

## A-10 衛星観測データを利用した極域オゾン層破壊の機構解明に関する研究

(5) 地上赤外分光データと衛星観測データの比較による成層圏微量成分変動メカニズムの解明に関する研究

独立行政法人国立環境研究所

E Fフェロー

Alexandra Griesfeller

(受け入れ研究者) 成層圏オゾン層変動研究プロジェクト

中島英彰

平成16～18年度合計予算額	3,600千円
(うち、平成18年度予算額)	1,800千円)

[要旨] 太陽掩蔽衛星搭載センサーである改良型大気周縁赤外分光計Ⅱ (ILAS-II) は、ILASの後継機として日本の環境省 (MOE) によって開発された。ILAS-IIは、2002年12月に環境観測技術衛星・みどりⅡ (ADEOS-II) に搭載されて打ち上げられ、2003年1月～10月に計測を行った。地上フーリエ変換赤外分光 (FTIR) 測定は、ILAS-II検証の一部としてキルナ (スウェーデン北部、北緯68度東経20度) で行われた。 $O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ の地上観測鉛直プロファイルは、ILAS-IIバージョン1.4 (V1.4) リトリーバルアルゴリズムによって処理されたデータと比較された。その結果得られた4つのガス全ての平均相対差異は、比較件数が少ないものの10-15%以内であった。これを補うために、欧州環境監視衛星ENVISAT搭載のMIPASからのデータを比較に利用した。 $O_3$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ 、 $H_2O$ について南北両半球での比較を実施した。他の研究に先行して、ILAS-IIバージョン2のデータとの比較も実施した。その結果、V1.4で問題となっていた高度25 km以上での $H_2O$ の低濃度が著しく改善されていることを明らかにした。

[キーワード] 大気組成、中層大気、FTIR、ILAS-II、MIPAS

## 1. はじめに

オゾン ( $O_3$ )、硝酸 ( $HNO_3$ )、亜酸化窒素 ( $N_2O$ )、メタン ( $CH_4$ )、水蒸気 ( $H_2O$ ) は、気候変動、下部成層圏でのオゾン破壊プロセス、地球温暖化において重要な役割を果たしている微量成分である。 $O_3$ は、特に重要である。 $O_3$ は成層圏内カラム量の90%に対し、対流圏では僅か10%が存在する。 $O_3$ は、成層圏において太陽からの紫外線を吸収し、この放射が地球に届かないようにしている。 $HNO_3$ は、成層圏オゾン化学におけるもう一つの重要成分であり、極成層圏雲 (PSCs) の化学的・物理的性質を決定することから、成層圏オゾン化学において中心的役割を果たしている。 $N_2O$ は、長寿命かつ鉛直に層を成す成分であり、力学的研究に有用な成分である。これは、 $CO_2$ よりもはるかに大きな温暖化係数を持つ温室効果ガスでもある。 $N_2O$ と同様に、 $CH_4$ は対流圏温室効果ガスであるが、 $N_2O$ ほど長寿命ではない。地球温暖化に対するその影響は $N_2O$ より大きく、その増加率は、他の温室効果ガスよりずっと大きい。

ドイツ気象研究所 (IMK) は、スウェーデン宇宙物理協会 (IRF) 及び日本の名古屋大学と協力して、1996年から北部スウェーデンのキルナ (北緯68度、東経20度) で地上フーリエ変換赤外分光計を運用している。分光計による計測は、幾つかの微量成分のプロファイルとカラム量をもた

らす。キルナの計測局は、しばしば極渦内になるために極渦内化学過程の研究に利用される。短い極夜は、比較的長期の太陽観測を可能にする。気象条件は、常に冷たく乾燥しており、良質な赤外分光データをもたらしてくれる。更に、キルナの充実したインフラやアクセスの良さから、多くの研究プロジェクトのための場所となっている。最後にキルナは、成層圏変化検出ネットワーク (NDSC) の一部で、特定の研究プロジェクトに限定されず継続的地上計測を記録する。こうした継続的計測は、衛星データ実証の優れた統計的基礎を提供する。このネットワークの一部として行われる計測の品質は、全ての観測機器に採用することになっている検証プロトコルにより保証されている (Kurylo, 1997)。またマイクロ波機器と過去の独立比較 (Kopp他, 2002)、オゾンゾンデとBrewer分光器 (Schneider他, 2005)、衛星機器 (Griesfeller, 2004)、FTIR相互比較 (Meier他, 2005) から、FTIRの結果が検証され、衛星データ検証を実施できるように確立されたことが分かった。

一方、アリアンロケット5号に搭載され、クールー (フランス領ギアナ) から2002年3月に打ち上げられたENVISATは、10の観測器を搭載している。ENVISATは、これまでにESA (欧州宇宙機関) によって開発された最大の衛星である。これらの10の観測器のうちの3つは、大気科学のための観測器である。MIPAS (受動型大気観測用マイケルソン干渉計)、SCIAMACHY (大気成分地図作製用走査型撮像分光計)、GOMOS (恒星掩蔽全球オゾン監視センサ) は、異なった測定技術と測定ジオメトリーを使用して、異なった大気成分についての情報を提供する。本研究では、2003年5月～10月の期間において、MIPAS-EnvisatとILAS-IIのデータから導き出された鉛直プロファイルの間の違いを調べた。

## 2. 研究目的

地球観測技術衛星-II (ADEOS-II) は、2002年12月14日10:31a.m. (日本標準時) に種子島宇宙センターから、H-IIAロケット4号機に載せて打ち上げられた。その5つの機器の1つが、ILASを引き継ぐ改良型大気周縁赤外分光計-II (ILAS-II) で、日本の環境省 (MOE) によって開発された。これは、日本の宇宙開発事業団 (NASDA) (最近宇宙航空研究開発機構 (JAXA) として再編された) のADEOS-II衛星に搭載されて運用されている (Nakajima他, 2006)。ILAS-IIは、幾つかの微量成分の鉛直プロファイルを取得した。ILAS-IIは、2003年1月～3月の断続測定に加えて、2003年4月～10月には継続的に機能した。

本研究は、このILAS-IIのデータ質評価のために、フーリエ変換赤外分光器データのリトリーバルから得た鉛直プロファイルとILAS-IIから検索した鉛直プロファイルの差異を調査した。また、衛星間比較として、ENVISAT搭載のMIPASとの比較を実施した。

