流跡線解析を用いた 'Trajectory mapping (TM)' を提案し、この手法が地球規模の長寿命化学種分布作成に効果的であることを報告している。奈良女子大の研究グループでは TM の手法をもとに、流跡線解析と化学ボックスモデルを組み合わせ、短寿命化学種を含む多くの大気微量成分の同化マップ作成手法 'Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT)' を提案し、これをもとに 1997 年冬/春季北極域の化学的オゾン破壊率を推定した。Kagawa and Hayashida (2003)<sup>3</sup>, 河瀬他, 2004<sup>16</sup>。

本研究で使用したモデルには、極域成層圏で重要となる 59 の化学種、101 の気相反応、47 の光解離反応、7 つの不均一反応が含まれている (詳細は Kagawa and Hayashida, 2003<sup>3</sup> を参照)。化学反応係数は JPL1997 (Demore et al., 1997)<sup>17</sup>, JPL2000 (Sander et al., 2000)<sup>18</sup> を基本に新たな実験結果を含めている。極域の化学過程は光環境に敏感であるので、太陽天頂角の変化に応じた紫外線の計算を詳細に行っている。また、気温変化に応じ熱力学平衡を仮定した極成層圏雲 (PSCs) 成長を含む。三成分過冷却水滴 (STS) については Carslaw et al. (1995)<sup>6</sup> を、硝酸三水和物 (NAT) については Hanson and Mauersberger (1988)<sup>8</sup> に基づいて計算を行っている。不均一反応速度の決定に必要な粒子表面積の計算は、光学的粒子計数装置で観測された粒径分布 (Deshler et al., 2000)<sup>19</sup> を元に、熱力学平衡から決定される体積を表面積に換算している。7 つの不均一反応についての reaction probabilities は硫酸エアロゾルについては Hanson (1998)<sup>20</sup>, NAT については DeMore et al. (1997)<sup>17</sup> を仮定して計算した。STS についての reaction probabilities は硫酸エアロゾルと同じとしている。

化学種のマッピングは、分布を再現したい日を基点に、7 日前、6 日前、と順次その日までの間に 1 日毎に計算を開始したすべての流跡線を用い、その期間に観測されている衛星観測値を始点として計算を行った。ILAS を初期値として計算をおこなった 1997 年冬春季の計算結果を MLS/UARS やオゾンゾンデと比較し、結果の妥当性を確認した (河瀬他, 2004)<sup>16</sup>。

図 2-4 には CSMT 手法を用いて推定したオゾンの化学破壊率の時間発展を示した。上部に示されているのは上述の PSC 解析によるタイプ識別結果で、STS は赤で、NAD/NAT は青で示してある。数字はイベント数である。モデルでは PSC は簡略化された形でしか入っていないが、PSC のタイプをすべて STS と仮定した場合 (a) とすべて NAT と仮定した場合 (c) の比較を行った。不均一反応の気温依存性は PSC の組成によって若干の差がでるが本質的に大きく異なるものではない。それ以上に PSC のタイプによって粒子発生の温度が異なるために、不均一反応の進行が大きく左右される。ここでは ECMWF の気温データを用いたが、局所的にはより低温になることが知られており、平均的にも 1.4 度程度のバイアスがあることが知られている。これを調べるために気温に 1.4 度のバイアスがあることを仮定して計算したのが (b) である。すべての場合において 2 月後半にオゾン破壊率が最大になることが示された。また、1 月から 3 月の積算オゾンの化学的破壊



量は  $34 \pm 12$  ppbv/day の範囲であることを導いた(PSC を STS と仮定した場合。図参照)。これらは他のモデルによる研究成果と比較してほぼ同様であるが、観測から導出された値をやや下回っていることが示された。このようなモデルによる推定が観測を過小評価していることは他の研究グループからの報告でも指摘されており、今後解明しなければならぬ問題として注目されている。

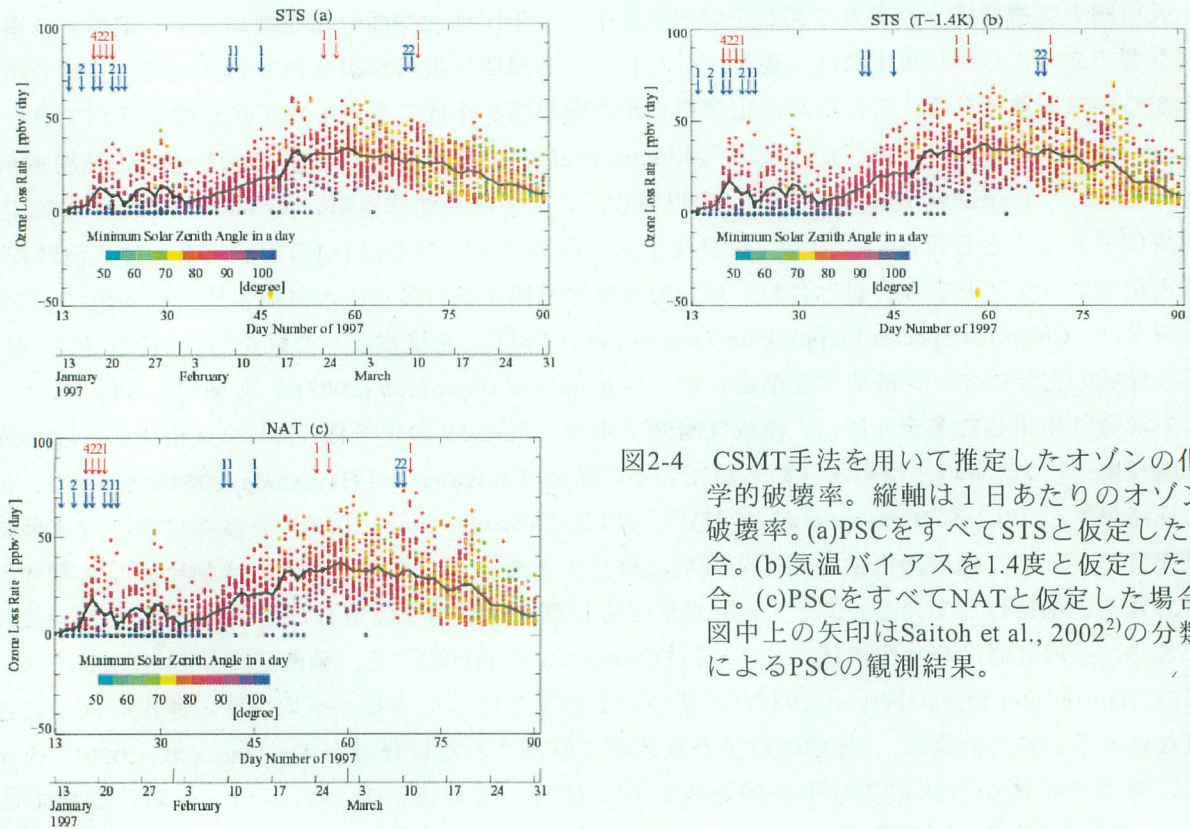


図2-4 CSMT手法を用いて推定したオゾンの化学的破壊率。縦軸は1日あたりのオゾン破壊率。(a)PSCをすべてSTSと仮定した場合。(b)気温バイアスを1.4度と仮定した場合。(c)PSCをすべてNATと仮定した場合。図中上の矢印はSaitoh et al., 2002<sup>2)</sup>の分類によるPSCの観測結果。

#### (4) クロリンナイトレイトの解析結果

冒頭に述べたとおり、ILAS のアルゴリズムの改良により version6.0 ではクロリンナイトレイト ( $\text{ClONO}_2$ ) が導出された。これまでに UARS に搭載された CLAES センサーが  $\text{ClONO}_2$  の観測を行った実績があるが、極域での連続した観測はこれまで行われていなかった。

図2-5はCl種の関係を示す模式図である。これらの化学種間において擬定常状態を仮定すると、以下のような関係式を求めることができる。

$$\frac{[\text{ClONO}_2]}{[\text{ClO}]} \approx \frac{k_{\text{ClO}+\text{NO}_2}[\text{NO}_2]}{J_{\text{ClONO}_2}}$$

$$\frac{[\text{ClO}]}{[\text{Cl}]} \approx \frac{k_{\text{Cl}+\text{O}_3}[\text{O}_3]}{k_{\text{ClO}+\text{NO}}[\text{NO}]}$$

$$\frac{[\text{HCl}]}{[\text{Cl}]} \approx \frac{k_{\text{Cl}+\text{CH}_4}[\text{CH}_4]}{k_{\text{HCl}+\text{OH}}[\text{OH}]}$$

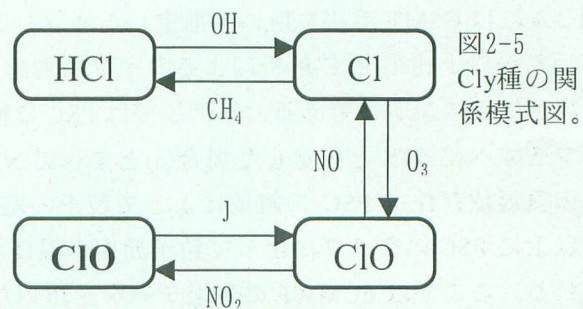


図2-5 Cl種の関係模式図。

冬季両極域の下部成層圏では極成層圏雲(PSCs)上での不均一反応により、リザボア種である不活性塩素はオゾンを破壊する活性塩素へと変換される。太陽高度の高くなる春季に向かうに従い、

活性塩素が不活性塩素へと変換され、オゾンが回復する。極域でのオゾン回復期における塩素系化学種の分配比率は、残存するオゾン量によって異なる。オゾンが十分に大気中に残存する場合、活性塩素は主に ClONO<sub>2</sub> へと変換される。一方オゾンがほとんど大気中に残存しない場合、Cl/ClO 比、NO/NO<sub>2</sub> 比は共に大きくなり、ClO + NO<sub>2</sub> → ClONO<sub>2</sub> の反応が抑制され、Cl + CH<sub>4</sub> → HCl + CH<sub>3</sub> が促進されるために、活性塩素は主に HCl へと変換される。

ILAS で観測された ClONO<sub>2</sub> のデータを解析したところ、南北両半球におけるオゾン回復期における ClONO<sub>2</sub> の振る舞いに顕著な違いが見られた。図 2-6 に明らかなように、北極では春季初頭に ClONO<sub>2</sub> が大きく増加するのに対し、南極ではこのような観測が見られない。これは明らかにオゾンの濃度レベルに依存している。

この解析結果は国際会議で多数発表し、現在論文投稿を準備している。

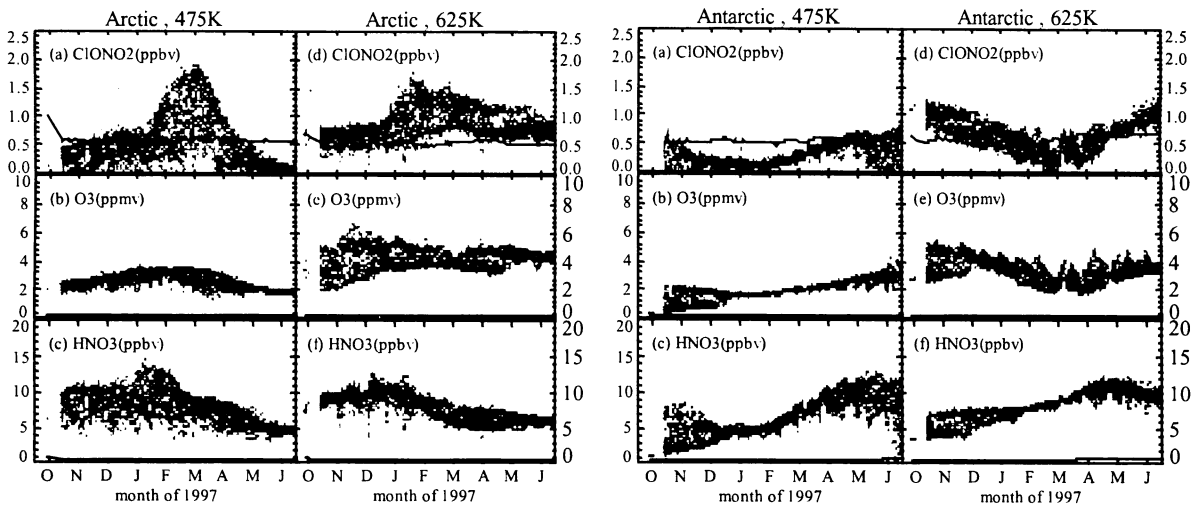


図 2-6 1996 年 10 月から 1997 年 6 月までの ClONO<sub>2</sub> の時系列。左は北極、右が南極。黒は極渦内と境界領域、グレーは極渦外。

(5) まとめ

ILAS で観測された微量成分データを中心に気象データ、他衛星データなどと共に化学モデルを援用して 1996 年から 1997 年にかけての南北両半球における成層圏オゾン破壊過程について解析した。その結果、下記のような結果を得た。