## 3. 研究方法

### (1) 地上FTIR

FTIR計測は、スペクトル分解能が約 $0.003\text{ cm}^{-1}$ のBruker IFS 120HR分光器によって行われた。2つの検出器 (テルル化カドミウム水銀 (MCT) 及びアンチモン化インジウム (InSb)) とNDSC光学フィルターセットは、放射線源である太陽のスペクトル域 $700\sim 5000\text{ cm}^{-1}$ をカバーする。実験の詳細は、他で発表した (Blumenstock他, 1997, Kopp他, 2002)。測定したスペクトルは、データ処理コードPROFFITバージョン9.2 (Hase, 2000, Hase他, 2004) と放射伝達モデルKOPRA

(Karlsruhe最適化精密放射転送アルゴリズム)を用いて評価した(Stiller他, 1998)。PROFFITは、高分解能地上FTIRスペクトロメータで計測された太陽吸収スペクトルを解析するために開発され、他の検索コードと比較された(Hase他, 2004)。PROFFITには、*a priori* プロファイルのスケーリング、Tikhonov-Phillips法(Tikhonov, 1963、Phillips, 1962)、最適推定法(Rodgers, 1976)などの様々な検索オプションがある。 $O_3$ 、 $H_2O$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ 、 $HF$ 、 $HCl$ 、 $ClONO_2$ 、 $NO$ 、 $NO_2$ 、 $HNO_3$ などの微量成分のカラム濃縮は、個々の吸収線から得られる。吸収線の圧力広がりプロファイル取得用に用いることで、 $O_3$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ 、 $HF$ 、 $HCl$ 、 $NO$ 、 $HNO_3$ などの圧力依存型吸収サインを持つ成分の鉛直体積混合比(VMR)が得られる。垂直解像度は、地上(0km)~30kmで約8~10kmである。BirkとWagner, 2000、Wagner他, 2002からの分光分析データをPROFFIT  $O_3$ に用いた結果、ILAS-IIとFTIRの分光分析データに差異があった。BirkとWagner, 2000、Wagner他, 2002からのデータは、HITRAN 2004にも加えられたために、FTIR分光分析データは、 $O_3$ のHITRAN 2004に等しい。 $N_2O$ リトリバルには、高分解能透過(HITRAN) 2000データベースを用いた(Rothman他, 2003)。FTIR解析に用いられた $HNO_3$ スペクトル編集は、ILAS-IIに用いられた線リストにほぼ等しい(HITRAN 2000)が、FTIR用の同じ分光分析データと全く同じではなく、線強度を比較すると、1.5%以内かそれ以上で一致した。HITRAN 2004は、Brown他, 2003から応用した補正と共に、 $CH_4$ リトリバルのために用いた。FTIRデータの評価に用いられる圧力と温度のプロファイルは、ゴダード宇宙飛行センターのオートメーラー・システムから得た。微量成分高度分布気候値プロファイルは、RemediosとParkes, 2003によって編集した。

## (2) ILAS-II

太陽掩蔽測定器である改良型大気周縁赤外分光計-II(ILAS-II)は、ILASの後継機として日本の環境省(MOE)が開発した。ILAS-IIは、2002年12月に地球観測技術衛星-II(ADEOS-II)に搭載されて打ち上げられ、2003年2月~10月に計測を行った。ADEOS-IIは、傾斜角98.7度、高度802.9kmの太陽同期極軌道に投入された。計測は、2003年1月~10月に各半球で1日約14回行われた。緯度範囲は、季節によって異なるが、北緯54~71度、南緯64~88度である。タンジェントポイントでの赤外(IR)分光計の瞬時視野角(IFOV)は、垂直に1.0km、水平に13.0kmである。ILAS-IIは4つの分光計を搭載しており、IR(850-1610  $cm^{-1}$ )、MIR(1754-3333  $cm^{-1}$ )、HRIR(778-782  $cm^{-1}$ )及びVIS(12755-13280  $cm^{-1}$ )の高分解能で計測を行なった。ILAS-IIは太陽掩蔽法を用いて、 $O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $NO_2$ 、 $CH_4$ 、 $H_2O$ 、 $ClONO_2$ 、 $N_2O_5$ 、CFC-11、CFC-12の成層圏鉛直プロファイル、エアロゾル消散係数を計測した。大気微量成分の鉛直混合比プロファイルは、オニオンピーリング計算法によって得た(Yokota他, 2002; 2006)。リトリバルアルゴリズムバージョン1.4からのILAS-IIデータを用いた。リトリバル鉛直グリッド間隔は、1kmであった。垂直解像度は、15~55kmの接線高度で1.3~2.9kmであった(Nakajima他, 2006)。分光分析データは、2001年末までの更新を含むHITRANデータベースの2000年版から採用した(Rothman他, 2003)。ILAS-IIの更なる詳細は、Nakajima他, 2006とYokota他, 2006に発表された。

さらに、MIPASとの比較では、他の研究に先立ち、バージョン2により処理されたデータとの比較を実施した。このバージョン2では、主に北半球(日の出観測モード)の高度25 km以上で見られる $H_2O$ の低濃度の問題の解決を目標とした複雑なデータ処理アルゴリズムに基づいている。

### (3) MIPAS

受動型大気観測用マイケルソン干渉計 (MIPAS) (Fischer, 1992; Fischer and Oelhaf, 1996) は、極軌道衛星Envisatに搭載され、2002年2月28日～3月1日の夜にクーラー (フランス領ギアナ) において打ち上げに成功した。MIPASは、高度12km～68km、スペクトル分解能 $0.035\text{ cm}^{-1}$

(unapodized) の大気周縁放射分光計で、 $4\text{ }\mu\text{m}$ から $15\text{ }\mu\text{m}$  ( $2410\text{ cm}^{-1}$ から $685\text{ cm}^{-1}$ ) の赤外域において、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{ClO}$ 、 $\text{ClONO}_2$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{CFC-11}$ 、 $\text{CFC-12}$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{HNO}_4$ 、 $\text{HOCl}$ 、 $\text{N}_2\text{O}_5$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}$ 、 $\text{O}_3$  の測定を行った。接線高度での水平視野は30km、垂直視野は3kmである。軌道は、高度800kmで太陽同期し、傾斜角 $98.55^\circ$ で1日に14.4周回する。気体のリトリーバルの詳細な説明は、例えば Clarmann et al. (1999a, b, 2001, 2003a, c)、Ridolfi et al. (2000)、Stiller et al. (2002) で見ることができる。ILAS-IIデータの検証には、オフラインの科学利用向けデータを使用した。これらのデータは、公式のESAの運用処理結果とは違っていた。このオフラインデータ処理は、スペイン (グラナダ) のアンダルシア天体物理学研究所 (IAA) と協力して (Funke et al., 2001)、ドイツのカールスルーエにある気象気候研究所・カールスルーエ研究センター (IMK) で開発された (Clarmann et al., 2003b, c)。これは、リトリーバル用フォワードモデルとしてカールスルーエ最適化精密放射伝達アルゴリズム (KOPRA) を使用する (Höpfner et al., 1998; Stiller et al., 1998; Stiller, 2000)。MIPASは、2002年7月から2004年3月末まで継続的に測定を行った。測定は、干渉計の動作速度の不安定性の調査後、2005年初めに再開された。MIPASには、Flaud et al. (2003) の分光データセットを使用した。

ILAS-II測定が行われた大きなスペクトル域とは対照的に、MIPAS測定 of 狭波長帯では、いわゆるマイクロウィンドウを使用した。

## 4. 結果・考察

### (1) 地上FTIR

キルナでのFTIR観測は、2003年1月～10月の89日に行われた。この期間にILAS-II観測は、キルナの500km以内の50日に行われた。空間500km、時間12時間の一致基準を用いると、19の一致が見られた。これらの一致基準を選択し、更に信頼できる統計値を得るために、一致の数を増やした。この比較に用いた4つ全てのガスは、長命種で、空間規模及び時間的尺度において大きな変動はない。これら19日のうちの1つであるキルナの2003年3月20日はキルナは極渦の縁であったのに対し、ILAS-II測定点は極渦内であった。等エントロピーポテンシャル渦度 (IPV) における差異は、約 $10 \times 10^{-6}\text{ K} \cdot \text{m}^2/\text{kg} \cdot \text{s}$ で、傾斜は非常に大きかった。IPVにおける大きな差異は、2つの測定点間の大きな気塊差異を示唆していることから、この日はILAS-IIとFTIRの比較から除外した。他の18日では、極渦内の相対位置から生じる差異は、取るに足りないものと考えられる。2つの計測からのリトリーバルは直接比較され、ILAS-IIプロファイルの鉛直プロファイルは、地上プロファイルより著しく良いということが、既に明らかになった。ILAS-IIプロファイルの鉛直プロファイルは、2つのプロファイル間の比較を容易にするために、高度分解能を低下させた。そのために、ILAS-IIプロファイルをフォワード計算コードKOPRA (Stiller他, 1998) に投入することで、高度方向になまらせた。FTIR 混合比プロファイルは、ILAS-IIの最も低い接線高度の下にも加えられた。最も低い接線高度は、大半の日で13～15kmであった。プロファイルは、FTIR観測で行われたように、PROFFITによるこれらの合成スペクトルから抽出した。この処理は、FTIR分解能でのILAS-IIプロ

ファイルをもたらすが、同じ処理はENVISATデータ (Griesfeller, 2004) や $O_3$ ゾンデデータ (Schneider他, 2005) との比較に用いられた。しかし、ここで留意すべきは、上記で述べた平滑化法でのILAS-II結果に適用された制約は、地上リトリバルに用いられる設定と同じであるから、これらの選ばれた制約に依存する平滑化エラー (重み関数) は、打ち消されるということである。この平滑化法で、同様の*a priori*プロファイル、及び温度や圧力の同様の鉛直プロファイルは、平滑化したILAS-II混合比プロファイル及びFTIR混合比プロファイルの両方に用いられる結果、両プロファイルは、同じ重み関数を生成する。

### 1) オゾン

図1は、ILAS-IIによる $O_3$ プロファイル (バージョン1.4により抽出された) と2003年9月10日にキルナで得られた地上FTIR計測の比較である。極渦が9月の微量成分には殆ど影響しないことから、この例が選ばれた。水平差異は僅か138 km、ILAS-IIの最も低い接線高度は13 kmで、データセットの中で最も低い接線高度の1つであった。図1の右図は、平滑化したILAS-IIプロファイルとFTIRプロファイルの差異を示している。ILAS-II計測は、ほぼ全プロファイルでFTIR計測より若干小さかった。最も大きな絶対的不一致と相対的不一致は、それぞれ35 kmで0.7 ppmv、26-29kmで12.5%であった。