- ・オゾンや関連物質の変動に大気中で重要な役割をもつ極成層圏雲の組成を衛星観測データと熱力学理論を用いて調べたところ、1997 年 1 月中旬の下部成層圏中で主に STS (Supercooled Ternary Solution; 硫酸・硝酸・水の 3 成分系液滴) からできている可能性が高く、同 3 月には NAD (Nitric Acid Dihydrate; 硝酸二水和物)、NAT (Nitric Acid Trihydrate; 硝酸三水和塩) 粒子である可能性が高いことが明らかになった。
- ・PSC 上で引き起こされる不均一反応によって引き起こされる活性塩素によるオゾン破壊率を調べるために光化学ボックスモデルを活用し、化学的オゾン破壊率を求めた。モデルの推定結果が他の研究者による解析結果に比べ過小評価であることを示した。
- ・ClONO<sub>2</sub> の時系列を解析し、南北両半球における対比が明らかになった。



## 引用文献

- 1) Hayashida, S., et al., *J. Geophys. Res.*, 105, 24,715-24,730, 2000.
- 2) Saitoh, N., et al., *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD0005952,2002,
- 3) Kagawa and Hayashida, *J. Geophys. Res.*, 108, 10.1029:2002JD002824, 2003
- 4) Poole, L. R., and M. C. Pitts, *J. Geophys. Res.*, 99, 13083-13089, 1994.
- 5) Fromm, M. D., et al., *J. Geophys. Res.*, 102, 23659-23672, 1997.
- 6) Carslaw, K. S. et al., *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1877-1880, 1995.
- 7) Worsnop, D.R. et al., *Science*, 259, 71-74, 1993.
- 8) Hanson, D. and K. Mauersberger, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-858, 1988.
- 9) World Meteorological Organization, Scientific Assessment of Ozone Depletion, 2002
- 10) Tabazadeh, A. et al., *Science*, 291, 2591-2594, 2001.
- 11) Knopf, D. A. et al., *Atmos. Chem. Phys.*, 2, 207-214, 2002.
- 12) Fahey, D. W. et al, *Science*, 291, 1026-1031, 2001.
- 13) Schoeberl, M. R. et al., *J. Geophys. Res.*, 94, 16,815-16,845,1989
- 14) Morris, G. A. et al., *J. Geophys. Res.*, 100, 16,491-16,505,1995
- 15) Morris, G. A. et al., *J. Geophys. Res.*, 105, 17875-17894, 2000
- 16) 河瀬他、天気(投稿中)
- 17) DeMore, W. B. et al., *JPL*, v12,1997
- 18) Sander, S. P. et al., *JPL*, v13, 2000
- 19) Deshler, T. et al., *J. Geophys. Res.*, 105, 3,3943-3953, 2000
- 20) Hanson, D. R. et al., *J. Phys. Chem. A*, 102, 4,794-4,807,1998

### 3. アラスカ FTIR を用いた大気微量成分高度分布の自動推定手法の開発と多種分子種の解析に関する研究

#### (1) 目的

大気微量成分はオゾン層破壊などの現象において鍵となる働きをしている。地上設置された FTIR (フーリエ変換型赤外分光計) は対流圏から中部成層圏まで安定した条件で数年以上の長期観測が可能であり、地球環境変動に関わる多くの物質の観測に適している<sup>1,2)</sup>。我々はアラスカ州ポーカーフラット (65 N, 147 W ; 図3-1 参照) に高分解能 FTIR を設置し、1999

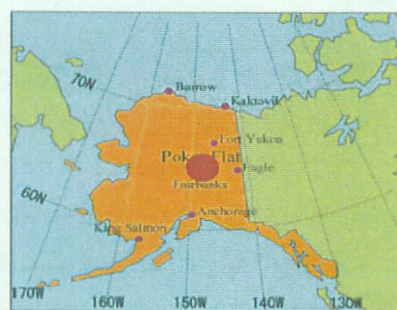


図3-1: ポーカーフラット観測所の位置

年7月より観測を行っている。同地は、ILAS、ILAS-IIなどの衛星観測の地上検証に適した緯度帯に位置する。本研究では、成層圏大気微量成分のリトリバルを行うとともに、リトリバルされたデータの統計的誤差解析から精度を評価して、ILAS・ILAS-II観測の検証に資することを目的としている。また、自動解析システムを開発することで、実時間データの監視、および最新の解析パラメータによる処理結果を得ることができる。



## (2) 赤外吸収スペクトルとリトリーバル手法

赤外吸収スペクトルから大気微量成分の存在量を求めるには、従来から吸収線の総吸収量から気柱全量推定が行われてきた<sup>3,4)</sup>。近年、各高度の存在量(高度プロファイル)を求めるインバージョンが行われるようになってきた。本研究ではロジャーズの最適法<sup>5,6)</sup>を用いてインバージョンを行うソフトウェアSFIT2を用いた<sup>7,8)</sup>。大気中では各高度で気圧が異なるため、地上で得られる吸収スペクトルは、各高度で異なる圧力広がりを持つスペクトルの積分値となる。これを利用して逆問題を解き、各高度での目的分子の存在量を導く。

この逆問題を解くソフトウェアがSFIT2で、ニュージーランド水文大気研究所(NIWA)と米航空宇宙局ラングレー研究所(NASA/LaRC)によって共同開発された。SFIT2解析による研究はこれまでも行われてきている<sup>[1][2]</sup>。SFIT2ではC. D. RodgersによるOptimal estimation method(OEM)<sup>5,6)</sup>を用いてリトリーバルを行う。求める分子濃度の鉛直分布 $\hat{\mathbf{x}}$ は $\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + \mathbf{D}(\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}_a)$  ;  $\mathbf{x}_a$ はア priori(a priori; 先験値)の鉛直分布,  $\mathbf{y}$ は観測スペクトル,  $\mathbf{K}$ はWeighting functionである。  $\mathbf{D}$ は $\mathbf{D} = \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T (\mathbf{S}_e + \mathbf{K} \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T)^{-1}$ である。 $\mathbf{S}_a$ はa prioriの、 $\mathbf{S}_e$ は観測値に対するそれぞれ分散共分散行列である。また $\mathbf{A} = \mathbf{D}\mathbf{K}$ を Averaging kernel と呼ぶ。例えば、オゾンの場合 $K_{O_3} = \partial y / \partial x_{O_3}$ のようになる。 $\mathbf{A}$ の行方向の成分を見てリトリーバル結果の高度方向の分解能がわかる。SFIT2は $\mathbf{A}$ の計算は行わないので、別途行列計算を行って求める。

地上観測では衛星に比べ観測光路長が短いため、スペクトルが持つ大気の情報量は多くない。従って解がア prioriなどに依存するため、不適切なパラメータを与えると誤った解析結果を得る可能性がある。

## (5) データシステムSALMONと準リアルタイム自動リトリーバルシステムの開発

SALMON(System for Arctic atmosphere Observation data Network)とは、その観測データを高速ネットワークを用いて準リアルタイムでCRLに転送し、解析処理を行い、直ちにウェブを通じてデータの表示・配布を行うシステムである。SALMONでは、APAN、TransPAC、インターネット2などの複数の国際ネットワークプロジェクトを利用することにより、アメリカ~日本間で高速なリンクを確立している。我々は、SFIT2をSALMONに組み込み、観測データの実時間自動処理・表示システムを実現した。開発言語にRubyを採用し、多次元配列計算用拡張ライブラリ(NArray)を用いて、リトリーバル計算と同時にAveraging Kernelを求める行列計算を行えるようにした。

## (3) 誤差評価

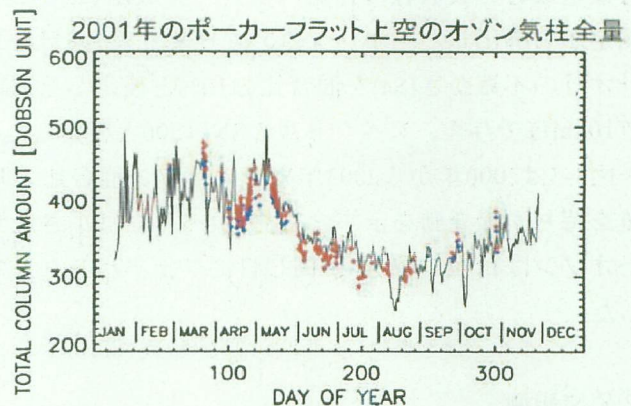


図3-3 オゾンカラム量の比較。TOMS(黒線)とポーカーフラットFTIR(青:ア priori不変、赤:月毎にリトリーバル結果の平均をア prioriとする)。

SFIT2リトリバルによる誤差（真値とのずれ）は主に1)スムージング誤差[ $(A - I_n)(x - x_a)$ ]と2)モデルパラメータ誤差の2つである。これらに対して評価を行った。

#### ①アприオリ依存性：

得られたリトリバル結果の1例を図3-2に示す。破線が a priori, 緑に囲まれた太線がリトリバル結果である。濃い黒線は同時刻に上げられたオゾンゾンデ計測値である。ここでは準備的な年間同一のアприオリで処理した結果を月ごとに平均し、月毎のアприオリとしたところ、2度目のリトリバルではスムージングエラーがより小さくなっている事が示された。また、図3-3に全期間で同じアприオリを用いた結果と月ごとのアприオリを用いた結果を、TOMS観測結果と比較した。月ごとのアприオリを用いた結果はTOMSデータとよく一致している。

#### ②他のパラメータ依存性：

気温、水蒸気、装置関数に対して以下の計算を行った

気温：気象ゾンデ観測値および+10K、-10K変化させた場合のリトリバル結果を比較

水蒸気量：気象ゾンデ観測値と、モデル大気を用いた場合のリトリバル結果を比較

装置関数：気体セル測定を用いた場合と、箱型関数の値を用いた場合の結果を比較

気温、水蒸気3つのパラメータの中では今回のケースに関しては気温で最もオゾンゾンデ観測値との差が大きかった。

### (4) 大気微量成分の長期観測結果

#### ①オゾン観測

解析する波数範囲は3051.2-3051.9  $\text{cm}^{-1}$ を採用した。リトリバルに必要な気温・気圧は0-30kmまでフェアバンクスでのラジオゾンデ観測値、30-50 kmはUKMO、50-100 kmはCIRA86を用いた。各微量成分の吸収線の分光パラメータはHITRAN2000を用い、装置関数パラメータは室内気体セル測定から導出した。オゾンのアприオリは1回目リトリバルされた値の月平均値を与え、アприオリの不確かさ( $S_a$ )を混合比の10%と仮定した。高度区切りは0-50kmまで2km毎、50-100kmまで10km毎で与え、スペクトルのSNは200と仮定した。

図3-5は2000年から2003年までのオゾン混合比の時間高度断面図である。オゾンは~30kmに最大値を持ち季節変動を示す。また、4・5月には小さなオゾン量の変動が示される。リトリバルされたオゾンはTOMSデータや同じ日にフェアバンクスで観測されたオゾンゾンデデータと良く一致した。

#### ②硝酸観測

硝酸のリトリバルに用いる波数範囲は867.45-869.25  $\text{cm}^{-1}$ を採用した。リトリバルの条件としてアприオリの不確かさ( $S_a$ )を混合比の80%と仮定した。導出データ点の高度間隔は0-50 kmが2 km、50-60 kmが5 km、60-100 kmが20 kmとした。スペクトルのSNは20と仮定した。その他の条件はオゾンの場合と同様である。図3-6から硝酸は最大の混合比を~22kmに持って季節変動を示す事が分かる。下部成層圏では硝酸の季節変動は約50%を示す。この季節変動を議論するためにはデータの誤差を見積もることが必要である。しかし硝酸は比較データが少ないため、誤差解析を行い精度を初期的に見積もった。気温・気圧が誤差に最も影響すること、気温は1日内でも変化が大きいことから、モデルパラメータの代表として気温についての誤差解析を行った。1年間の気温

変化の代表として2002年に観測された気温の代表100例に対してリトリーバルを行った結果、リトリーバルされる硝酸の変化は約±0.5 ppbv（約10%）の範囲内、その標準偏差は約5%であった。またスムージング誤差とmeasurement errorについては、アプリアリ・Sa・SNからの誤差を見積もった。アプリアリから±50%の範囲でランダムなプロファイル100例を与えリトリーバルを行い統計的な誤差を見積もったところ、元のリトリーバル結果からの差は約±30%であり、標準偏差は10-25 kmで約10-15%と見積もられた。但し、標準偏差は誤差解析に用いるアプリアリに依存する。本解析では大きめであると考えられる範囲でアプリアリを与えていることから、導かれる誤差もやや大きめの値であると考えられる。また、Sa、SNを変化させリトリーバルテストを行い、誤

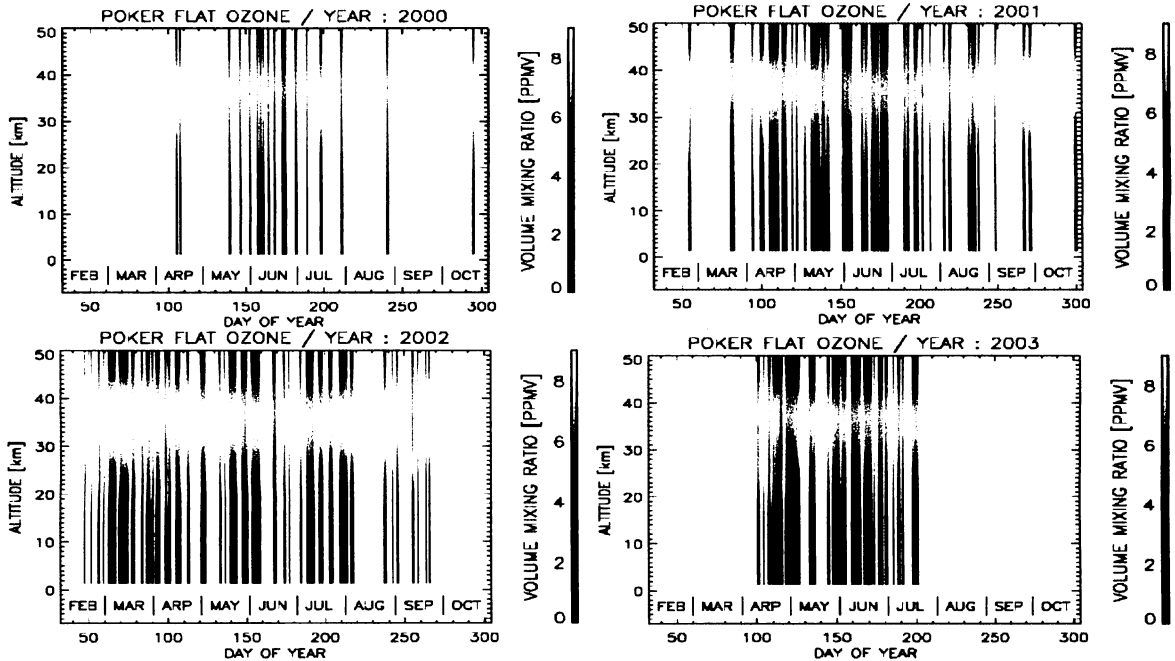


図3-5：2000年から2003年までのポーカーフラット上空のオゾンの時間高度断面図

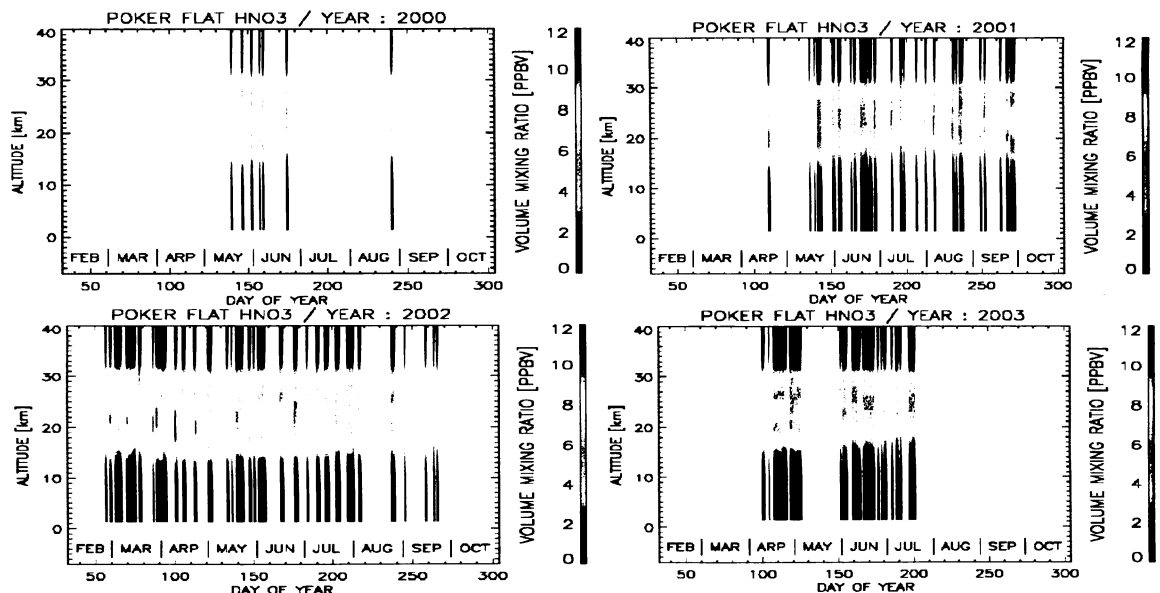


図3-6：2000年から2003年のポーカーフラット上空の硝酸の時間高度断面図



差の合計を見積もった結果、少し高度毎にばらついた値を示すが、全高度約20 %であると見積もられた。この範囲で50%の季節変動は議論可能である。またアプリアリからの誤差が合計の誤差に対し最も大きな寄与を示した。

#### (4) まとめ

アラスカ・ポーカーフラット上空で、FTIRを用いたオゾン、硝酸、ClONO<sub>2</sub>など成層圏大気微量成分の観測に成功した。リトリバルされた2000年から2003年のオゾンは約30 kmに最大値を持ち季節変動した。オゾンは他の観測値と比較し良く一致した。2000年から2003年の硝酸は約20kmに最大値を持ちオゾンと同様に季節変動を示した。硝酸については他に比較するデータが少ないなどの理由から誤差解析を行いデータの精度を見積もった。誤差が生じる大きな要因である気温・アプリアリ・Sa・SNに対して誤差解析を行い、初期結果として約20%の誤差が導かれた。今回導かれた誤差の範囲では、約50%を示している硝酸の季節変動は議論可能であると考えられる。今後の課題として、十分な誤差解析を行っていくことが必要である。また、ClONO<sub>2</sub>はスペクトルのSNが十分大きくないため、現在の解析では十分な信頼性が得られていない。今後リトリバル条件を検討することが必要である。

#### 引用文献

- 1) Solomon, S., *Review of Geophysics*, vol. 37, 1999.
- 2) Griffiths, P. and J. Haseth, *Fourier Transform Infrared Spectrometry*, John Wiley & Sons, 1986.
- 3) Rinsland, C. P., *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **89**, 9613-9622, 1984.
- 4) Rinsland, C. P., *et al.*, *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 1025-1028, 1996.
- 5) Rodgers, C. D., *Rev. Geophys. Space. Phys.*, **14**, 609-624, 1976
- 6) Rodgers, C. D., *J. Geophys. Res.*, **95**, 5587-5595, 1990.
- 7) Pougatchev, N. S., *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **100**, 16689-16697, 1995.
- 8) Rinsland, C. P., *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **103**, 28197-28217, 1998.

#### 4. 地上FTIRを用いた大気微量成分高度分布推定と装置関数補正の効果に関する研究

##### (1) はじめに

東北大学と国立環境研究所では、つくば(36.0°N, 140.1°E)においてフーリエ変換型赤外分光計(FT-IR)を用いた大気微量成分の観測を'98年12月より行っている。FT-IRは観測波長領域が広く多成分の同時観測が出来るうえ、高分解能の分光計を用いることで地上からの観測からインバージョンにより高度分布を求めることも可能である。ただし、この高度分布を求める解析法はまだ確立された技術とはいえない。そこで、まずは検証データの入手可能なオゾンについて高層気象台のオゾンゾンデ観測との比較することにより、高度分布を求める解析法を確立する必要がある。本研究では、ILAS、ILAS-IIとの比較検証に資する地上測定データを得ることを目的として、高度分布解析手法ならびに高度分布解析時に重要となる Instrumental line shape (装置関数) の評価と解析時の補正の効果について検討を行った。

## (2) 高度分布推定手法

### ①SFIT2 ソフトウェアによるオゾン高度分布推定

観測スペクトルの解析には、これまでは Rinsland らが開発したプログラム SFIT を用いて各成分の全量を導出してきたが[Rinsland et al., 1984; 1996]<sup>(1),2)</sup>、本研究では、高度分布を導出する SFIT2 を新たに導入した[Pougatchev et al., 1995; Rinsland et al., 1998]<sup>(3),4)</sup>。SFIT2 では線形解法の一つであるロジャース法を用いる[Rodgers, 1976; 1990]<sup>(5),6)</sup>。この手法は安定した解が得られ誤差や分解能の評価が解析的に出来るなどの特徴がある一方、観測誤差と初期推定値の確からしさの重みの付け方によって分解能が変化する、重みの意味づけが不鮮明であるなど、難しい面もある。

まずオゾンについて、SFIT2 を用いて求めた高度分布をオゾンゾンデ観測結果と比較し、最適パラメータ検討および導出される高度分布の精度を調べた。オゾンゾンデ観測データは高層気象台で観測しているものを利用しており、我々の観測点との距離は 1 km 以内とほとんど無視できるほどの距離である。図 4-1 は 1999 年 8 月 11 日に FT-IR で観測した  $1163\text{ cm}^{-1}$  付近のスペクトルを用いて SFIT2 から求めた高度分布と、同日のオゾンゾンデ観測結果を比較したものである。3 本の観測スペクトル各々から高度分布を導出しているが、いずれも 30-40 km 付近で値が小さくなり、FT-IR とゾンデはあまりよく合っていない。他にも 6 日分のデータで比較してみたが、ほぼ同じ傾向であった。

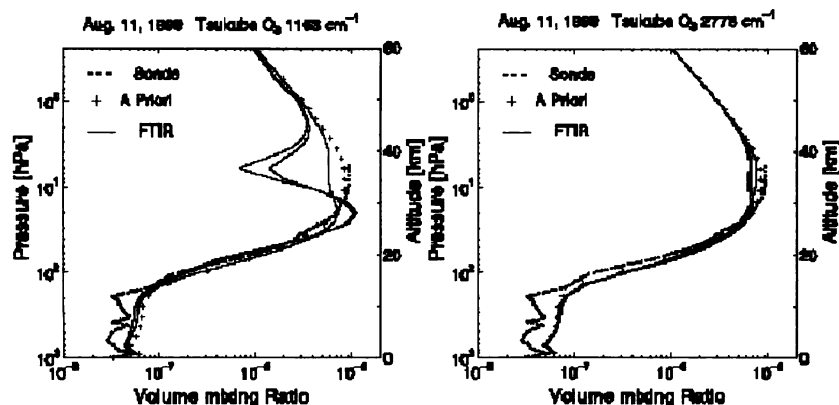


図4-1 (左) SFIT2を用いた解析の例 ( $1163\text{ cm}^{-1}$ )。

図4-2 (右) SFIT2を用いた解析の例 ( $2778\text{ cm}^{-1}$ )。

### ②考察

S/Nの設定、分解能の設定などいくつかのパラメータを変えてみた範囲ではよい結果は得られなかった。そこで、他の吸収線でも解析を行い比較してみた。図4-2は同じく1999年8月11日の $2778\text{ cm}^{-1}$ 付近のスペクトルを用いた解析結果である。小さいながら30-40 km 付近にやはりへこみが見られる。これより、各パラメータの詳細な検討の前に装置関数のチェックが必要と考えられた。

## (3) ガスセル測定 (2002 年) による装置関数測定および解析の高精度化の検討

### ① HBr、 $\text{N}_2\text{O}$ ガスセル測定と装置関数

地上からの分光観測による高度分布観測では、吸収線の圧力幅を利用して高度分布を導出するため、装置関数 (Instrumental line shape ; ILS) が得られる高度分布に影響を及ぼす。そこでガスセルを用いて ILS を決定し、これを用いて解析時に補正を行った。実際の ILS を決める際には、デルタ関数に近い細い吸収線が望ましいので、重い (分子量の大きい) 分子を低圧で封入したガスセルを用いる。用いたのは HBr 及び  $\text{N}_2\text{O}$  セルで、それぞれ 2hPa、0.13hPa で封入してある。図



4-2、4-3はそれぞれHBr、N<sub>2</sub>Oセル測定による吸収線スペクトルの例である。これを見ると、HBrの吸収線には若干の非対称性が見られるが、N<sub>2</sub>Oの吸収線は対称性がよいことがわかる。吸収線からILSを求める解析にはHase *et al.* [1999]<sup>7)</sup>によるLINEFITプログラムのver.9を使用している。HBr、N<sub>2</sub>Oセルそれぞれの測定からILSを求めた結果が図4-4である。理想的なILSの場合は全ての光路差(OPD)にわたってModulationが1.0、Phaseが0.0となるが、測定結果は理想値からずれている。また、HBrセルの測定結果(4 μm付近の吸収線を測定)とN<sub>2</sub>Oセルの測定結果(8 μm付近の吸収線を測定)でかなりILSが異なる。両測定は検出器が異なり、光路も一部異なるが、干渉計部分が同一でも波長によりこれほど違いが出る点についてはさらに考察が必要である。