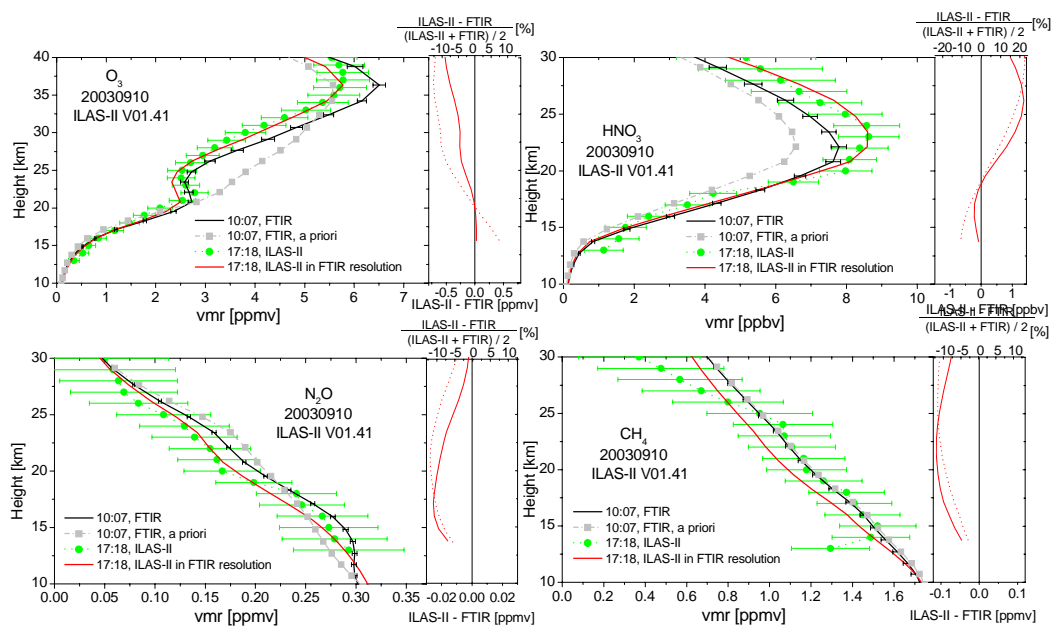


図1 2003年9月10日のキルナでのFTIRとILAS-IIによる $O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ の混合比プロファイルの比較。黒色実線はFTIR計測、灰色線はFTIRリトリバルに用いられる*a priori*プロファイルである。緑色点線はILAS-II計測、赤色実線は、本文で述べたようにFTIR高度分解能におけるILAS-II計測を表している。FTIRと平滑化したILAS-IIの差異は、右側に混合比VMR (実線) と% (点線) の単位と共に示した。

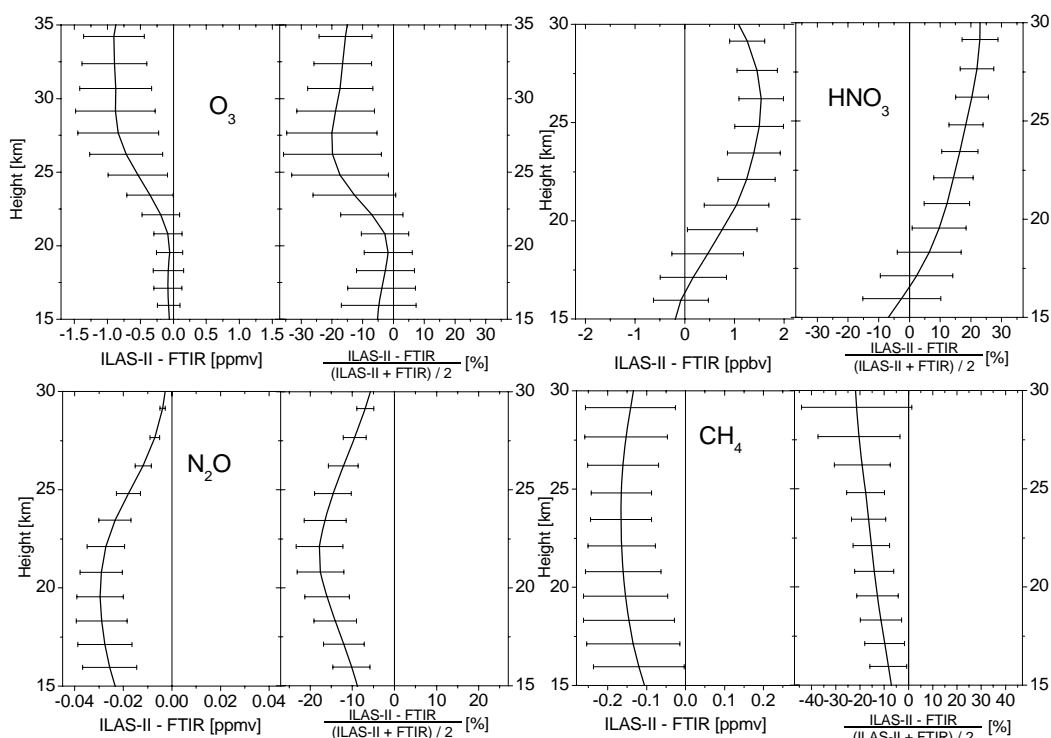


図2 キルナでのFTIR及び平滑化ILAS-II計測による18の一致した $O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ の混合比プロファイルの統計。平均差と標準偏差を示した。

図2は、 $O_3$ の全18ケースの比較統計結果を示している。黒色線は、FTIRプロファイルと平滑化したILAS-IIプロファイルの平均差を示している。エラーバーは、標準偏差を表す。2003年9月10日の例にあるように(図1)、平滑化したILAS-II計測は、18全ての一致でFTIR計測よりも小さかった。22 kmより下の差異は、非常に小さい( $< 0.1$  ppmv もしくは  $< 5\%$ )。22 kmより上では、差異は0.9 ppmv、20%に増加した。

FTIR  $O_3$ データは、かつてBrewer分光器のような異なった機器で他の計測との比較が行われたが(Schneider他, 2005)、差異は非常に小さいか、Griesfeller, 2004におけるMIPAS-ENVISATのような衛星計測の比較が行われた際は、カラム量では、相対差は小さく5%に満たないが、鉛直プロファイルでは、約10%を示した。この衛星データを実証する他の機器(ライダー、オゾンゾンデなど)も、FTIR-MIPAS比較を裏付ける同じ差異を検出した。また並列比較(Meier他, 2005)も、ここで論じた4つのガス全てに対し、非常に高い精度を示した。

FTIRとILAS-IIの差異の幾つかは、異なった計測時間に起因する可能性がある。というのも $O_3$ で予想される空間と時間、特に大部分の一致が見られる9月と10月には、大きな変動がなかったからである。もう一つの理由は、FTIRとILAS-IIの解析に用いられる波長窓領域が異なるからかも知れない。ILAS-IIは、大きなスペクトル域上の吸収を計測した。本論文で検証した4つのガスは、波長 $850-1610\text{cm}^{-1}$ でのチャンネル1データ及び低いスペクトル分解能で計測された。多対照的に、FTIR計測のスペクトル分解能は高く、波長域(マイクロウィンドウ)は狭い。狭い波長域のスペクトルは、プロファイル・リトリーバルに用いられた。

## 2) 硝酸

図1は、2003年9月10日にキルナで計測された、平滑化したILAS-IIからの $\text{HNO}_3$ プロファイルと地上FTIRプロファイルとの比較である。平滑化したILAS-II  $\text{HNO}_3$  混合比は、18kmより上でFTIRプロファイルより大きな値を示した。FTIRと平滑化したILAS-IIプロファイルの最も大きな差異（赤色実線）は、バイアスが約1.3 ppbv (20-22%)の24-30km付近で生じた。図2は、 $\text{HNO}_3$ の全18ケースの統計比較結果を示している。左側は絶対差(ppbv)、右側は、相対差(%)を示している。差が23%に増加する26 kmより上を除いて、差は20%より少なかった(1.5 ppbv)。平滑化したILAS-II計測のバイアスは、17 kmより上で正であった。