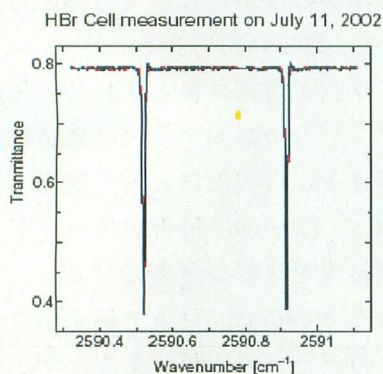


図 4-2 HBr セル測定のス  
ペクトル例。

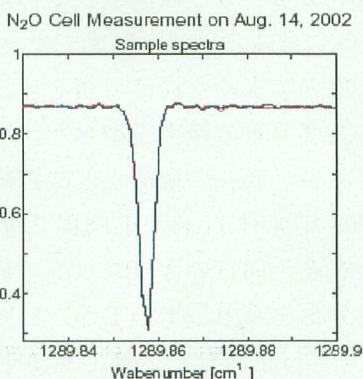


図 4-3 N<sub>2</sub>O セル測定のス  
ペクトル例

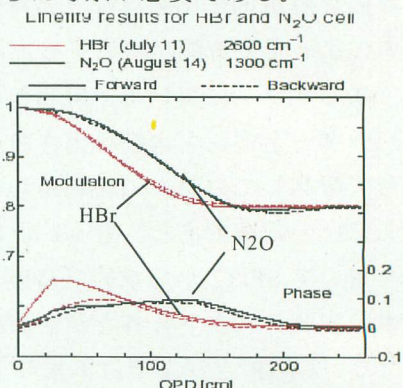


図 4-4 HBr、N<sub>2</sub>Oセルの測定  
から求めた装置関数  
の補正項。実線は  
forward、破線は  
backward。

## ② 大気組成の高度分布解析の高精度化の検討

オゾンの高度分布解析を行ってオゾンゾンデ観測と比較し、装置関数の補正の効果を調べた。図4-5はN<sub>2</sub>Oセル測定結果を用いて1163 cm<sup>-1</sup>のオゾン吸収線を解析した場合の補正の効果をオゾンゾンデの観測結果と比較したものである。補正前に35 km付近にみられた「くびれ」は見事になくなっており、装置関数(ILS)の補正は大きな効果があることがわかった。しかし、図4-6のHBrセル測定結果を用いて2778 cm<sup>-1</sup>のオゾン吸収線を解析した場合には、かなり改善されるものの25 km付近の「くびれ」は少し残っていた。解析パラメータの最適化も含めてより詳細な検討が必要と考えられる。

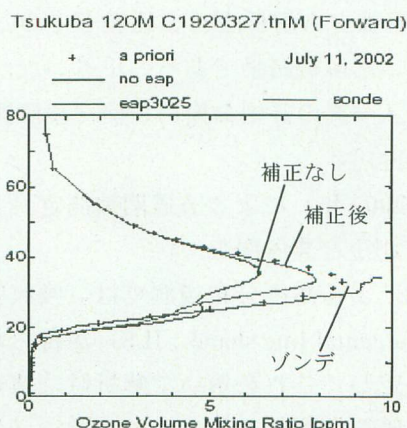
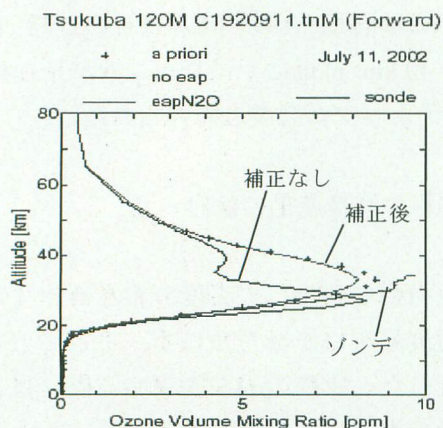


図 4-5(左)

1163 cm<sup>-1</sup>のオゾン吸収線から求めた高度分布。ドットはアプリアリ。

図 4-6(右)

2778 cm<sup>-1</sup>のオゾン吸収線から求めた高度分布。ドットはアプリアリ。



(4) ガスセル測定 (2003 年) による装置関数測定 : 時間・調整による装置関数の変化

① HBr, N<sub>2</sub>O ガスセル測定と装置関数の変化

装置関数は経年変化する可能性があるため、時間変化を調べた結果が図4-7、4-8である。図には後で述べる光軸調整後の結果 (2004年2月) も示されているが、まず光軸調整以前の測定結果をみるとHBr (2002年12月、2003年12月)、N<sub>2</sub>O (2002年8月、2003年3月、2003年12月) とも数ヶ月から1年の間に若干変化したことがわかる。特にHBrのPhaseの変化は少なくない。2003年には比較的大きな地震などもあったため、分光器の光軸が若干変化している可能性もある。これより、装置関数は定期的にチェックする必要があることがわかった。

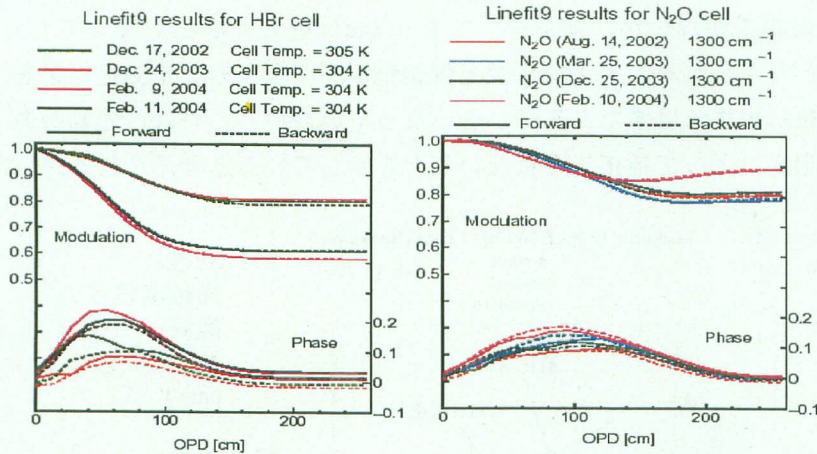


図4-7 (左) 光軸調整前後でのHBrセル測定結果の変化

図4-8 (右) 光軸調整前後でのN<sub>2</sub>Oセル測定結果の変化

また、図4-7、4-8からわかるように我々の分光器は理想的な状態からずれており、調整の必要があると考えられた。そこで、2004年1月に分光器メーカーの技術者に光軸を調整してもらい、その前後(2003年12月と2004年2月)にセル測定を行った。図4-7、4-8には光軸調整後の結果も示してある。これを見ると、調整によって必ずしも改善されていない。特にHBrの結果ではかえって理想値から離れている。我々の要求水準がメーカー側の調整基準よりシビアであることも要因の一つと考えられる。次節に示すように、光軸調整が不完全でも補正結果はかなり改善するが、光軸がある程度調整されていないと補正しきれないようなので、今後さらに再調整を行う予定である。

② 装置関数による補正の効果

オゾンの高度分布解析をSFIT2ソフトウェアを用いて行い、装置関数の補正の効果調べた。図4-9はHBrセル測定結果を用いて2778 cm<sup>-1</sup>のオゾン吸収線を解析した場合の補正の効果をおゾンゾンの観測結果と比較したものである。装置関数の補正に用いるパラメータModulation、Phaseのどちらがより重要かを調べるため、それぞれの補正項を単独で使用した解析も行い比べてみた。これを見ると、補正なしに比べてphaseのみ補正ではあまり改善は見られず、Modulation、Phaseとも補正とModulationのみ補正はほぼ同じ結果でどちらもゾンの結果にかなり近づいている。これ

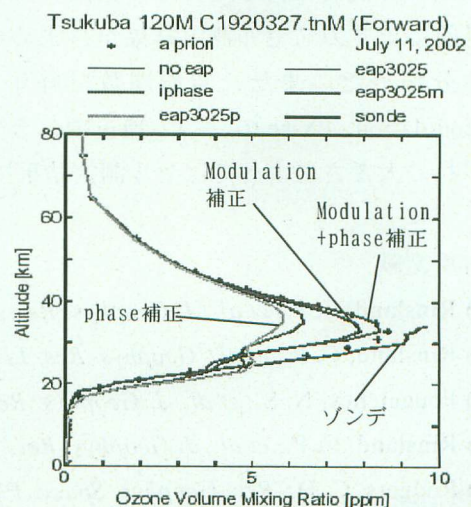


図4-9 Modulation, Phaseそれぞれの補正効果

より、セル測定結果を用いた補正はかなり効果があることがわかる。

また、この結果からは、二つの補正項ではModulationによる補正の効果が大きく、Phaseによる補正はあまり重要でないということになる。Modulationは主に分解能、Phaseは主に非対称性を表すパラメータであるが、解析には吸収線の両ウイングを使用しているため、非対称性の影響は相殺されるのではないかと考えられる。

図4-10、4-11に2004年1月の光軸調整後の観測データをセル測定結果を用いて補正した結果を示す。図4-10の2778 cm<sup>-1</sup>の吸収線の解析結果はHBrセル測定結果で補正したもの、図4-11の1163 cm<sup>-1</sup>の吸収線の解析結果はN<sub>2</sub>Oセル測定結果で補正したものである。まだこの時期のオゾンゾンデの観測データが入手できないので比較相手がないが、補正をしても30 km付近のくびれが残っており、あまりうまく補正できていないと考えられる。本来ならば光軸調整が不完全でもセル測定結果を用いて補正すれば正しい高度分布が求まるはずであるが、そうになっていない。これは、光軸がある程度調整されていないとセル測定によって補正しきれないことを示していると考えられる。

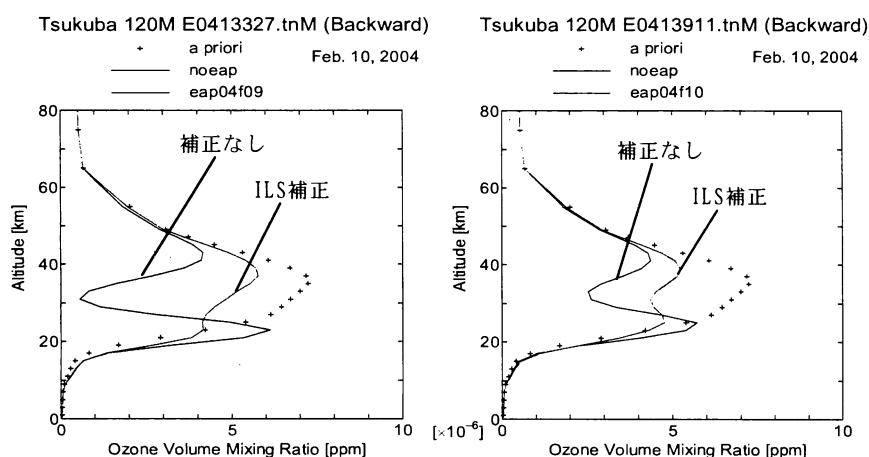


図4-10(左)  
光軸調整後の  
観測データの  
補正(2778  
cm<sup>-1</sup>)

図4-11(右)  
光軸調整後の  
観測データの  
補正(1163  
cm<sup>-1</sup>)

#### (5) まとめ

ILAS、ILAS-II との比較検証に資する地上測定データを得ることを目的として、FT-IR 観測における高度分布解析手法ならびに高度分布解析時に重要となる装置関数の評価と解析時の補正の効果について検討を行った。その結果、SFIT2 を用いて高度分布を導出する際、各パラメータの調整以前にまずガスセル測定結果から求めた装置関数の補正を行うことで結果がかなり改善することが分かった。また、装置関数は経年変化するので定期的にチェックする必要があること、Modulation、Phase の二つの補正項のうち Modulation の補正効果が大きいこともわかった。光軸のずれの大きさによってはセル測定結果では補正しきれない場合があることもわかった。

#### 引用文献

- 1) Rinsland, C. P., *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **89**, 9613-9622, 1984.
- 2) Rinsland, C. P., *et al.*, *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 1025-1028, 1996.
- 3) Pougatchev, N. S., *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **100**, 16689-16697, 1995.
- 4) Rinsland, C. P., *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **103**, 28197-28217, 1998.
- 5) Rodgers, C. D., *Rev. Geophys. Space. Phys.*, **14**, 609-624, 1976

6) Rodgers, C. D., *J. Geophys. Res.*, **95**, 5587-5595, 1990.

7) Hase, F., T. Blumenstock, and C. Paton-Walsh, Analysis of instrumental line shape of high-resolution FTIR-spectrometers using gas cell measurements and a new retrieval software, *Applied Optics*, **38**, 3417 - 3422, 1999.

## 5. 気球搭載型 OPC・LPC による極域成層圏エアロゾルの粒径分布に関する観測的研究

### (1) はじめに

本課題では、ILAS・ILAS-II等衛星観測による極域成層圏雲・エアロゾルデータの検証に必要な、高精度なエアロゾルデータを取得して衛星検証に資する。本研究では気球搭載式粒子計数装置によって遠隔測定では得られない正確なエアロゾル粒径分布を高度30km以下の範囲で取得する。冬季、極成層圏には通常のバックグラウンド的な硫酸を主成分とする液滴エアロゾルだけでなく、硝酸や水を主成分とする液滴、固体エアロゾルも形成する。その詳細な粒径分布は、航空機観測のある高度20km程度以下でしかわかっていない。本研究により、冬季のバックグラウンド的な極域成層圏エアロゾルについて、質量的・光学的に重要な粒径領域の粒径分布を得た。

### (2) 気球搭載実験に用いた粒子計数装置

本研究では、2種類の粒子計数装置を用いた。一つは、光源に半導体レーザーを用いたOPC(Optical Particle Counter)で、2003年1月の実験では半径 $0.15\mu\text{m}\sim 1.8\mu\text{m}$ (屈折率 $m=1.40+0i$ )、2004年1月の実験では改良したOPCゾンデを用い $0.15\sim 3.5\mu\text{m}$ の粒子数濃度を計測した<sup>[20]</sup>。この前者の装置は過去にも北極、南極、インドネシア、中国で観測に用いられている。OPCの計測粒径は、accumulation mode と呼ばれる寿命の長い成層圏エアロゾルの主要な粒子群( $0.1\sim 0.6\mu\text{m}$ )に対応し、またオゾン破壊過程で重要な極域成層圏雲(PSC)粒子( $0.5\sim 5\mu\text{m}$ )の計測にも対応している。とくに2004年の実験で用いた装置は、 $1\mu\text{m}$ 以上のようなPSCの巨大粒子に対応できる。

一方、本研究では、これまで計測が困難であった半径 $0.15\mu\text{m}$ 以下の粒径領域の計測を行うLPC(Laser Particle Counter)を用いた。外部ミラー型のHe-Neレーザーの共振部分を光学チャンバーとして利用したもので、実験室レベルでは一般的であるが、比較的小型の気球で成層圏までの観測が可能ないように構成した<sup>[21]</sup>。計測粒径は、2003年は半径 $0.056\sim 0.15\mu\text{m}$ (屈折率 $m=1.40+0i$ )、2004年は $0.06\sim 0.15\mu\text{m}$ である。この粒径領域はaccumulation modeと nucleation modeの境界にあたり新粒子生成後に特徴的な増大を示す。極成層圏雲の形成や極域での成層圏エアロゾル生成、火山噴火後の新粒子生成や粒子成長などの機構を理解するためには、不可欠の情報を得ることができる。

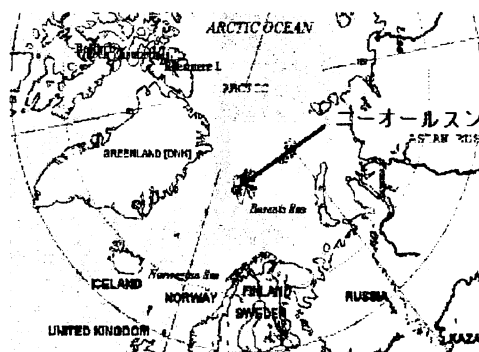


図5-1 観測の実施場所(79N, 12E)

### (3) 2003年1月北極冬季の観測—気球・ライダー同時観測



①実験

観測は、ノルウェー領スピッツベルゲン諸島ニーオーレスン（79N、12E）の極地研究所北極観測施設で行われた（図5-1）。1993年より福岡大学と名古屋大学が共同で運用しているライダーを用いて比較観測を実施した。

今回の観測では容積19000 ft<sup>3</sup>のプラスチック気球を使用した。LPC、OPCの重量はそれぞれ約12kg、3kgであり、OPCとLPCを1つの気球に同時に搭載できないため、両者のデータを取得するため連続して放球を行うことを予定した。しかし、実際の観測は、2003年1月18・19日に、それぞれOPC、LPCによる観測が行われた。OPC観測実施後に風が強くなったため、同日連続放球は見送られた。到達高度はOPC、LPCそれぞれ、25km、24kmであった。OPC観測対象の粒子が卓越するエアロゾル層は主に20kmまでであるので、本観測は主要なエアロゾル層と希薄な領域の広い範囲をカバーしている。

② 気球搭載粒子濃度計数装置による粒径分布の観測結果

OPCとLPCの観測結果をともに図5-2に示す。圏界面高度はいずれも約7.5kmである。成層圏高度では氷点下70度以上であり、PSC形成はなかった。accumulation modeの0.15 μm以上の粒子数濃度は、高度19km付近から上空で急速に濃度が減少しているが、0.056 μmでは、濃度減少はそれ程顕著でない。

この観測結果から求めたエアロゾル粒径分布の例が図5-2である。粒径分布は、バイモードの対数正規（log-normal）粒径分布で近似的に表されている。丸印が観測された積算粒子数濃度、破線がlog-normal微分粒径分布、実線が観測値にフィットした結果である。高度10~15kmで半径0.6 μm以上の粒径に一つの山がみられる。対応する高度に、ライダー観測では偏光解消度の増大が観測されていることから、この粒子群はエル・レベントアール火山（エクアドル；2002年11月3日噴火）起源の火山灰を含んでいる可能性がある。また、微小粒径側で大粒径側にみられない微細構造が見られる（図5-2）が、これも、同じの火山による擾乱の可能性もある。

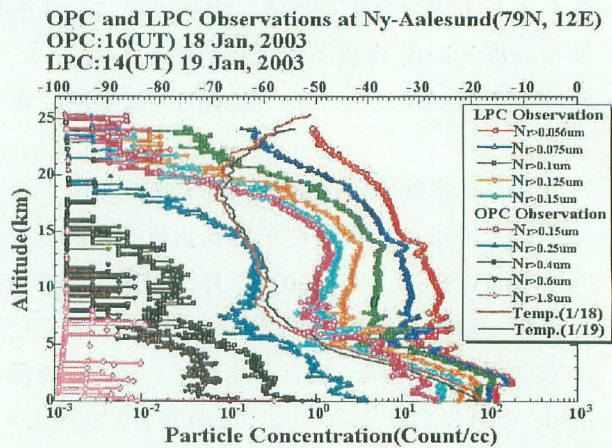


図5-2 2003年1月18、19日のOPC、LPC観測結果

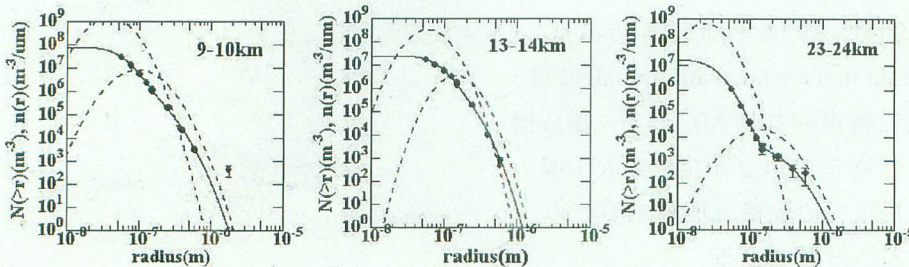


図5-3 OPC、LPCの観測結果から推定されたエアロゾル流刑分布の例。バイモードのログ・ノーマル分布でフィットした。

③ OPC・LPC（粒径分布）とライダー（後方散乱特性）観測結果の比較

これらの粒径分布に対して、ミー散乱理論に基づく後方散乱係数を算出し同時に行われたライダー観測結果との比較を行った。光学特性との比較はILAS、ILAS-IIによる消散係数と同様に、成層圏エアロゾルの光学特性の評価を行うために重要である。図5-4にOPCとLPCによる粒径分布から算出された後方散乱係数とライダー観測の後方散乱係数を示す。

ライダーの観測結果により適合するのは、LPCを用いたバイモード粒径分布であることが明らかである。とくに、LPCを併用したバイモード粒径分布の有効性は、高度15km以上で顕著になる。このことは、後方散乱係数の粒径分布曲線(図5-5)に明らかである。高度15および24kmの図は、それぞれOPC計測粒径の高濃度・低濃度域に対応する。後方散乱に対して、高度15kmでは0.05から0.4  $\mu\text{m}$ までの寄与があるのに対して、高度24kmでは0.01から0.1  $\mu\text{m}$ である。PSCが出現しない状態での後方散乱係数の評価には、LPC計測(0.056~0.15  $\mu\text{m}$ )がきわめて重要であることを示している。また、ILAS、ILAS-IIで計測される消散係数の評価についても同様であることが示唆される。

(4) 2004年1月北極冬期の観測

①実験

観測は2003年に引き続きスピッツベルゲン諸島ニーオーレスンにおいて、名古屋大学環境学研究所、独アルフレッド・ウェーゲナー研究所と共同でおこなわれた。2004年は30kmまでの粒径分布を得るため、LPCを57,000ft<sup>3</sup>、OPCを19,000ft<sup>3</sup>のプラスチック気球で放球した。LPC放球後に風が強くなったためOPC観測は翌日に延期された。2004年1月12日にLPC、同13日にOPCがそれぞれ放球された。残念ながらLPCは強風によって流され26kmまで、OPCは気球破裂により16kmまでの観測にとどまった。

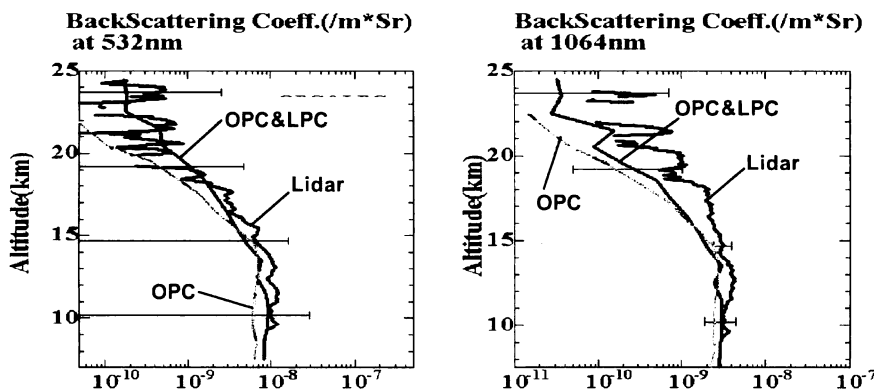


図5-4 ライダー観測および、OPC・LPCによる粒径分布から得られた後方散乱係数の高度分布。「OPC・LPC」はバイモードフィッティングからの推定、「OPC」はモノモ

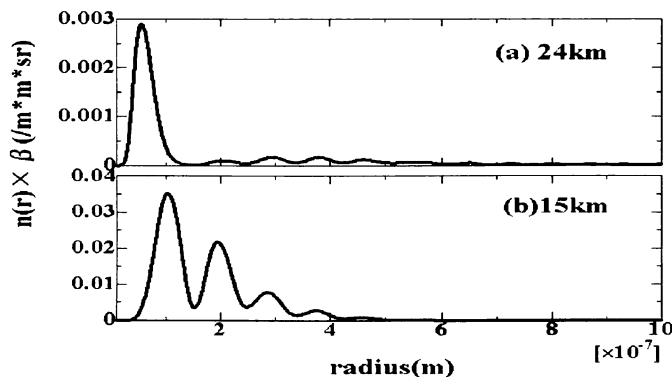


図5-5 高度15km(a)、24km(b)のバイモードフィッティングで得られた粒径分布から推定された後方散乱係数の分布曲線。



## ②観測結果

図5-6にLPC・OPCによって得られた積算粒子数濃度の鉛直分布を示す。圏界面はおよそ8kmであった。12日と13日では、13km以下の高度で相対湿度・エアロゾル濃度に大きな違いがあるため、この高度では、2回の観測の同時性あるいは場所の同一性が低いと考えられる。高度22kmまでは極渦内部のエアロゾル鉛直分布であると考えられる。22km以下の高度は、気温が高いことなどから極渦外の観測である可能性が高い。

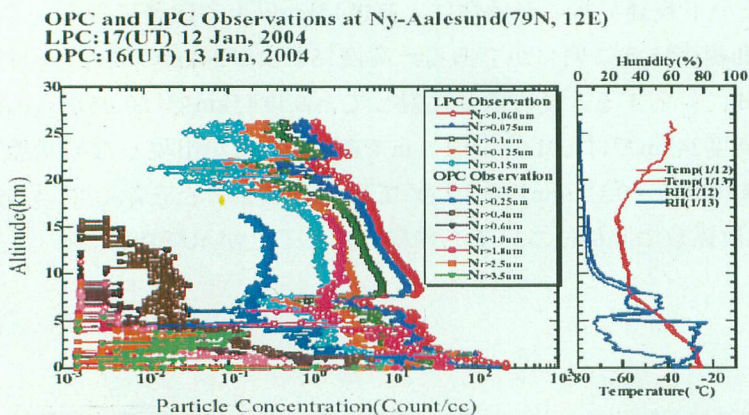


図5-6 2004年1月12、13日にニーオーレスン (79°N, 12°E) で気球搭載カウンターにより観測された積算粒子濃度の鉛直分布。

この2004年の観測結果を2003年1月18,19日のLPC・OPC観測結果と比較したところ、極渦の内部を観測している14から22kmの高度の粒子濃度の鉛直分布は非常によく一致したが、高度14km以下の成層圏最下層部では異なる擾乱が見られ一致しない。対流圏との交換現象も活発であると考えられる。高度22km以上の領域については、2003年は極渦の内部、2004年は極渦外部の気塊をそれぞれ観測したものと考えられる。