## 3) 亜酸化窒素

図1は、 $\text{N}_2\text{O}$ の混合比プロファイル計測を示している。 $\text{O}_3$ の場合のように、ILAS-IIから得た $\text{N}_2\text{O}$ の混合比は、全ての高度でFTIRより小さかった。最も大きい絶対差と相対差は、それぞれ15-20 kmでは0.02 ppmvを超え、20-22kmではほぼ12%だった。2003年9月10日の例は、典型的だった。ILAS-IIからの平滑化した混合比は、全ての高度での全アンサンブルのFTIR計測より小さかった(図2)。最も大きな差は、19-22kmで0.03 ppmvであった(16-18%)。22 kmより上では、差は小さかった。 $\text{N}_2\text{O}$ の比率差は、 $\text{O}_3$ と $\text{HNO}_3$ の比率差とに類似していた。

## 4) メタン

図1は、2003年9月10日のキルナでの $\text{CH}_4$ 計測を示している。またもや平滑化したILAS-II混合比は、FTIRプロファイルからの混合比より小さかった。最も大きな差は、20-23kmで生じ、絶対差と相対差は、それぞれ0.12 ppmv、12%であった。平滑化したILAS-IIプロファイルの混合比は、元のILAS-IIプロファイルより小さかった。我々は、これらの差は最も低い接線高度の混合比のせいではなく、むしろ25kmより上の、ILAS-IIプロファイルの小さな混合比のせいである可能性があるかと判断した。この1例の観測された差は、他の18ケースの差に類似していた。全体として、最も大きな差は20-26kmで生じ、絶対差と相対差の値は、それぞれ0.16 ppmv、21%であった(図2)。

### (2) MIPAS

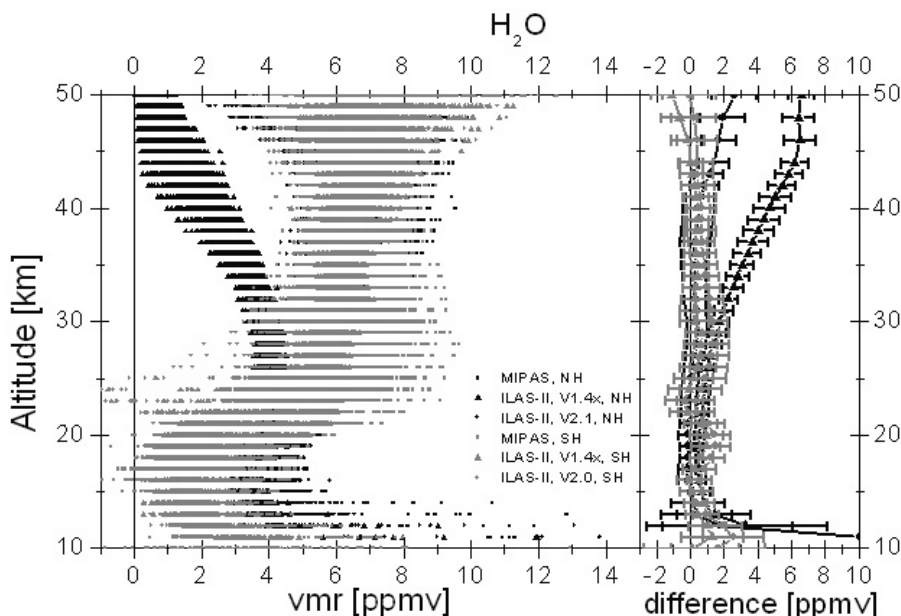
$\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{CH}_4$ に関しては、空間で±300km、時間で±12時間の一致する基準を、 $\text{O}_3$ に関しては、空間で±300km、時間で±6時間の一致する基準を用いたが、表1に示したように、これらの気体でみられた一致の数は違っていた。北半球と南半球の空間と時間における平均距離に加えて、一致の数も、表1に載せた。これらの一致する基準は、一致の数が増加するように選んで、信頼できる統計値を得た。この章の北半球(NH)で得た全てのILAS-IIデータは、日の出データであった。ILAS-IIデータは、2つの導出アルゴリズム、V1.4とV2.1によるものである。 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{O}_3$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{CH}_4$ のMIPASデータは、V3のオフライン・スペクトルである。南半球(SH)のデータは、日の入りデータで、2つのILAS-IIアルゴリズム、V1.4xおよびV2.0、MIPAS V3データによって取得した。

表1. MIPAS-EnvisatおよびILAS-II測定の一致

気体	一致の数	平均・空間[km]	平均・時間 [時間]	
H <sub>2</sub> O	NH	216	168 ± 84	6:11 ± 2:24
	SH	614	189 ± 68	7:22 ± 3:48
N <sub>2</sub> O	NH	219	168 ± 83	6:11 ± 2:26
	SH	574	188 ± 68	7:25 ± 3:48
CH <sub>4</sub>	NH	219	168 ± 83	6:11 ± 2:26
	SH	574	188 ± 68	7:25 ± 3:48
O <sub>3</sub>	NH	118	167 ± 86	4:21 ± 1:21
	SH	224	207 ± 54	2:58 ± 1:33

## 1) 水蒸気

MIPAS-EnvisatとILAS-IIのH<sub>2</sub>Oデータを比較するために、MIPASの科学利用向け処理のバージョンを使用した。MIPAS-EnvisatのH<sub>2</sub>Oデータのリトリバルは、既にMilz et al. (2005) によって詳しく説明された。図3には、違いと共に全ての一致を示した。NHでの測定では、216の一致がみられたが、大半の一致は8月から10月までであった。図中凡例▲のILAS-II V1.4xから●のV2.1まで、MIPASとILAS-IIデータの間には明らかな改善があった。20 km以上のNHデータにおけるILAS-II V1.4xの小さな値は、明らかに非現実的な問題であった。45 kmまでは、MIPAS-Envisat測定とILAS-II V2.1データの間の良い一致があった。この比較の違いは、標準偏差1σ以内だった。45-50 km以上では、MIPAS H<sub>2</sub>Oデータの値は、ILAS-IIデータよりも大きかった。最も大きな違いは45-50 kmあたりにあり、V2.1データで2.6 ppmv (35%)、V1.4xで6.6 ppmv (85%) であった。SH (614の一致) では、殆ど改善はなかった。MIPASと2つのILAS-IIリトリバル・バージョンの間の違いは、ほぼ同じだった。違いは、ほぼ全高度域で標準偏差1σ以内にあり、違いは約1-2 ppmv (10-20%) だった。