### (5) まとめ

2003年、2004年の観測を通じて、極渦内の高度26kmまでの領域について、半径0.056μm以上のエアロゾルの代表的な粒径分布が、詳細に捉えられた。おのおの、2種類の光散乱式粒子計数装置を用いて北極域Ny-Aalesund (79° N, 12° E) において高度25kmまでのエアロゾル粒径分布の直接観測を行い、同時に行われたライダーによる後方散乱光学特性との比較を行った。その結果、極成層圏雲の出現していない状態における成層圏エアロゾル群においては、半径0.056~0.1 μmの粒径領域の粒子の532nmにおける後方散乱の寄与は少なくとも数10%あり、特に、冬季の極域の20kmより上空では、ほとんど100%になることが明らかになった。

このことから、1 μmより短い波長の後方散乱係数や消散係数から粒径分布やエアロゾル量を求めるためには、この粒径領域の直接観測データの蓄積が重要であると考えられる。

さらに、ILAS、ILAS-IIの観測結果との比較検討も進めることにより、それらの遠隔光学計測結果をより正確に理解することができるようになる。これらのエアロゾルは、極成層圏雲の雲核として作用すると考えられるものであり、気球観測、ライダー、衛星観測データを比較・解析することにより、PSCsの形成、発達過程についての検討を進めている。

## 6. 2003年8月アラスカ・フェアバンクスオゾンゾンデキャンペーン観測に見られた上部対流圏・下部成層圏オゾン変動



### (1) はじめに

ポーカークラット実験場(65.1°N, 147.5°W)では日本のグループによって9種類の大気リモートセンシング測器が設置され、運用されている。これらのうち対流圏および成層圏の温度や大気微量成分に関する測器と、ADEOS-II(Advanced Earth Observing Satellite-II)搭載ILAS-II(Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II)との比較検証実験の一環として、2003年8月23-30日にフェアバンクス(64.8°N, 147.9°W)でオゾンゾンデキャンペーン観測を行った。この観測で捉えられた上部対流圏および下部成層圏(UTLS)のオゾンの変動のうち、大気重力波にともなうオゾン変動について議論する。

### (2) 観測

キャンペーン観測の目的は、1つはILAS-II比較検証、もう1つはUTLS領域の大気重力波や総観規模の現象に伴う鉛直・時間スケールの小さいオゾン変動を調べることである。期間中、22個のECCオゾンゾンデ(En-Sci 2Z-GPS)をアラスカ大学フェアバンクス校構内から放球した。

図6-1は期間中のILAS-II観測点を示す。ILAS-II観測(05UTC頃)と同期するため、毎日04UTCにオゾンゾンデを放球した。また8月26日18UTCから28日04UTCにわたっては、3時間毎の強化観測を実施した。ほとんどのオゾンゾンデは地表から約35kmの高さまで到達した。

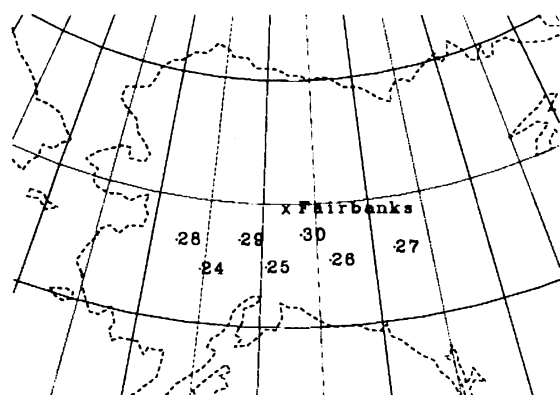


図6-1 ILAS-II観測点。点の横の数字は日付を示す。

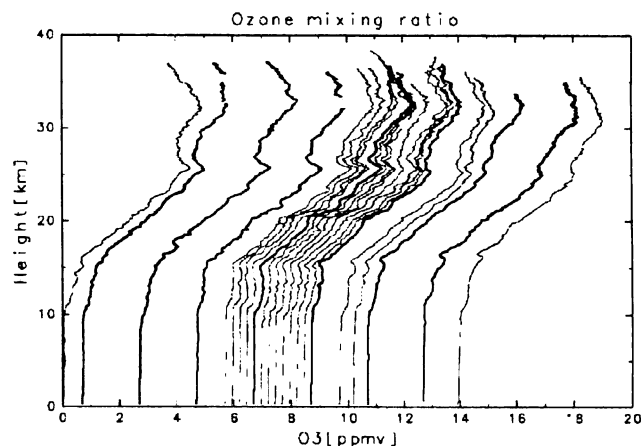


図6-2 体積混合の鉛直プロファイル。太線は、ILAS-II観測と同期させた観測を示す。

図6-2に得られたオゾン体積混合比の鉛直プロファイルを並べて示す。各プロファイルは、23日20UTC放球分を基準として、放球時刻の遅れ3時間につき0.25ppmvずつずらして描いている。太い曲線は、ILAS-IIの観測と同期した観測によるものを示している。これらのプロファイルは、ILAS-IIの観測結果と比較された。

### (3) 観測された重力波の構造とその解釈

図6-3a,bは、東西風および南北風に鉛直バンドパスフィルター(カットオフ波長2kmと5km)を施した成分の時間高度断面図である。時間とともに位相が下降する波状構造が、UTLS領域の至るところに明瞭に現われている。26日16UTC-28日04UTCの高度30km以上に注目する。図中の2本の直線は、東西風の極大を示す。東西風成分と南北風成分の位相がほぼ90度ずれており、温度成分との位相

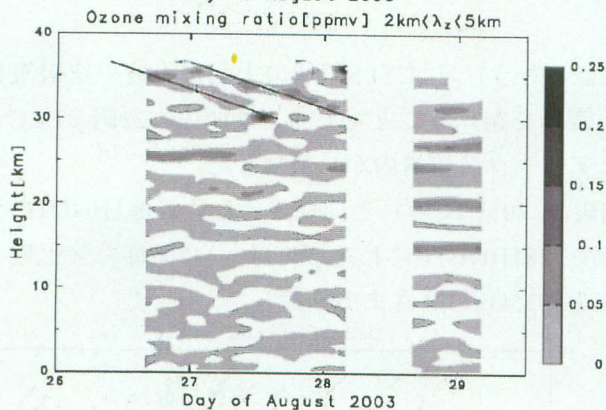
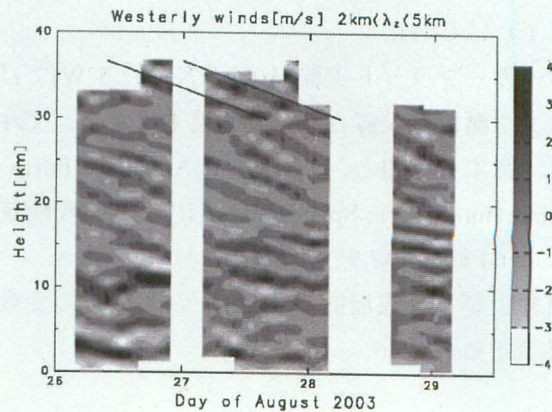
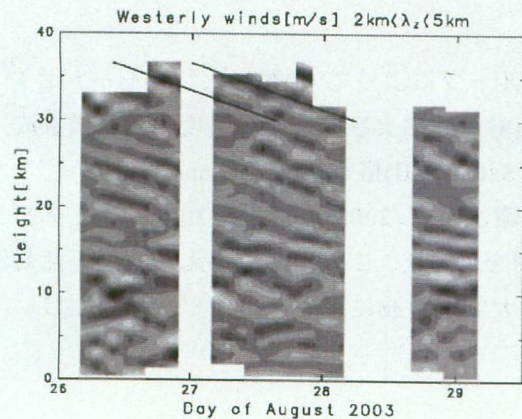


図6-3 東西風 (a; 上左)、南北風 (b; 上右)、オゾン体積混合比 (c; 左) の時間高度断面図。各成分は、時間平均からを引いて、さらに鉛直バンドパスフィルター(カットオフ波長 2kmと5km)を施している。2本の斜線は、東西風の正の極大を示す。

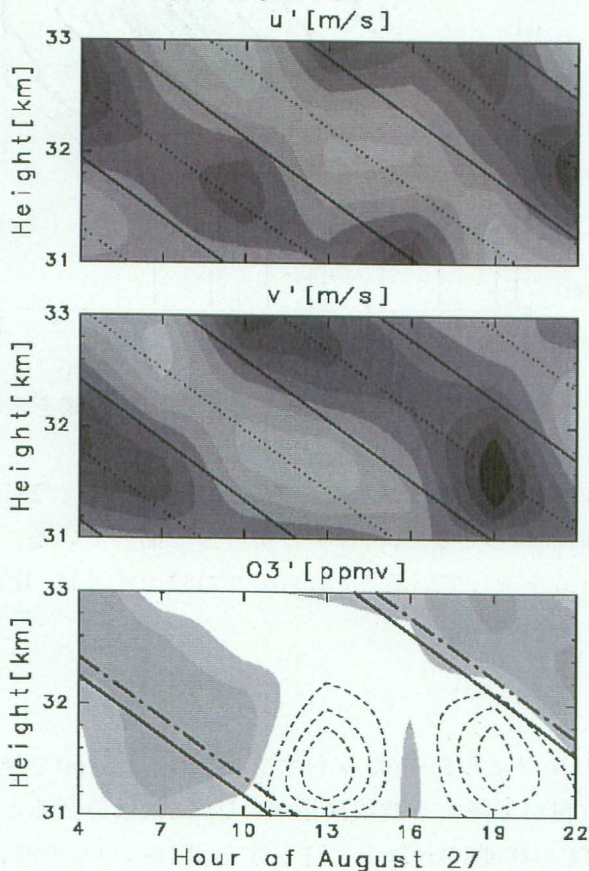


図6-4 鉛直バンドパスフィルター(カットオフ波長 2kmと5km)によって抽出されたオゾン体積混合比時間変動成分の時間高度断面図。陰影は正の領域を、破線は負の領域の等値線を示し、塗り分けと等値線の間隔はそれぞれ0.02ppmvである。太実線と太一点鎖線はそれぞれ、水平風成分へのフィッティングで求めた重力波パラメタに基づいて求めた、下と南からの移流の極大の位相を示す。

や背景風との関係から、南向きに伝播する慣性重力波の特徴を示している。図6-3cはオゾンの時間変動成分に同じフィルターを施したもので、東西風とほぼ同位相の変動がみられる。

8月27日04-22UTCおよび高度31-33kmの水平風成分の時間高度断面図に対して、単色平面波への最小二乗フィッティングを行い、さらに慣性重力波の分散関係式、偏波関係式を用いて、波のパラメタを求めた。結果は、鉛直波長2.5km、対地周期14時間、背景風に対する周期9時間、水平波長340km、水平伝播方向南東(真東から南へ56度)である。

求めたパラメタに基づき、この重力波の風速成分の移流が引き起こすオゾンの変動を見積もった。オゾン混合比の南北・鉛直勾配を、UARS搭載HALOEの観測値にもとづく8月における緯度高度断面図から、それぞれ $-2. \times 10^{-3}$  ppmv/km、 $2.0 \times 10^{-1}$  ppmv/kmと仮定すると、重力波の南北風成分(振幅 $2.0 \text{ ms}^{-1}$ )と鉛直風成分による移流でもたらされるオゾン変動の振幅はともに、約0.02ppmvであると推定される。図6-4は、8月27日04-22UTCおよび高度31-33kmの拡大図である。太実線と太一点鎖線はそれぞれ、下と南からの移流の極大の位相を示す。観測されたオゾン変動と比較すると、南からの移流による変動の極大の方が、観測されたオゾン変動の位相に近い。また、南北移流と鉛直移流の重ね合わせによるオゾン変動は、振幅が約0.04ppmvであり、図3.1.3に示した期間の前半の観測結果と特によく一致する。このことより、重力波によるオゾン変動には、鉛直移流だけでなく水平移流の寄与も重要であることが示唆される。

#### (4) まとめと検討

ILAS-II検証実験の一環として行われた2002年8月のオゾンゾンデキャンペーン観測により、上部対流圏および下部成層圏のオゾン変動を捉えた。特にこれまでに例のない3時間毎観測では、重力波によると思われる、時間とともに位相が下降する風速・オゾンの変動を捉えることに成功した。鉛直移流だけではなく水平移流のオゾン変動への寄与について検討すると、重力波による水平移流の寄与は、鉛直移流と対等かそれ以上であることが示された。高度30km付近におけるオゾンの光化学的寿命は数日以上と推定され、重力波の周期よりも長いためこのオゾン変動は力学的輸送の効果が卓越する可能性と考えられる。

今回、重力波と思われる風速成分の変動は他の領域にも存在しているにもかかわらず、オゾンの重力波的な変動が観測されたのは、高度30km付近のみであった。オゾンの鉛直勾配が高度30km付近に比べて大きく、鉛直移流の効果が現われやすい高度20km付近でも、風速成分に見られる重力波との対応が見られなかった。このことは、高度20km付近では総観規模から惑星規模の流れによる移流の寄与が大きいことの反映と考えられる。

アラスカ大における実験の遂行にあたり、W. R. Simpson, K. Sassen, R. Collins博士に多大な援助を受けた。茨城大の北和之先生と京都大の塩谷雅人先生には、観測に必要な測器の一部を貸していただいた。また、ILAS-IIプロジェクトメンバー、同サイエンスチームメンバーの方々には、助言と励ましをいただいた。ここに記して感謝します。

## 7. 本研究により得られた成果

推進費課題A-10のサブテーマ3で得られた成果は以下のようになった。



① ILASで観測された微量成分データを中心に気象データ、他衛星データなどと共に化学モデルを援用して1996~1997年の南北極域での成層圏オゾン破壊過程およびオゾンや関連物質の変動に大気中で重要な役割をもつ極成層圏雲(PSC)について解析した。その結果、PSCの組成は1997年1月中旬の下部成層圏中で主にSTS (Supercooled Ternary Solution; 硫酸・硝酸・水の3成分系液滴)からなる可能性が高く、同3月にはNAD (Nitric Acid Dihydrate; 硝酸2水和物)、NAT(Nitric Acid Trihydrate; 硝酸3水和塩)粒子である可能性が高いことが明らかになった。また光化学ボックスモデルを活用してPSC上の不均一反応による化学的オゾン破壊率を求めたところ、モデルの推定結果が他の研究者による解析結果に比べ過小評価であることが示された。また、CIONO<sub>2</sub>の時系列から南北両半球における対比が明らかになった。

② アラスカ・ポーカーフラットでのFTIR地上観測を用いたオゾン、硝酸など成層圏大気微量成分の観測に成功した。リトリバルされた2000年から2003年のオゾンは約30 kmに最大値を持ち季節変動した。オゾンは他の観測値と比較し良く一致した。2000年から2003年の硝酸は約20kmに最大値を持ちオゾンと同様に季節変動を示した。硝酸については気温・アプリアリ・Sa・SNに対して誤差解析を行い、初期結果として約20%の誤差と推定された。この範囲で硝酸の季節変動(約50%)は議論可能と考えられる。CIONO<sub>2</sub>はスペクトルのSNが十分大きくないため、現在の解析では十分な信頼性が得られていない。今後リトリバル条件を検討することが必要である。

③ FTIR 観測における高度分布解析手法ならびに高度分布解析時に重要となる装置関数の評価と解析時の補正の効果について検討を行った結果、SFIT2 を用いて高度分布を導出する際、各パラメータの調整以前にまずガスセル測定結果から求めた装置関数の補正を行うことが重要であることが分かった。また、装置関数は経年変化するので定期的にチェックする必要があること、Modulation、Phase の二つの補正項のうち Modulation の補正効果が大きいこともわかった。光軸のずれの大きさによってはセル測定結果では補正しきれない場合があることもわかった。

④ 2003年、2004年の観測を通じて、極渦内の高度26kmまでの領域について、半径0.056mm以上のエアロゾルの代表的な粒径分布が直接観測によって詳細に捉えられた。おのおの、2種類の光散乱式粒子計数装置を用いて北極域Ny-Aalesund(79°N, 12°E)において高度25kmまでの観測を行い、ライダーの同時観測との比較を行った。その結果、極成層圏雲の出現していない状態で、成層圏エアロゾル群について半径0.056~0.1 μmの粒径領域の粒子の532nmにおける後方散乱の寄与は少なくとも数10%あり、特に、冬季の極域の20kmより上空では、ほとんど100%になることが明らかになった。このことから、1 μmより短い波長の後方散乱係数や消散係数から粒径分布やエアロゾル量を求めるためには、この粒径領域の直接観測データの蓄積が重要であると考えられる。

さらに、ILAS、ILAS-IIの観測結果との比較検討を進めることにより、それらの遠隔光学計測結果をより正確に理解することができるようになる。これらのエアロゾルは、極成層圏雲の雲核として作用すると考えられるものであり、気球観測、ライダー、衛星観測データを比較・解析することにより、PSCsの形成、発達過程についての検討を進めている。

⑤ ILAS-II検証実験の一環として2002年8月のアラスカにおいてオゾンゾンデキャンペーン観測を行い、上部対流圏・下部成層圏のオゾン変動を捉えた。特に成層圏重力波によるオゾン変動の位相構造は、これまでに例のない3時間毎観測ではじめて捉えられた。重力波による水平移流のオゾン変動への寄与は、鉛直移流と同等かそれ以上であることが示された。

## 8. 国際共同研究等の状況

カナダ衛星SCISAT-1衛星が現在軌道上にあり、搭載大気化学ミッションACE(Atmospheric Chemistry Experiment; ウォータールー大学ピーター・バーナース教授)地上検証実験に参加している。同衛星は赤外分光計を搭載し、本課題の対象である地上データによる検証、比較研究は国際的にも期待されている。

## 9. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表(学術誌・書籍)

<学術誌(査読あり)>

- ① Hayashida, S., and M. Horikawa, Anti-correlation between the extinction and the Angstrom parameter of the stratospheric aerosol based on the multiple wavelength measurements with SAGE II – as a characteristic of the decay period following major volcanic eruptions -, *Geophysical Research Letters*, Vol.28, No.21, 4063-4066, doi:10.1029/2000GL012826, 2001.
- ② N. Saitoh, S. Hayashida, Y. Sasano, and L. L. Pan: *J. Geophys. Res.*, 107, 10.1029/2001JD 000595 (2002), “Characteristics of Arctic polar stratospheric clouds in the winter of 1996/1997 inferred from ILAS measurements”
- ③ L. L. Pan, W. J. Randel, H. Nakajima, S. T. Massie, H. Kanzawa, Y. Sasano, T. Yokota, T. Sugita, S. Hayashida, and S. Oshchepkov: *Geophys. Res. Lett.*, 2002, in press, “Satellite Observation of Dehydration in the Arctic Polar Stratosphere”
- ④ Mizutani, K., T. Itabe, M. Yasui, T. Aoki, S. Ishii, M. Sasano, Y. Murayama, R. L. Collins, Lidar instruments for the observations of the arctic atmosphere in Alaska-project, *J. Comm. Res. Lab.*, Vol.49, No2, pp.185-190, 2003.
- ⑤ Murayama, Y., H. Mori, M. Ishii, M. Kubota, S. Oyama, M. Yamamoto, K. Seki, K. Mizutani, S. Ochiai, T. Kikuchi, K. Nozaki, K. Igarashi, H. Masuko, T. Itabe, R. W. Smith, M. Conde, B. J. Watkins, R. L. Collins, H. C. Stenbaek-Nielsen, W. R. Simpson, V. Bedford, J. Harrison, F. Williams, S. -I. Akasofu, CRL Alaska Project - International Collaborations for observing Arctic atmosphere environment in Alaska -, *J. Comm. Res. Lab.*, 49, 2, 143-152, 2003.
- ⑥ Seki, K., Y. Kasai, Y. Murayama, K. Mizutani, T. Itabe, Frank J. Murcray, William R. Simpson, Steven A. Lloyd, Trace Gas Observation with Poker Flat FTIR, *J. Comm. Res. Lab.*, 49, 2, 191-200, 2003.
- ⑦ Kagawa, A., S. Hayashida, Analysis of ozone loss in the Arctic stratosphere during the late winter and spring of 1997, using the Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT) technique., *Journal of Geophysical Research*, Vol.108, No.D22, 1-20, doi:10.1029/2002JD002824, 2003.

<学術誌(査読なし)>

- ① 坂野井和代, 村山泰啓, Richard L. Collins, 水谷 耕平, ボーカーフラット・レイリー・ライダー観測データに見られる波動構造、平成14年度名古屋大学太陽地球環境研究所・通信総合研究所研究集会「中間圏・熱圏・電離圏研究会」収録、2002.

- ② Murata, I., N. Kobayashi, H. Nakane, and H. Fukunishi, The effect of the arctic ozone depletion observed at Tsukuba, Japan in February 2001 (Extended Abstract), *Tohoku Geophys. Journ.*, Vol. 36, No. 4, 498-500, 2003.(5月)
- ③ 雨宮百合子、齋藤尚子、林田佐智子、林政彦、白石浩一、柴田隆、岩坂泰信、山内恭、平沢尚彦、笹野泰弘: 第11回大気化学シンポジウム講演集、「ILAS及びライダーデータを用いた極成層圏雲の解析」
- ④ 齋藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘: 第12回大気化学シンポジウム講演集、「衛星データを用いた北極および南極初期PSCsの形成過程とその組成について」
- ⑤ 村田功、福西浩、中根英昭、中島英彰、地上赤外分光観測より導出したオゾン高度分布の精度、第13回大気化学シンポジウム研究集会講演集、p41、名古屋大学太陽地球環境研究所、2003.(4月)
- ⑥ 村田功、中根英昭、中島英彰、福西浩、FT-IRによる大気微量成分高度分布観測における装置関数補正の効果、第14回大気化学シンポジウム研究集会講演集、p219、名古屋大学太陽地球環境研究所、2004.(4月)
- ⑦ 水谷耕平、板部敏和、安井元昭、青木哲郎、石井昌憲、篠野雅彦、村山泰啓、Richard L. Collins, アラスカプロジェクトにおけるライダー観測装置、*通信総合研究所季報*, 48, 2, 165-170, 2002.
- ⑧ 村山泰啓、森弘隆、石井守、久保田実、大山伸一郎、山本真行、關浩二、水谷耕平、落合啓、菊池崇、野崎憲朗、五十嵐喜良、増子治信、板部敏和、Roger W. Smith, Mark Conde, Brenton J. Watkins, Richard L. Collins, Hans C. Stenbaek-Nielsen, William R. Simpson, Virginia Bedford, Jeff Harrison, Frank Williams, 赤祖父俊一、アラスカ・プロジェクトーアラスカにおける北極域大気環境観測の国際共同研究ー、*通信総合研究所季報*, 48, 2, 127-134, 2002.
- ⑨ 落合啓、ミリ波ラジオメータの開発と成層圏観測、*通信総合研究所季報*, 48, 2, 181-188, 2002.
- ⑩ 關浩二、笠井康子、村山泰啓、水谷耕平、板部敏和、Frank J. Murcray, William R. Simpson, Seven A. Lloyd, Poker Flat FTIRによる大気微量成分の観測、*通信総合研究所季報*, 48, 2, 171-179, 2002.

<報告書類等>

- ① 林田佐智子、「光学リモートセンシングによる成層圏エアロゾルおよびオゾンの研究」ー2002年度堀内賞記念講演一、*天気*, Vol.50, No.6, 415-423, 2003.

(2) 口頭発表

- ① Hayashida, S., "ILAS contributions to PSC study - composition inference of PSCs observed over the Arctic", Seminar at Atmospheric Chemistry Division, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, 2001.
- ② 濱村翠・香川晶子・林田佐智子・笹野泰弘、ILASを用いた成層圏大気微量成分の解析 I. 硝酸と二酸化窒素の比について、2001年日本気象学会春季大会、東京、5月8-10、2001
- ③ 關浩二 他、第7回大気化学討論会（滋賀県）、2001年5月。
- ④ 村田功 他、第7回大気化学討論会、滋賀県、2001年5月。