図3 北半球（黒）と南半球（灰）におけるH<sub>2</sub>O測定の違い



## 2) 亜酸化窒素

H<sub>2</sub>Oと同様に、大半の一致は8月から10月までであった（図4）。5月から10月までの5カ月では、MIPAS-EnvisatとILAS-II N<sub>2</sub>Oデータの間には、NHで219の一致があった。N<sub>2</sub>Oに関しては、MIPASとILAS-IIデータの間の違いは小さかった（図4）。また、ILAS-IIの2つのリトリバルバージョンには大きな違いはなかったし、NHデータとSHデータの比較にも大きな相違はなかった。

MIPASとILAS-II V2.1の間のNH比較では、違いは、19 km以下と31 km以上で標準偏差1 $\sigma$ 以内だった。30 km以上では、2つのILAS-IIリトリバルバージョンの違いは、小さかった。ILAS-II V2.1とV1.4xに関しては、最も大きな違いは、それぞれ13 kmと14 kmで発生し、値は0.04 ppmv（12%）と0.05 ppmv（14.5%）であった。

SH（574の一致）における比較に関しては、MIPASとILAS-II V1.4xの間の違いは、全高度域で標準偏差1 $\sigma$ 以内にあり、ILAS-II V2.0との比較でも、ほぼ同じであった。特に20 km以上では、違いはNHデータよりも小さかった。13 kmで0.06 ppmv（21%）というV2.0での最も大きな違いは、V1.4xでは0.04 ppmv（14%）だった。MIPAS-Envisat測定値は、両半球の全高度域でILAS-II測定値よりも大きかった。

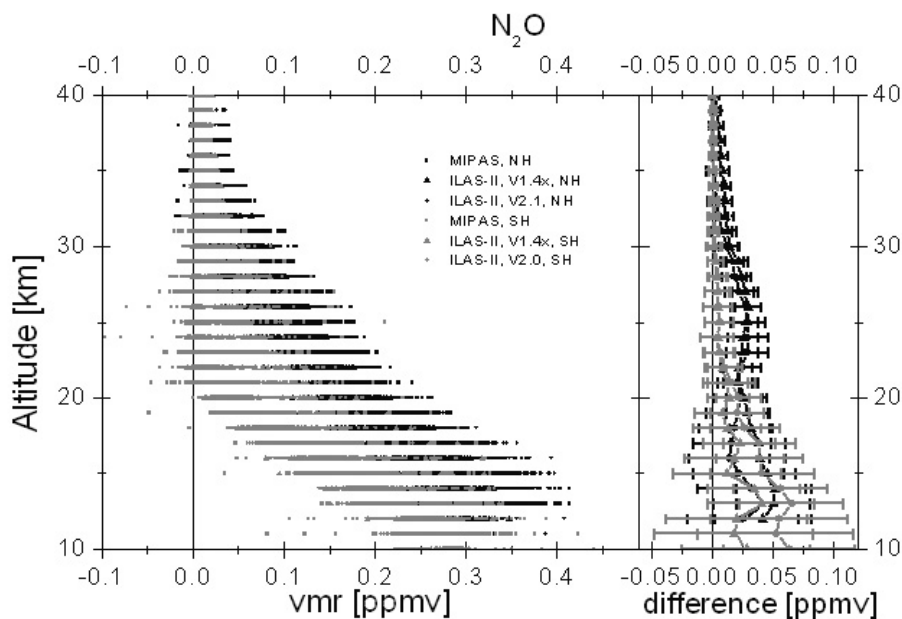


図4 北半球（黒）と南半球（灰）におけるN<sub>2</sub>O測定の比較

## 3) メタン

N<sub>2</sub>Oの場合のように、NHでは291の一致、SHでは574の一致がみられた。H<sub>2</sub>Oと同様に、NHデータにはILAS-II V1.4xからILAS-II V2.1で明らかな改善があった（図5）。25 km以上でのV1.4xの小さな値は、H<sub>2</sub>O同様に非現実的な値として問題であった。しかし、MIPASとILAS-II V2.1の間には、非常に良い一致があった。0.2 ppmv（13.6%）という最も大きな違いは、22 kmにおいて見られる。

SHデータに関しては、ILAS-IIの2つのリトリバルの間の一致は、非常に高かった。特にILAS-II V1.4xでは、違いは小さく、2つのリトリバルバージョンに関しては、違いは（ほぼ）全高度域で標準偏差1 $\sigma$ 以内だった。V2.0での最も大きな違いは、17 kmあたりで0.26 ppmv（21%）、V1.4x