- ⑤ Shibasaki, K., *et al.*, IAMAS, Austria, 10 June 2001.
- ⑥ 關浩二 他、第1回分子分光研究会（東京大学）、2001年11月17日。
- ⑦ 關浩二 他、地球電磁気・地球惑星圏学会 第110回総会・講演会、2001年11月23日。
- ⑧ 雨宮百合子 他、第11回大気化学シンポジウム(2001)。
- ⑨ 雨宮百合子・林田佐智子・林政彦・白石浩一・柴田隆・岩坂泰信・山内恭・平沢尚彦・笹野泰弘、ILAS 及びライダーを用いた極域成層圏雲の解析、2001年日本気象学会秋季大会、岐阜、10月10-12、2001
- ⑩ 河瀬祥子・香川晶子・林田佐智子、化学ボックスモデルと流跡線を用いた成層圏大気微量成分の分布再現、2001年日本気象学会秋季大会、岐阜、10月10-12、2001
- ⑪ 香川晶子・河瀬祥子・林田佐智子、化学ボックスモデルを用いた1997年冬/春季北極域オゾン破壊量の見積もり、2001年日本気象学会秋季大会、岐阜、10月10-12、2001
- ⑫ 齋藤尚子・林田佐智子・笹野泰弘、流跡線解析を用いた極成層圏の化学組成の考察、2001年日本気象学会秋季大会、岐阜、10月10-12、2001
- ⑬ 濱村翠・香川晶子・林田佐智子・笹野泰弘、ILASを用いた成層圏大気微量成分の解析 II.OHの見積もり、2001年日本気象学会秋季大会、岐阜、10月10-12、2001
- ⑭ 關浩二 他、大気化学シンポジウム(豊橋)、2001年12月03日。
- ⑮ 齋藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘、衛星データを用いた北極および南極初期PSCsの形成過程とその組成について、第12回大気化学シンポジウム、豊橋、12月3-5、2001
- ⑯ 河瀬祥子・香川晶子・林田佐智子、成層圏大気微量成分の分布再現ー化学ボックスモデルと流跡線を用いてー、第12回大気化学シンポジウム、豊橋、12月3-5、2001
- ⑰ Murata I., *et al.*, NDSC 2001 Symposium, Arcachon, France, Sept., 2001.
- ⑱ Shibasaki, K., *et al.*, NDSC2001 SYMPOSIUM, Arcachon, France, 24 Sept. 2001.
- ⑲ 村田功 他、第110回地球電磁気・地球惑星圏学会講演会、福岡、2001年11月。
- ⑳ 村田功 他、第12回大気化学シンポジウム、豊橋、2001年12月。
- ㉑ 濱村翠・香川晶子・林田佐智子、衛星データを用いた極域成層圏のOHの見積り、第12回大気化学シンポジウム、豊橋、12月3-5、2001
- ㉒ Saitoh, N., *et al.*, American Geophysical Union 2001 Fall Meeting, California, USA, 12 Dec. 2001.
- ㉓ Seki, K., *et al.*, American Geophysical Union 2001 Fall Meeting, California, USA, 12 Dec. 2001.
- ㉔ 笠井 康子、田辺 千寿子、保立 佳之、村山 泰啓、水谷 耕平、増子 治信、アラスカ州フェアバンクスにおけるFTIR観測、大気化学シンポジウム、2001.
- ㉕ 香川晶子、河瀬祥子、林田佐智子、化学ボックスモデルを用いた1997年冬/春季北極域オゾン破壊の考察、第12回大気化学シンポジウム、豊橋、12月3-5、2001.
- ㉖ 落合 啓、入交 芳久、増子 治信、New millimeter-wave radiometer for ozone and ClO observation at Eureka, NDSC (Network for the Detection of Stratospheric Change) 2001 Symposium, 2001
- ㉗ Hayashida, S. and M. Horikawa Climatology of the Stratospheric Aerosol Angstrom Parameter : Anti-correlation to the Extinction and Latitudinal Variation, AGU fall meeting, San Francisco, 10-14 December, 2001.
- ㉘ Kagawa, A. and S. Hayashida, Ozone loss in the Arctic stratosphere during late-winter/spring of 1997 : application of a technique of Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT) to Improved

- Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) data, AGU fall meeting, San Francisco, 10-14 December, 2001.
- ②⑨ Naoko Saitoh, Sachiko Hayashida, Yasuhiro Sasano (National Institute for Environmental Studies), Characteristics of Polar Stratospheric Clouds inferred from ILAS measurements Inferring the Observed PSC Composition Using the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) Data Along With Trajectory Analysis, AGU Fall Meeting, San Francisco, California, 10-14 December 2001.
  - ③⑩ Shibasaki, K., Y. Kasai, S. Ochiai, M. Yasui, K. Mizutani, Y. Murayama, FTIR measurements at Poker Flat, Alaska, International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences, 2001.
  - ③⑪ Hayashida, S., A. Kagawa, S. Kawase, and N. Saitoh, Arctic winter/spring in 1997: Estimate of ozone loss by the Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT) technique with PSC characterization, Arctic Ozone Workshop, Potsdam, Germany, 4-6 March 2002.
  - ③⑫ Hayashida, S., Kagawa, A. and Kawase, S., Chemical Mapping on Trajectories - An approach to understanding chemical ozone loss, the 4th ILAS-II Science Team Meeting, Osaka, 19-21 March 2002.
  - ③⑬ Naoko Saitoh, Sachiko Hayashida, Chemical composition of PSCs using the ILAS visible extinction data, The 4th ILAS-II Science Team Meeting, Osaka, 19-21 March 2002.
  - ③⑭ 林田佐智子、「成層圏化学の残された課題」、気象学会春季大会、埼玉、5月21-23, 2002
  - ③⑮ 笠井康子 他、2002年気象学会 春季大会(埼玉県)、2002年5月22日。
  - ③⑯ 河瀬祥子・香川晶子・林田佐智子、成層圏大気微量成分の分布再現手法の開発と信頼性の検討、第8回大気化学討論会、洞爺湖、6月6-8, 2002.
  - ③⑰ 笠井康子 他、第8回大気化学討論会、2002年6月6日。
  - ③⑱ 林田佐智子,香川晶子,河瀬祥子, Chemical Species Mapping on Trajectories : 衛星データを用いた化学同化モデルの新しい手法、第8回大気化学討論会、洞爺湖、6月6-8, 2002
  - ③⑲ 關浩二 他、地球惑星科学関連学会 2002年合同大会(東京都)、2002年5月30日。
  - ④⑰ 雨宮百合子、林田佐智子、林政彦、白石浩一、柴田隆、岩坂泰信、山内恭、平沢尚彦: 2002年度日本気象学会秋季大会、2002年10月9~11日、「1997年冬季ドームふじ上空で観測された極域成層圏雲」
  - ④⑱ 香川晶子、河瀬祥子、林田佐智子、1997年冬/春季北極極渦内のオゾン破壊の進行状況- 光化学ボックスモデルと流跡線を用いて -、日本気象学会秋季大会、北海道大学、10月9~11, 2002.
  - ④⑲ 齋藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘、97年冬季南極で観測された極成層圏雲の特徴について、日本気象学会秋季大会、北海道大学、10月9~11、2002.
  - ④⑳ 香川晶子、極域オゾン破壊における観測とシミュレーションの不一致、気象学会秋季大会のオゾン研究連絡会、北海道、10月9, 2002.
  - ④㉑ Akiko Kagawa, Sachiko Kawase, and Sachiko Hayashida(Nara Women's Univ.) Arctic ozone loss in the late winter/spring of 1997 analyzed by the Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT) technique, MACS seminar, Kyoto (Kyoto University), 16-17 November, 2002.
  - ④㉒ 齋藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘: 2002年度日本気象学会秋季大会、札幌、2002年10月9~11日、「97年冬季南極で観測された極成層圏雲の特徴について」
  - ④㉓ 雨宮 百合子、林 政彦、白石 浩一、林田 佐智子、柴田 隆、岩坂 泰信、平沢 尚彦、山内 恭:

第25回極域気水圏シンポジウム、2002年11月9～11日、「1997年冬季にドームふじ上空で観測されたPSCsの形成過程」

- ④7 Murayama, Y., et al., International cooperative project of the arctic middle and upper atmosphere observation in Alaska by CRL and GI/UAF, 3rd International Workshop on Global Change: Connection to the Arctic 2002 (GCCA3), 2002.
- ④8 關 浩二, 笠井 康子, 村山 泰啓, 水谷 耕平, 板部 敏和, F. Murcray, FTIRにより観測されたアラスカ州ポーカーフラットでの一酸化炭素の季節変動, 地球惑星科学関連学会2002年合同大会, 2002.
- ④9 村田 功 他, FTIRを用いた大気微量成分高度分布観測の精度, 日本気象学会2003年度春季大会, 2003年5月.
- ⑤0 村田 功 他, FTIRを用いた地上分光観測による大気微量成分高度分布導出の精度, 第9回大気化学討論会, 2003年5月.
- ⑤1 Murata, I. and H. Nakane, Validation of the ozone profile derived with SFIT2 by comparing with ozonesonde measurements, NDSC Infrared Working Group Meeting, Bremen, Germany, June, 2003.
- ⑤2 Murata, I. et al., Ozone depletion observed at Tsukuba, Japan in February 2001, XXIII General Assembly of the International Union of Geodesy and Geophysics, Sapporo, Japan, July, 2003.
- ⑤3 青木哲郎, 水谷耕平, 坂野井和代, 石井昌憲, 吉岡謙介, R. L. COLLINS, 多波長ライダーのアラスカ大学ポーカーフラット実験場設置, 第22回レーザーセンシングシンポジウム, 2003.
- ⑤4 Collins, R., Lidar observations at Poker Flat, 2003 CEDAR workshop, 2003.
- ⑤5 笠井康子, 遠藤真紀, 関浩二, 神代剛, 村山泰啓, Frank Murcray, アラスカ州ポーカーフラット FTIRによる対流圏COの観測, 地球惑星科学関連学会 2003年合同大会, 2003.
- ⑤6 神代剛, 松本哲也, 谷口弘智, 笠井康子, 関浩二, 村山泰啓, FTIR大気観測データ準リアルタイム自動リトリバルシステムの開発, 地球惑星科学関連学会 2003年合同大会, 2003.
- ⑤7 Murayama, Y., Mesospheric CO observation by Poker Flat FTIR spectrometer, 2003 CEDAR workshop, 2003.
- ⑤8 齋藤尚子 (林田佐智子代理), ILASで観測された極成層圏雲の組成推定 ―組成インデックスを用いた再解析―, 平成14年度推進費 A-10 課題研究成果発表会, つくば, 3月4, 2003.
- ⑤9 林田佐智子, CSMTを使ったILAS-II検証解析の計画, 第5回 ILAS-II サイエンスチームミーティング, つくば, 3月4-5, 2003.
- ⑥0 林田佐智子, 成層圏大気微量成分の化学―CSMTによる解析―, 物質輸送特別シンポジウム, 京都大学, 3月11, 2003.
- ⑥1 Hayashida, S., Arctic ozone destruction and PSC appearance observed with ILAS/ADEOS in winter and early spring of 1997, AWAJI Symposium and Workshops, AWAJI, 12-14 March, 2003.
- ⑥2 齋藤尚子, 林田佐智子, 中島英彰, 横田達也, 杉田孝史, 小林博和, 笹野泰弘, ILASによる極域成層圏雲の解析およびILAS-II初期観測結果について, 第9回大気化学討論会, 群馬, 5月28-30, 2003.
- ⑥3 關 浩二, 笠井 康子, 村山 泰啓, 水谷 耕平, 板部 敏和, 神代 剛, F. Murcray, SFIT2を用いたリトリバルにより導出したオゾン高度プロファイルの精度, 第13回大気化学シンポジウム, 2003.



- ⑥④ Sachiko Hayashida, Akiko Kagawa, Sachiko Kawase, Nao Ikeda, and Hideaki Nakajima, Chemical Species Mapping on Trajectories(CSMT): a new scheme of chemical ozone loss analysis using a box model along trajectories, IUGG Assembly, Sapporo, 30 June - 11 July, 2003.
- ⑥⑤ Sachiko Hayashida, Nao Ikeda, Akiko Kagawa, Sachiko Kawase, and Hideaki Nakajima, Chemical ozone loss mechanism in winter/spring in 1997 over the Arctic derived by CSMT analysis: on relevance to the denitrification, IUGG Assembly, Sapporo, 30 June - 11 July, 2003.
- ⑥⑥ Hayashida, S., ILAS version 6.0 ClONO<sub>2</sub> data analysis related to chlorine activation estimate, The 6th ILAS-II Science Team Meeting, Nagoya, 14-16 July, 2003.
- ⑥⑦ 林田佐智子・池田奈生・戸田庸子・中島英彰, 極域オゾン破壊におけるClONO<sub>2</sub>の果たす役割, 日本気象学会秋季大会, 仙台, 10月15-17, 2003.
- ⑥⑧ Hayashida, S., N. Ikeda, Y. Toda, and H. Nakajima, Behavior of ClONO<sub>2</sub> at high latitudes observed with ILAS:inter-hemispheric contrast during the recovery phase of polar ozone depletion, 4th International Workshop on Global Change:Connection to the Arctic 2003 (GCCA4) Collaboration with IARC, Integration of Arctic Climate Research, Toyokawa, Aichi, Japan, 6-7 November, 2003.
- ⑥⑨ Hayashida, S., N. Ikeda, Y. Toda, and H. Nakajima, Behavior of Stratospheric Chlorine Nitrate During a Recovery Phase of Polar Ozone Destruction in both Hemispheres, AGU Fall meeting, San Francisco, 8-12 December, 2003.
- ⑦⑩ 林田佐智子, 池田奈生, 戸田庸子, 中島英彰, ILASで観測されたClONO<sub>2</sub>に基づくNO<sub>y</sub>, Cly分配推定, 第14回大気化学シンポジウム, 豊川, 1月7-9, 2004.
- ⑦⑪ 戸田庸子, 池田奈生, 林田佐智子, 中島英彰, ILASで得られたClONO<sub>2</sub>とHALOEで得られたHClとの比率-オゾン、メタンとの関係, 第14回大気化学シンポジウム, 1月7-9, 2004.
- ⑦⑫ 村田 功、中根 英昭、中島英彰、福西 浩、FT-IRによる大気微量成分高度分布観測における装置関数補正の効果、第14回大気化学シンポジウム、2004年1月。

(3) 出願特許：

なし

(4) 受賞等：

林田佐智子、2002年度堀内賞、「光学 リモートセンシングによる成層圏エアロゾルおよびオゾンの研究」

(5) 一般への公表・報道等：

なし

10. 成果の政策的な寄与・貢献について：

本研究におけるオゾン破壊反応に関する知見のうちSaitoh et al. [2002]はWMO/UNEPによるオゾンアセスメントで言及されている。