では13 kmで0.12 ppmv (5%) であった。

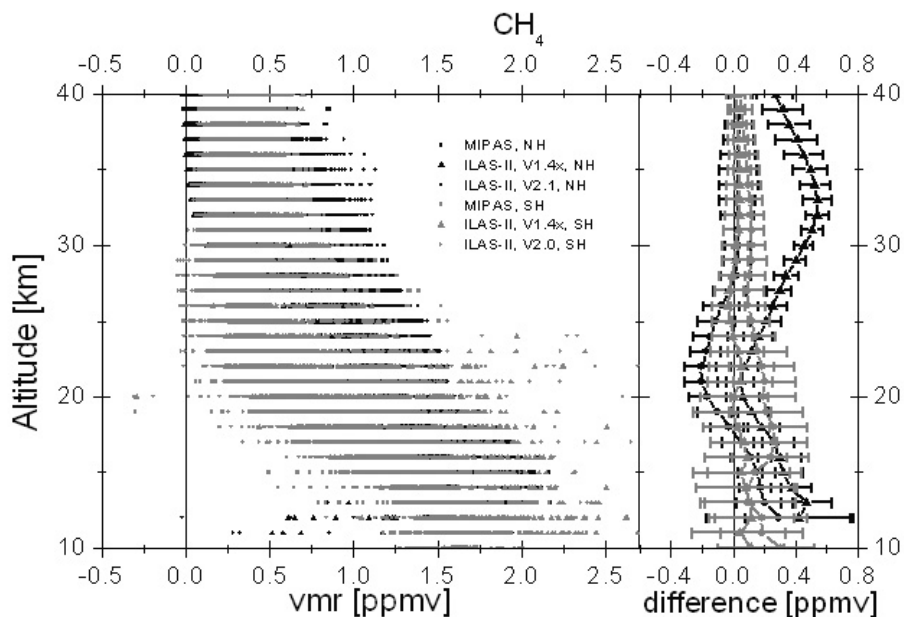


図5 北半球（黒）と南半球（灰）における $\text{CH}_4$ 測定の比較

#### 4) オゾン

MIPAS-EnvisatとILAS-IIの $\text{O}_3$ データの比較では、空間300km、時間6時間での一致する基準を使用して、NHの4カ月で118の一致測定、5カ月で224の一致に至った。NH  $\text{O}_3$ データに関しては、特に20 km以上でのILAS-II V1.4xからILAS-II V2.1では、ほぼ違いは無かった（図6）。ILAS-II V2.1データとの比較では、違いは、ほぼ全高度域で標準偏差 $1\sigma$ 以内だったが、20 km以上では、ILAS-II V1.4xデータでの違いは増加して、最大値は39 kmで0.85 ppmv (15.5%) だった。

SHにおける2つのリトリバーバル・バージョンの間の違いは、他の気体と同様に小さかった。最も大きな違いは、27 kmにあり、V2.0では0.62 ppmv (14.5%)、V1.4xでは0.45 ppmv (10%) だった。

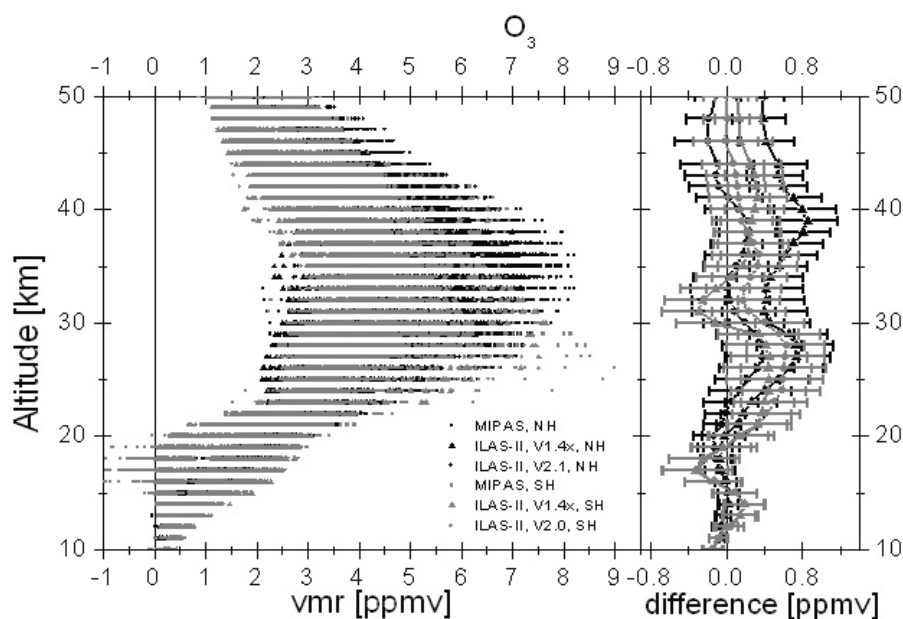


図6 北半球（黒）と南半球（灰）における $O_3$ 測定の比較

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

$O_3$ 、 $HNO_3$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ の鉛直混合比を、キルナの地上フーリエ変換赤外分光器によって計測し、19の異なった日のILAS-II計測から得たプロファイルと比較した。ILAS-II計測プロファイルの高度分解能は、計測を比較するためにFTIR分解能まで下げた。4つ全てのガスの差は、10-15%であった。計測時間と場所における差は、12時間、500 kmに制約したために、19の一致計測しか得られなかったが、もっと多くの数の一致があれば、更に確固とした統計結果が得られた可能性がある。FTIRとILAS-IIの差の幾つかは、計測の場所的、空間的差から生じた可能性がある。もう一つの理由は、FTIRとILAS-IIに用いられた分光波長域が異なるからであると思われる。

衛星間比較では、MIPAS-Envisatによる $H_2O$ 、 $N_2O$ 、 $CH_4$ 、 $O_3$ の鉛直混合比プロファイルとの比較から以下の成果を得た。ILAS-IIの $H_2O$ 、 $CH_4$ 、 $O_3$ の日の出データに関しては、程度の差はあれ、V1.4xからV2.1では明確な改善がみられた。日の入りデータに関しては、2つの異なったアルゴリズムの間の違いは、日の出データほど大きくなかった。 $H_2O$ データの比較における違いは、20-35%だった（北半球でのV1.4xを除く）。 $N_2O$ での違いは12-21%、また $CH_4$ および $O_3$ では、値の違いは小さく、5-20% ( $CH_4$ )、10-15% ( $O_3$ ) だった。

### (2) 地球環境政策への貢献

本課題によるアウトプット自体が直接環境政策へは貢献しないが、データ質の確立された、貴重な極域成層圏オゾン層の様々の化学種の情報は、オゾン破壊メカニズムの解明に向けたプロセス研究にとって不可欠である。本研究成果の一部は、NDACC: Network for the Detection of Atmospheric Composition Change（世界大気組成変動モニタリングネットワーク）のデータベースに登録され、全世界の研究者に公開される予定である。

## 6. 引用文献

- 1) Birk, M., and G. Wagner (2000), A new spectroscopic database for chlorine nitrate, in Proceedings of the 6th Biennial HITRAN Database Conference, 19.-21.06.2000, Cambridge, MA.
- 2) Blumenstock, T., H. Fischer, A. Friedle, F. Hase, and P. Thomas (1997), Column amounts of ClONO<sub>2</sub>, HCl, HNO<sub>3</sub>, and HF from ground-based FTIR measurements made near Kiruna, Sweden in late winter 1994, *J. Atmos. Chem.*, 26 (3), 311- 321.
- 3) Brown, L. R., et al. (2003), Methane line parameters in HITRAN, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 82, 219- 238.
- 4) Griesfeller, A. (2004), Validierung von ENVISAT-Daten mit Hilfe von bodengebundenen FTIR-Messungen, Ph.D. thesis, FZK Report No. 7072, Forschungszentrum Karlsruhe, Germany.
- 5) Hase, F. (2000), Inversion von Spurengasen aus hochaufgelösten bodengebundenen FTIR Messungen in Absorption, Ph.D. thesis, FZK Report No. 6512, Forschungszentrum Karlsruhe, Germany.
- 6) Hase, F., J. W. Hannigan, M. T. Coffey, A. Goldman, M. Höpfner, N. B. Jones, C. P. Rinsland, and S. W. Wood (2004), Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 87 (1), 25- 52.
- 7) Kopp, G., et al. (2002), Evolution of ozone and ozone-related species over Kiruna during the SOLVE/THESEO 2000 campaign retrieved from ground-based millimeter-wave and infrared observations, *J. Geophys. Res.*, 108 (D5), 8308.
- 8) Kurylo, M. J. (1997), Network for the detection of stratospheric change (NDSC): validation protocol; Appendix IV: infrared instruments (FTIR).
- 9) Meier, A., et al. (2005), Evidence of reduced measurement uncertainties from an FTIR instrument intercomparison at Kiruna, Sweden, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 96, 75 - 84.
- 10) Nakajima, H., et al. (2006), Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) onboard the ADEOS-II satellite, *J. Geophys. Res.*, in press.
- 11) Phillips, D. (1962), A technique for the numerical solution of certain integral equations of first kind, *J. Ass. Comput. Mat.*, 9, 84- 97.
- 12) Remedios, J., and I. Parkes (2003), priv. com.
- 13) Rodgers, C. D. (1976), Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys. Space Phys.*, 14 (4), 609- 624.
- 14) Rothman, L. S., et al. (2003), The HITRAN Molecular Spectroscopic Database: Edition of 2000 including updates through 2001, HITRAN Special Issue: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 82 (1-4), 5- 44.
- 15) Schneider, M., T. Blumenstock, F. Hase, M. Höpfner, E. Cuevas, A. Redondas, and J. M. Sancho (2005), Ozone Profiles and Total Column Amounts derived at Izaña, Tenerife Island, from FTIR Solar Absorption Spectra, and its Validation by an Intercomparison to

- ECC-Sonde and Brewer Spectrometer Measurements, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 91 (3), 245- 274.
- 16) Stiller, G. P., et al. (1998), The Karlsruhe optimized and precise radiative transfer algorithm. Part I: Requirements, justification, and model error estimation, in *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds*, Beijing, China, 15- 17 September 1998, vol. 3501, edited by J. Wang, B. Wu, T. Ogawa, and Z. Guan, pp. 257- 268.
- 17) Tikhonov, A. (1963), On the solution of incorrectly stated problems and method of regularization, *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, 151 (3), 501- 504.
- 18) Wagner, G., M. Birk, F. Schreier, and J.-M. Flaud (2002), Spectroscopic database for ozone in the fundamental spectral regions, *J. Geophys. Res.*, 107 (D22), 4626.
- 19) Yokota, T., et al. (2002), Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) data retrieval algorithm for Version 5.20 gas profile products, *J. Geophys. Res.*, 107 (D24), 8216.
- 20) Yokota, T., et al. (2006), Improved Limb Atmospheric Spectrometer II (ILAS)-II Version 1.4 retrieval algorithm for the gas and aerosol profiles in the stratosphere, submitted to *J. Geophys. Res.*

## 7. 国際共同研究等の状況

本研究は、NDACC: Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (世界大気組成変動モニタリングネットワーク) の一環として、アメリカ、カナダ、イギリス、スウェーデン、ベルギー、ドイツ、オーストラリア、ニュージーランド等の研究者と共同して行っているものである。

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文 (査読あり)>

- 1) Griesfeller, A., F. Hase, I. Kramer, P. Loës, S. Mikuteit, U. Raffalski, T. Blumenstock, and H. Nakajima : *J. Geophys. Res.*, **111**, D11S07, doi: 10.1029/2005JD006451(2006)  
"Comparison of ILAS-II and ground-based FTIR measurements of O<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, and CH<sub>4</sub> over Kiruna, Sweden"

<その他誌上発表 (査読なし)>

なし

### (2) 口頭発表 (学会)

- 1) A. Griesfeller, M. K. Ejiri, T. Blumenstock, J. Griesfeller, F. Hase, N. B. Jones, Y. Kondo, I. Kramer, P. Loës, S. Mikuteit, H. Nakajima, U. Raffalski: Presentation at the MSJ Spring Meeting, Tokyo, May 2005  
"Comparison of ground-based FTIR-measurements of HNO<sub>3</sub> and N<sub>2</sub>O and ILAS-II data"
- 2) A. Griesfeller, M. K. Ejiri, J. Griesfeller, F. Hase, N. B. Jones, I. Kramer, P. Loës, S. Mikuteit, U. Raffalski, T. Blumenstock, H. Nakajima: Presentation at the NDSC / IRWG Meeting, Toronto, June 2005

"Comparison of  $\text{HNO}_3$  and  $\text{N}_2\text{O}$  profiles from FTIR (SFIT2 / PROFFIT) and from ILAS-II in Kiruna"

- 3) A. Griesfeller, J. Griesfeller, F. Hase, T. Blumenstock, and H. Nakajima: Presentation at the MSJ Autumn Meeting, Kobe, November 2005

"Comparison of ILAS-II data with ground-based FTIR-measurements of  $\text{O}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , and  $\text{CH}_4$  over Kiruna, Sweden"

- 4) A. Griesfeller, J. Griesfeller, F. Hase, T. Blumenstock, and H. Nakajima: Presentation at the AGU Fall Meeting, San Francisco, December 2005

"Comparison of ILAS-II data with ground-based FTIR-measurements of  $\text{O}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , and  $\text{CH}_4$  over Kiruna, Sweden"

(3) 出願特許

なし。

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし。

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし。