

### A-3 衛星利用大気遠隔計測データの利用実証に関する研究

#### (5) 極域成層圏エアロゾルに関する地上及び衛星観測データの解析研究

総務省通信総合研究所

地球環境計測部 光計測研究室

水谷耕平・安井元昭・青木哲郎

奈良女子大学理学部

林田佐智子

福岡大学理学部

林政彦

平成 10~12 年度合計予算額 16,355 千円

(うち、12 年度予算額 8,245 千円)

[要旨] オゾン層の消長に大きな影響を及ぼす極域や高緯度での成層圏エアロゾルの出現状況、光学特性の解明を行う。そのため、日本の最北端である稚内・陸別ではライダー観測により成層圏エアロゾルの長期変動を調べた。カナダ領北極域ユーレカにおける 1996 年のライダー観測の解析から、極成層圏雲(PSCs)の出現条件の解析を行い、液滴 PSC 粒子についてはその出現状況とモデル計算は良い一致を示した。1997 年北極冬季及び初春における ADEOS 搭載 Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) データの解析を行い PSCs の判定基準を設定し約 200 の PSC イベントを抽出し、その発生状況を調べ、PSCs の分類を行った。南極ドームふじ基地における 1997 年の気球搭載式光学粒子計数装置およびライダーによる観測結果の解析から、PSCs の出現特性が高度によって大きく異なり、既存エアロゾル粒子の分布領域との関係があることが示唆された。

[キーワード] 成層圏エアロゾル、PSCs、ILAS、光学特性、ライダー

#### 1. はじめに

成層圏オゾン層の破壊には成層圏エアロゾル表面での不均一過程が深く関与しており、オゾン層破壊過程の物理的・化学的理解と将来予測には成層圏エアロゾルの変動とその物理・化学的性質の解明が不可欠である。特に、極域の冬季に出現する極成層圏雲 (PSCs) は春先の極地方における大規模なオゾン減少に関与していると考えられている。この研究では、ライダーおよび気球搭載式粒子計数装置等の地上観測データと ILAS 等の衛星観測データの解析により極域や高緯度での成層圏エアロゾルの出現状況と光学特性の解明を目指す。

#### 2. 研究の目的

成層圏エアロゾルは大気の放射過程だけでなく、化学過程にも大きな役割を果たしておりその動態や物性を探ることは、成層圏オゾン破壊等の大気環境問題を解明するために極めて重要な課題である。下部成層圏に存在する硫酸水溶液滴のエアロゾルもオゾン層の破壊に寄与すると考えられているが、極成層圏雲 (PSCs) が極域下部成層圏における春先の大規模なオゾン破壊現象において決定的に重要な役割を果たしていることは良く知られている。PSCs の表面上で引き起こされる不均一

反応によって、不活性塩素が活性化され、オゾン破壊が進行する。また、PSC 粒子が重力落下することによって、粒子中に取り込まれた硝酸が大気中から不可逆的に除去され、活性塩素の不活性化を阻害する(脱窒)。

PSCs の化学組成および相を知ることは、オゾン減少率を正確に評価し、冬季から春先にかけての極域におけるオゾン破壊メカニズムの詳細を知る上で非常に重要である。液相粒子は固相粒子より効果的に不活性塩素を活性化すると考えられるし、固相粒子は不均一反応においてだけでなく、粒子の重力沈降に伴う脱窒・脱水現象においても重要であることがわかっている。南極においては冬季下部成層圏温度が氷の露点温度以下に低下するため氷粒子が不均一反応や脱窒を支配しているが、北極においては氷粒子が形成されるような低温条件が実現しにくいので硝酸を含む固相粒子が脱窒の主な原因になっているものと考えられている。

この研究では、成層圏エアロゾルのオゾン層の消長に及ぼす影響を明らかにするため、北海道や極域でのライダーおよび気球搭載式粒子計数装置(OPC)等の時間分解能と高度分解能の高い地上観測データと広範囲を長期間にわたって観測できる ILAS 等の衛星観測データの解析により極域や高緯度での成層圏エアロゾルの出現状況と光学特性の解明を目指し、その結果からエアロゾルの時間変動、物性等を導出する。

### 3. 研究方法

#### (1) 北海道における成層圏エアロゾルのライダー観測

成層圏エアロゾルの長期変動をモニターするため北海道の稚内および陸別（釧路）においてライダー観測を行っている。稚内での観測は 1991 年 6 月のピナツボ火山噴火直後の 8 月から波長 1064nm で始めた。その後 1992 年からは 532nm での観測ができるようにした。釧路での観測は 1995 年に 532nm で開始し、1997 年により天気の良い陸別に装置を移して継続している。北海道では春季に極域でのオゾン層破壊の影響を受けやすい。また、他の地点でのデータと比較する日本の北端でのエアロゾル分布の観測を受け持つと言う意味合いもある。

#### (2) カナダ北極圏ユーレカにおける PSCs の観測

通信総合研究所と気象研究所はカナダ大気環境局と共同でカナダ北極圏のユーレカに成層圏エアロゾル観測のためのライダーを設置し、毎冬季、極夜の時期に観測を行ってきた。観測は、カナダ北極圏のエルズミア島のほぼ中央 ( $80^{\circ} 00' N, 85^{\circ} 50' W$ ) に位置するカナダ大気環境局 (AES) の観測基地で行った。ライダー観測では、Nd: YAG レーザーの基本波 (1064nm) と第二高調波 (532nm) の 2 波長が用いられ、532nm の波長については偏光成分（平行成分、垂直成分）を分けて受信できるように設計されている。偏光の情報を用いることで、エアロゾル粒子が球形であるか非球形であるかの判別、つまり、粒子が液体であるか固体であるかの選り分けが可能になる。また、ライダーで観測、解析された結果を、より一般的な定量的な評価に発展させるため、気球搭載式粒子計数装置(OPC)によって観測された粒径分布を用いた。大気環境局のユーレカステーションで行われているラジオゾンデ観測データを用いてライダーで観測された PSC の出現状況とその時の熱力学的な場との関連を調べ、さらに、OPC の観測結果を参考に定量化した結果の評価を行う目的で、Carslaw<sup>1)</sup> に

よって作られた化学熱力学モデルを使った液滴エアロゾル生成量の見積もりを行った。このモデルは3成分系、即ち  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  で構成される系で考えられており、これら三成分各物質の量と、気温、気圧のデータを入力すると、生成される三成分エアロゾル ( $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ ) の体積密度が出力される仕組みになっている。

### (3) 衛星搭載センサーによる極域成層圏エアロゾル観測データの解析

1997年冬季および初春の北極域で、例年になく大規模なオゾン減少が観測された。ADEOS(Advanced Earth Observing Satellite)衛星とEarth Probe衛星に搭載された TOMS(Total Ozone Mapping Spectrometer)は、1997年3月下旬および4月初旬の北極上空で記録的に低いオゾン全量を観測した<sup>2)</sup>。ILAS(改良型大気周縁赤外分光計;Improved Limb Atmospheric Spectrometer)は、この時期にPSCsを北極域で継続的に観測した唯一の衛星搭載センサーである。

ILASは、ADEOS衛星に搭載された、太陽掩蔽法のセンサーで、1996年11月から1997年6月までの約8ヶ月間にわたり、オゾン、エアロゾルの他、硝酸、水蒸気、亜酸化窒素など、オゾン破壊に本質的に関わる物質の高度プロファイルを観測した。ADEOSは極軌道衛星であるので、ILASは一日に両半球の高緯度帯(北緯57.1°~72.7°、南緯64.3°~88.2°)のそれぞれ約14地点で観測を行うことができる。ここでは780nm消散係数を中心に硝酸のデータを解析した。データバージョンは最新の5.20を用いた。本研究では衛星観測の広範囲を長期間にわたって観測できる利点を生かして、ILASのデータを用いて、PSCの動態を解析し、さらに微量気体成分との比較からその組成推定を試みた。

### (4) 南極成層圏エアロゾルデータとILASデータの比較解析

第38次日本南極地域観測隊によって、1997年に南極ドームふじ(77S, 40E, 3810m a.s.l.)において、気球搭載式粒子計数装置(OPC)およびライダーによる成層圏エアロゾルの観測が実施された。OPC観測によって得られた半径0.15~1.8μmの領域の粒径分布とライダーによって得られたパルク的な後方散乱特性の比較により、極成層圏雲の特徴的な粒子の大きさ、相状態、粒子組成等を推定し、極成層圏雲の分類を試みる。また、OPCによって得られた半径0.15~3.6μmの粒径分布から波長780nmにおける消散係数を推算し、ILASによって得られた消散係数と比較することで、既存成層圏エアロゾルの粒径分布の検討をおこなう。

## 4. 結果・考察

### (1) 成層圏エアロゾルの長期傾向

図1、2は、稚内、釧路、陸別で観測された、成層圏エアロゾル後方散乱係数の積分値の時間変動を示している。観測を開始した時期、成層圏内には1991年6月に起きたピナツボ火山の噴火によって形成された多量の火山性エアロゾルが存在していた。その後、成層圏エアロゾルは時間の経過とともに減少してきた。エアロゾルの減少は1998年頃まで続いており、ライダーで観測できる成層圏エアロゾルがバックグラウンドに近いところに落ち着いてきたのは1998年からだと考えられる。したがって、ここで扱う1996年から1997年にかけての極域の成層圏においてもまだピナツボ火山

起源のエアロゾルが多少の影響を与えていることは考えておかなければならぬ。

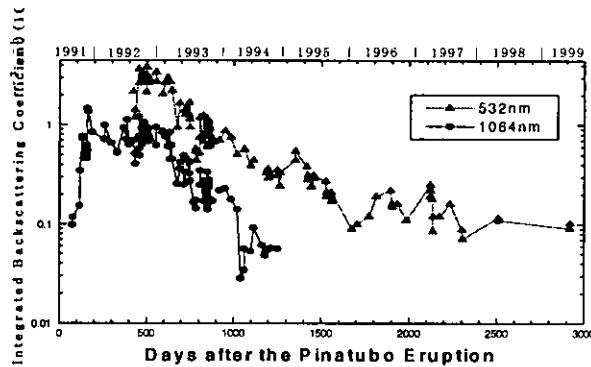


図 1 稚内 のライダーで観測された後方散乱係数の積分値の時間変化

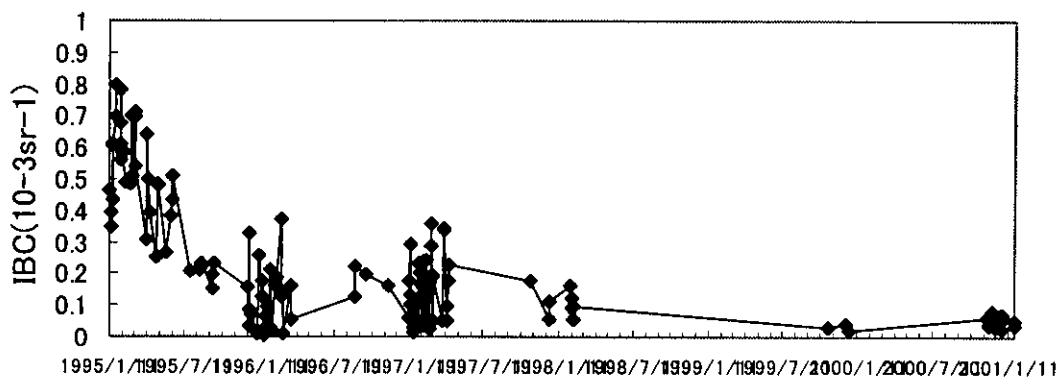


図 2 稚内、釧路、陸別で観測された後方散乱係数の積分値の時間変化

## (2) カナダ北極圏ユーレカにおける PSCs

図3は1996年1月にユーレカで観測された成層圏エアロゾル鉛直分布の時系列図である。1月6日頃に22 km付近、1月16日頃に18～22 km付近に大きな散乱比（上図）が現れた。偏光解消度（下図）では1月7日頃から15日頃にかけて18～22 km付近に大きな値が見られ、16日付近にも大きな値が見られる。これらの二つの図をよく見比べてみると、散乱比が目立つところと偏光解消度が目立つところが一致しないことが多いことに気づく。このことは、大きな散乱比を示す、即ち絶対量が多い層では粒子の大部分は液滴の粒子で構成されていたのに対し、固体粒子の層では偏光解消度は目立つが、絶対量はそれほど大きな値ではなかったことを示す。また、液滴の層は持続時間が短いのに対し、固体粒子の層は比較的長い間持続されていたこともわかる。

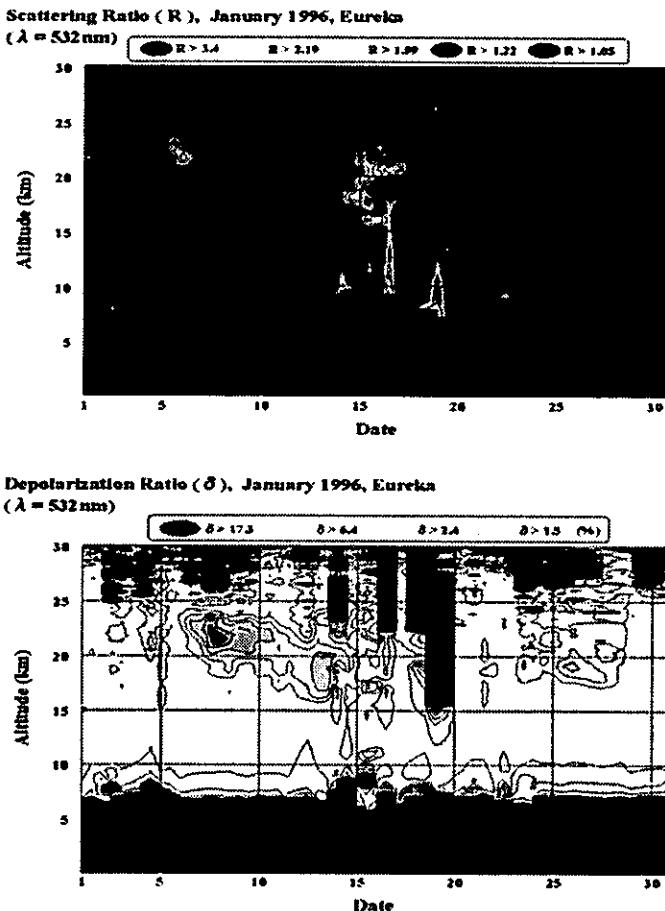


図3 1996年1月にユーレカのライダーで観測された成層圏エアロゾルの時系列分布。  
上図が散乱比で下図が偏光解消度

これらのPSC層のうち、液滴の部分についてその出現状況を詳しく調べるために、1月16日に観測された結果と、これらの日にラジオゾンデで観測された気象データを Carslaw のモデルに入力して計算した3成分液滴エアロゾルの生成量を図にしたもののが図4である。この図に示したライダーの結果（半日平均）とラジオゾンデ観測結果からのモデル計算値（午前、午後それぞれ6時の断面）との間では、時間的に完全に同一のものではないことを考慮すると、観測とモデルの一一致は良いと言える。

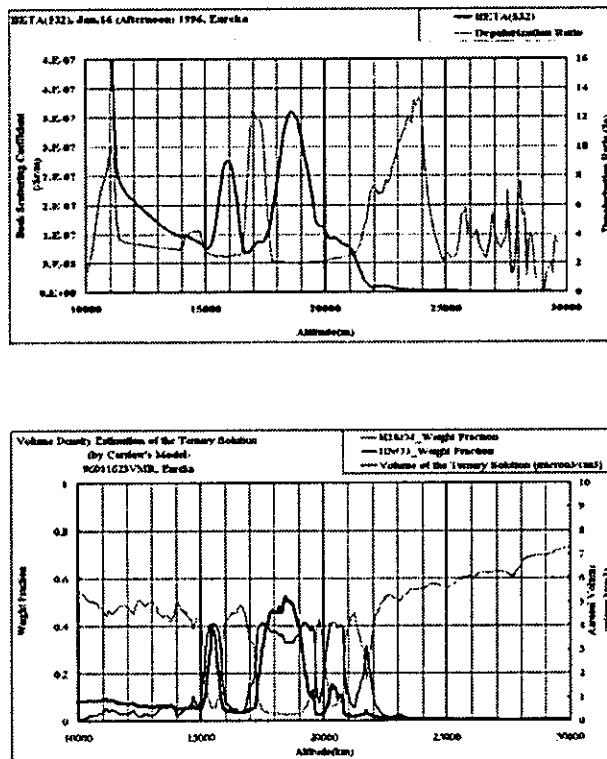


図 4 1996 年 1 月 16 日の後方散乱係数と偏光解消度の高度分布（上図）。Carslaw のモデルで計算した 3 成分液滴アロゾルの生成量の高度分布（下図）。

気球搭載式光学粒子計数装置によって観測された高度 20 ~ 22 km 付近の成層圏エアロゾルの粒径分布と、同時刻にライダーで観測された結果を用いて見積もった、ライダー後方散乱係数を体積密度へ変換するための変換係数を図 5 に示す。これらの見積もりについての詳細は、参考文献<sup>3)</sup>に示されている。Carslaw<sup>1)</sup>のモデルで計算される量は生成される液滴の量、即ち体積密度が出力されるものなので、ここでは、後方散乱係数から体積への変換係数を用いてライダーの結果を体積に変換したものと、Carslaw のモデルで計算された液滴生成量の比較を行った。その結果を図 6 に示す。この図は、横軸に絶対温度、縦軸に液滴エアロゾルの体積密度、第二縦軸には、生成される液滴中に含まれる H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、HNO<sub>3</sub> の量の比率が示されている。黒小丸点（.）がライダーの結果を変換した値、黒四角（■）はオプティカルパーティクルカウンターによって観測された体積密度の値である。これらの結果は非常に良い一致を示しており、OPC とライダーで求めた変換係数を用いることで、液滴に関しては、ライダーの後方散乱係数をより一般的な量である体積密度に変換して議論することが可能になった。

### (Volume Density) / (Backscatter)

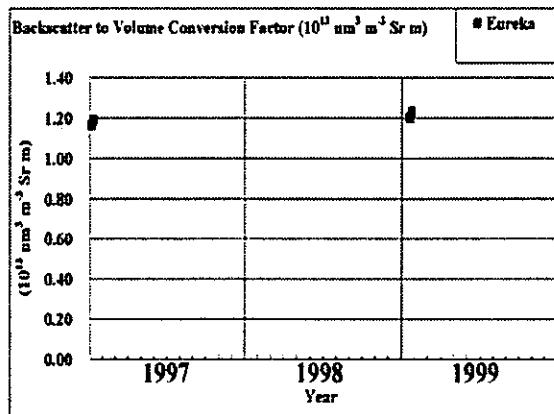


図 5 ライダーによる後方散乱係数を体積密度に変換するための変換係数。

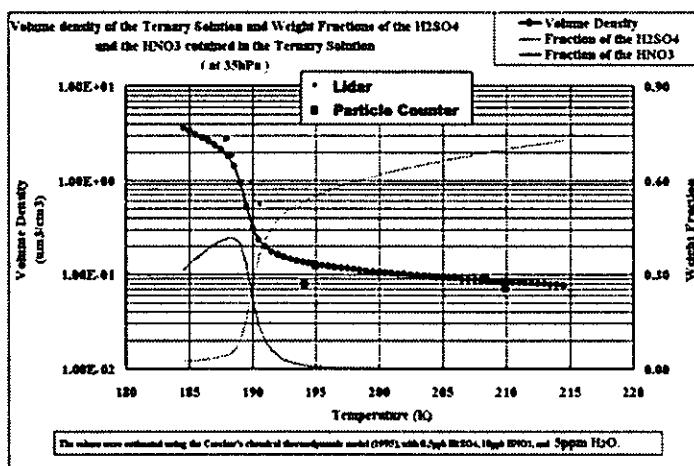


図 6 ライダー観測による後方散乱係数から導出されたエアロゾルの体積密度と Carslaw のモデルで計算した 3 成分液滴アロゾルの生成量の比較。

### (3) ILAS による極成層雲のデータ解析

ILAS に観測された極成層雲のデータ解析では、ILAS 可視エアロゾルデータを用いて観測されたイベントが PSCs であるか否かを判定するために、Poole and Pitts<sup>4)</sup> や Fromm et al.<sup>5)</sup> らと同様の手法を採用した。まず、極渦内で対応する気温が 200 K 以上である領域のすべての消散係数データを 10 日毎高度毎に平均し、その平均値をそれぞれの期間のバックグラウンドエアロゾルレベルと定義した。次に、平均値と標準偏差を指標とした消散係数データのヒストグラムを詳細に検討し、閾値を平均値 + 標準偏差の 5 倍と設定し、消散係数が同時期の閾値を越えており、かつ相対エラーが 100% を超えないイベントを PSC と判定した('5sgm-selected' event<sup>6)</sup>)。この方法に若干の改良を加えた再解析の結果、PSC イベントとして約 200 のイベント（約 60 プロファイル）を抽出した<sup>7)</sup>。

ILAS で観測された 1997 年冬季北極域 PSCs は、1 月はグリニッジを中心に、西経 90 度から東経 90 度にわたって、広い領域で観測されていた。2 月中旬から 3 月中旬にかけては、グリニッジより東側で PSCs が観測されており、特に 3 月では、東経 120 度付近で観測されていた。観測場所の遷移は極渦の移動と連動していた。また、1 月は高度 23km 付近、2 月は 20km 付近、3 月は 18km 付近を中心 PSCs が観測されており、1 月から 3 月にかけて、PSCs 観測高度がしだいに低高度に遷移していくという特徴が見られた。

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。PSCs 組成と大気中の硝酸量、水蒸気量は非常に密接に関わっているが、ILAS は消散係数だけでなく硝酸、水蒸気の高度プロファイルを広域にわたって同時に観測しているので、これらの理論値をより正確に計算することができる。本研究では、PSCs の組成として STS(Super-cooled Ternary Solution)、NAD(Nitric Acid Dihydrate)、NAT(Nitric Acid Trihydrate)を考慮し、それぞれの粒子の存在を仮定した時の理論値と観測値との比較を行った。極渦内で対応する気温が 200 K 以上のバックグラウンド状態と見なせる領域の全硝酸データ、全水蒸気データを 10 日毎・高度毎に平均し、その平均値をそれぞれの期間の硝酸全量、水蒸気全量と定義した。硫酸全量は Carslaw の理論式<sup>1)</sup>を高温条件下に適用し、ILAS のバックグラウンドエアロゾルに合うように決めた<sup>8)</sup>。STS 粒子形成を仮定した時に理論的に期待できる粒子体積および粒子に取り込まれた後に気相中に残存する硝酸量は、熱力学モデルに基づいた Carslaw の理論式を適用することで計算することができる。NAD 粒子、NAT 粒子と平衡状態となる時の硝酸蒸気圧およびその粒子体積は Worsnop et al.<sup>9)</sup>と Hanson and Mauersberger<sup>10)</sup>をもとに計算した。

STS、NAD、NAT 粒子の理論体積と ILAS のエアロゾル消散係数データとを比較するためには、PSC 粒子体積を 780nm 消散係数に変換しなければならない。STS の複素屈折率は気温依存を考慮した値を与え<sup>11)</sup>、NAD、NAT の複素屈折率は赤外波長帯で測定された値を与えた<sup>12)</sup>。

粒径分布は、OPC データ<sup>13)</sup>をもとに得られた bimodal 粒径分布を仮定し、ミー散乱理論を応用して、体積-消散係数変換係数を求めた。図 7 は、1 月中旬高度 22、23km での ILAS 消散係数データと UKMO 気温データ(a)、ILAS 硝酸データと UKMO 気温データ(b)の散布図である。黒丸は PSCs と判定されたデータを表している。10 日毎高度毎に ILAS データから見積もられた値を用いて計算された STS(実線)、NAD(点線)、NAT(破線)の理論曲線もあわせて示してある。図 7 (a)中、太実線は PSC 粒子の変換係数を用いて粒子体積を消散係数に変換した理論値であり、細実線はバックグラウンド条件下の変換係数を用いて変換された理論値である。消散係数が小さく、PSCs の存在を示唆していないデータはバックグラウンド状態を仮定した STS 理論曲線によく対応している。

図より、1 月中旬の高度 22km 付近では STS の PSCs が観測されていたことが強く示唆される。消散係数値が増加しているところで硝酸が減少しており、その傾向は低温領域においてより顕著である。特に 1 月 19、20 日は鉛直方向に比較的広範囲で STS タイプの PSCs が観測されていた。

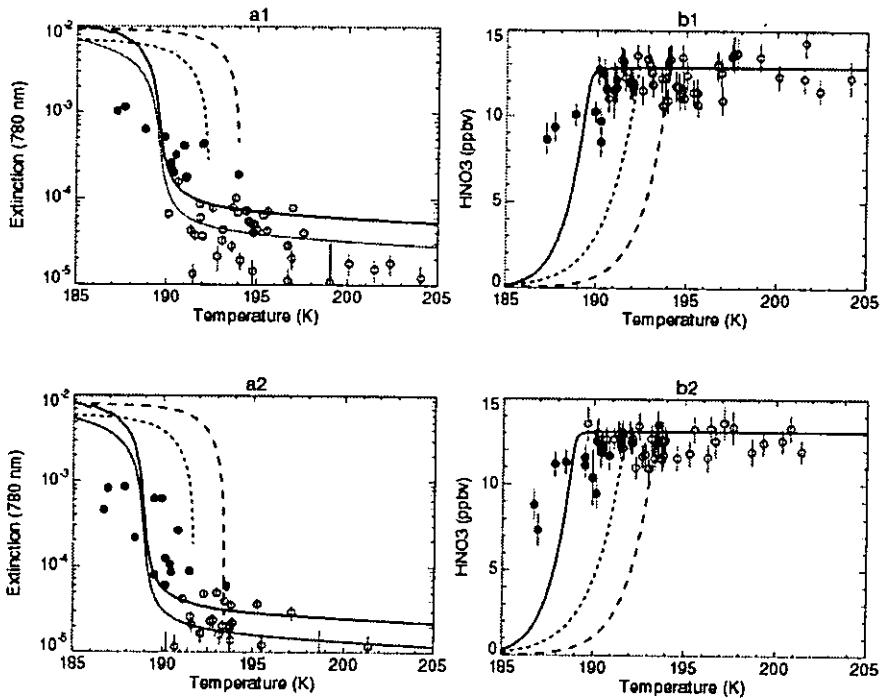


図 7 1997 年 1 月中旬に得られた、ILAS 消散係数データおよび ILAS 硝酸データと UKMO 気温データの散布図。左の a は 780nm 消散係数と UKMO の気温との関係を、右の b は硝酸と UKMO の気温との関係を表す。上段 (a1,b1) は高度 22km、下段 (a2, b2) は高度 23 km の結果である。黒丸はそれぞれの高度で消散係数が閾値を超えたために PSCs と判定されたデータを表している。理論的に予想される STS(実線)、NAD(点線)、NAT(破線)の平衡理論曲線もあわせて示してある。STS の理論曲線が 2 本あるのは、体積を消散係数に変換するときに仮定した粒径分布の違いを反映している。太実線は粒径分布として PSC の観測例を OPC 観測に基づいて与えた。細実線はバックグラウンド状態の粒径分布を仮定して変換した値を示している。

図 8 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、観測されている PSC イベントの数は少ないが、図 8 に示されているように、消散係数値、硝酸値とともに NAD 粒子、NAT 粒子の存在を示唆しているデータが見られる。理論値との比較解析の結果、明確な特徴をもったデータはほぼすべて NAD か NAT に分類できた。観測値と理論値との比較から、60 以上の PSC イベントを STS、NAD、NAT いずれかに分類することができた。分類したイベントについては、流跡線解析によって気温履歴を調べ、PSC 生成理論と比較して組成判定の妥当性を示した<sup>7)</sup>。

しかし、中には理論値との比較のみでは組成が明確に推定できないデータもあった。PSCs はしばしば非平衡状態で存在しているので、平衡を仮定した理論値と直接的に比較して特徴を捉えることができない場合もある。また、太陽掩蔽法センサーは一般に水平方向の空間分解能が乏しく、ILAS に関しては視線方向に約 200km(高度 20km の場合)の空間的広がりがあり、サンプリングボリューム

が大きいため観測対象物の特徴があいまいになってしまうことがある。消散係数値、硝酸値とともにSTS、NAD、NAT理論値の間の値をとっているためにどの組成にも分類できないデータがあったが、これらは両者の混合状態、あるいはその他の組成である可能性が考えられる。一方、同一プロファイル内に複数の組成の特徴が見られるデータがあるが、そのような例はライダーでも観測されている<sup>14)</sup>。

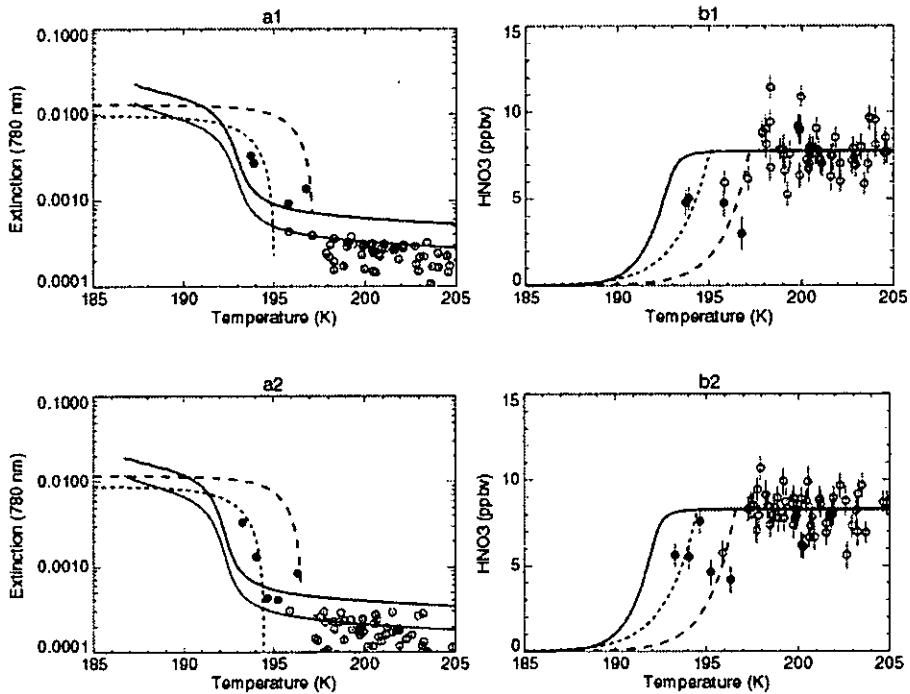


図 8 図 7 と同様の散布図であるが、1997 年 3 月初旬高度 17km、18km で得られた結果。左の a は 780nm 消散係数と UKMO の気温との関係を、右の b は硝酸と UKMO の気温との関係を表す。上段 (a1, b1) は高度 17km、下段 (a2, b2) は高度 18 km の結果である。

#### (4) 南極成層圏エアロゾルデータと ILAS データの比較解析

ドームふじにおける気球搭載式粒子計数装置 (OPC) による観測は 1997 年 2 月から 12 月に 11 回実施された。このうち 7 回 (5/28, 6/15, 6/29, 7/23, 8/24, 9/30) は、ライダーとの同時観測であり、極成層圏雲 (PSCs) が観測されている。また、ILAS との比較が高い信頼性をもってできる OPC 観測は、既存エアロゾルの時空間変動の小さな夏季 (2/24) に実施されたものであった。

##### ① PSCs の粒径分布

図 9 が、OPC とライダーの同時観測の一例である。ライダーで観測される散乱比 (S) 偏光解消度 ( $\delta$ ) や波長依存性 ( $\alpha$ ) の高度に対する変動が、OPC によって得られる粒子数濃度の増大層とよく対応していることがわかる。後方散乱比 (S)、偏光解消度 ( $\delta$ )、オングストローム指数 ( $\alpha$ ) はそれぞれエアロゾル混合比、粒子の形状 (球形か非球形か)、粒子の大きさを反映するものである。そこで、OPC による  $0.15\sim1.8\mu\text{m}$  の粒径粒子の分布の特長から既存成層圏エアロゾルおよび極成層圏雲を類別することを試みた。図 10 がその例である。3 つのパラメータ、 $\text{Nr} > 0.15$ 、 $\text{Nr} > 0.25$  /

$N_{r>0.15}$ 、 $N_{r>1.8}$ に対する散布図である。ここで、 $N_{r>x}$ は、半径  $x \mu\text{m}$  以上の積算粒子数濃度である。3つのパラメータは、それぞれ、サブミクロン粒子総量、サブミクロン粒径の粒径分布、巨大粒子総量に対応するものとして選んだ。図10において、緑の点が2/24に観測されたPSCsの出現していない既存粒子のみのものである。PSCs出現時には、既存エアロゾル粒子群とは異なった領域を占めている。ライダーによる後方散乱特性も考慮し、PSCs粒子群を主に4つのグループに大別した。

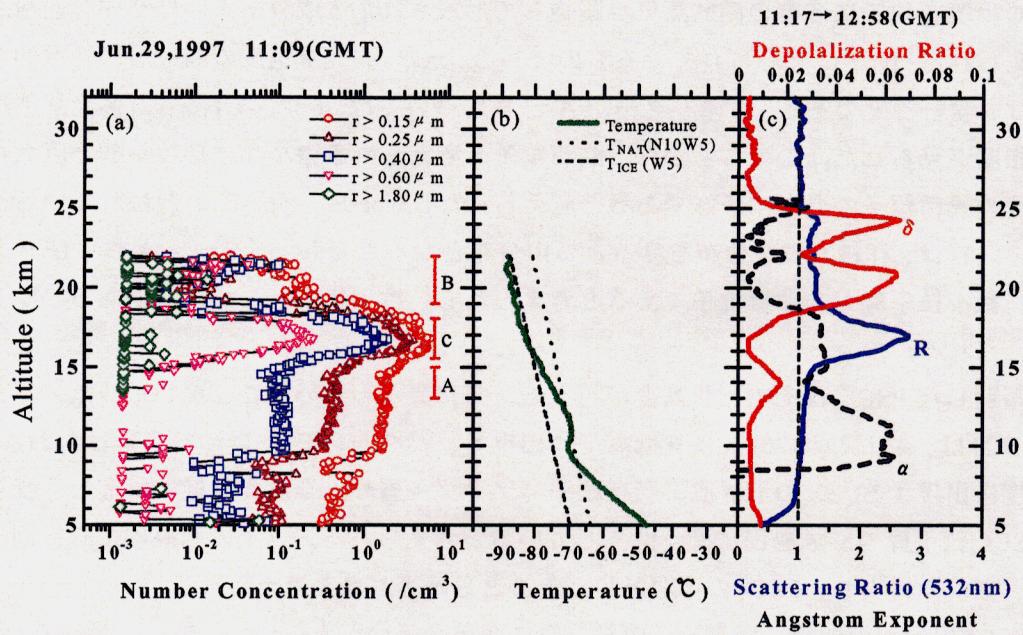


図9 OPCによって観測されたエアロゾル鉛直分布、気温およびライダーによって観測

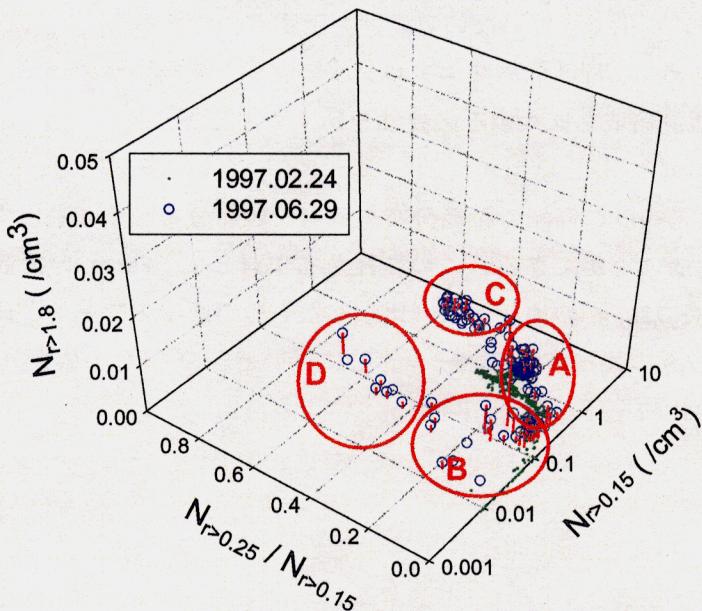


図10 積算粒子数濃度による散布図  
1997年2月24日と6月29日の結果

パターン A 急峻な粒径分布を示す比較的多量の微小粒子群と  
巨大粒子群よりなる偏光解消度の高い層

パターン B 急峻な粒径分布を示す比較的小量の微小粒子群と  
巨大粒子群よりなる偏光解消度の高い層

パターン C なだらかな粒径分布を示す多量の微小粒子群が主体の偏光解消度の低い層

パターン D なだらかな粒径分布を示す比較的多量の微小粒子群が主体の偏光解消度の高い層

パターン C は既存粒子に多量の硝酸蒸気が凝結して形成された 3 成分あるいは 2 成分過冷却液滴粒子群と考えられる。type-Ib と呼ばれているものである。一方、偏光解消度の高い層に特徴的なのは、巨大粒子群を含むことである。特にパターン A と B については、 $N_{r>0.8}/N_{r>0.15}$  と偏光解消度との間に明確な相関が見られた。このことから、液滴粒子と考えられる微小な球形粒子群と巨大粒径の非球形粒子群の異種粒子の混合粒子群であると考えられた。type-Ia、type-II と呼ばれているものである。パターン D は、詳細な粒径分布を見ると一山分布となる点でも、パターン A および B とは異なっている。微小粒子群も非球形粒子であると考えられる。粒子組成としては、氷あるいは含硝酸水和物と考えられる。

この様に類別した PSCs はその出現高度がパターン毎に異なっていることがわかった。パターン A と C の粒子群は、おおむね 20km より低高度に出現し、パターン B と D の粒子群はおおよそ 20km より高高度に出現する。この境界は、既存粒子エアロゾル層の上端高度付近に対応し、既存粒子の状態が PSCs 粒子群の形成過程に深く関与していると考えられる。以上の結果により、図 10 の 3 次元ダイアグラムにより、PSCs の類別が行えることも示されたと考えられる。

加えて、PSCs 出現期の前後で既存粒子粒径分布に明確な違いがみられた。特に、半径 0.15μm 以上の粒子数濃度が、大きな粒径粒子数濃度と比較して増大の割合が大きくなっていた。このことは、粒径分布のモデル化として通常行われている、モノモードの対数正規分布によるフィッティングは、現実の粒径分布を正確にモデル化できていない可能性を示すものである。

これらの結果は、PSCs を含めて、極域成層圏エアロゾルの実態と変動機構の理解のためには、半径 0.15μm 以下の領域にまで観測領域を拡大する必要性を示すものである。

## ②既存エアロゾルの粒径分布

OPC 観測による半径 0.15~1.8μm の領域の粒径分布を適当な粒径分布関数に適用することで、広い粒径にわたる粒径分布を得ることができる。この粒径分布に対して 780nm の消散係数を計算し、ILAS によって得られた波長 780nm の消散係数と比較したものが図 11 である。成層圏エアロゾルの時空間変動が小さく、ILAS の観測領域がドームふじに近いときの OPC の観測 (2/24) と ILAS 観測 (2/17~3/1) のデータの比較を行った。

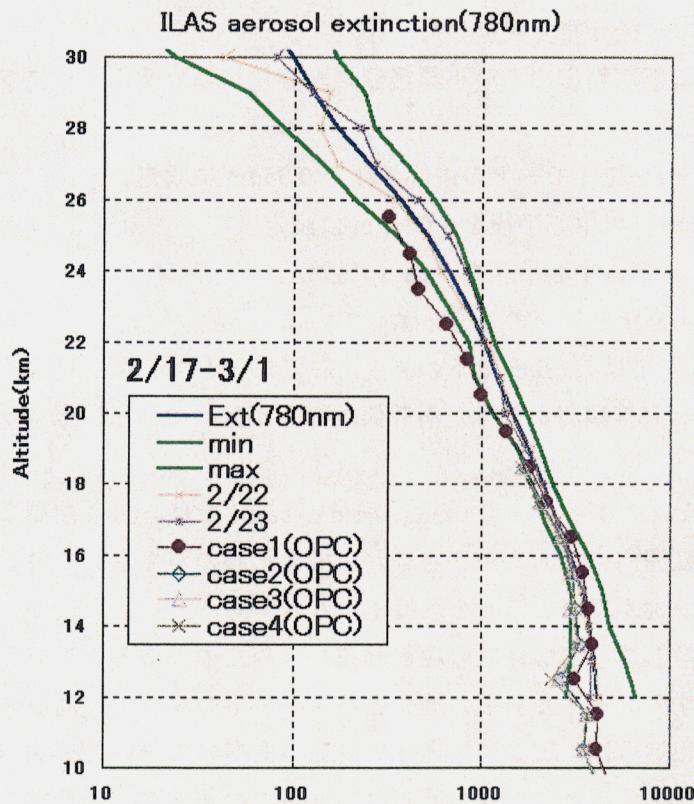


図 11 OPCによる粒径分布観測から求めたextinctionと  
ILASによって観測されたextinctionの比較  
ILAS: 南緯75~80度、2/17~3/1の151 profilesの平均  
最大値、最小値、および、2/22,23のprofile

OPC:  
case1 monomode lognormal size distribution fitting  
case2-4 bi-mode lognormal size distribution fitting  
(微小粒径領域のモード値を変化させている)

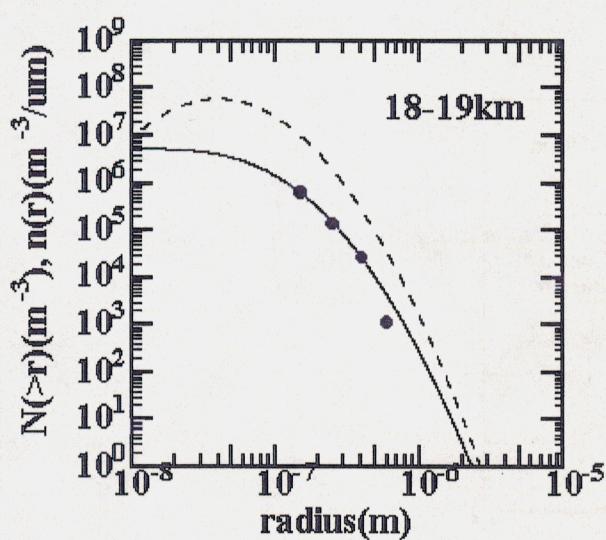


図 12.1 消散係数算出に用いた積算粒径分布(実線)  
と微分粒径分布(破線)の例。図 13 の case1(モ  
ノモード粒径分布フィッティング)

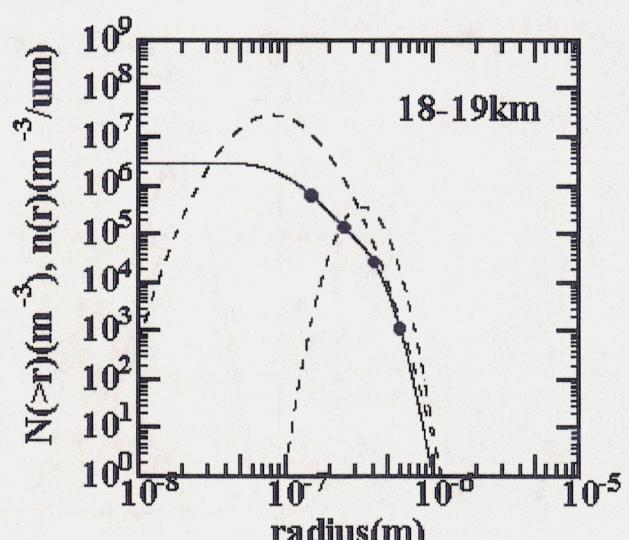


図 12.2 図 12.1 と同じ。ただし、図 11 の case4 (バ  
イモード粒径分布フィッティング) の例

ここでは、次の4通りの粒径分布を仮定した。

case 1 1山分布を仮定し、観測精度の高い小粒径側の観測値にあわせるようにフィッティングを行った。

case 2 2山分布を仮定。微小粒径モードの中心半径を  $0.05\mu\text{m}$  に設定

case 3 同上。微小粒径モードの中心半径を  $0.075\mu\text{m}$  に設定

case 4 同上。微小粒径モードの中心半径を  $0.1\mu\text{m}$  に設定。

図12には、粒径分布フィッティングの2例を示している。

図11の比較結果は、case1では、 $18\text{km}$  以下の高度をはじめとして、両者はよくあっていることを示している。しかし、OPC直接観測から得た消散係数の方が低めであり、上空ほどその傾向が大きくなっている。

一方バイモーダルフィッティングを行った case2、case3、case4では、OPC観測より求めた消散係数は、ILASによる観測値の範囲内にはあるが下層においても低めの値を示している。これらの結果は、系統的な問題をいずれかが含んでいることを示唆するものである。

それぞれの粒径分布に対して、消散係数の粒径分布を求めたのが図13である。曲線の囲む面積の総量が消散係数に相当する。モノモードの場合とバイモードの場合で、消散係数の粒径分布は大きく異なっている。主な相違点は、数濃度粒径分布曲線の曲率のちがい、case1における $0.6\mu\text{m}$ 付近の観測値とフィッティング曲線との大きな差、 $0.15\mu\text{m}$ 以下の領域の粒径分布の違いに起因している。いずれも粒径分布の不確実さに起因するものである。特に、 $0.15\mu\text{m}$ 以下の領域の粒径分布は直接観測がされていない。図13からもわかるように、この領域の消散係数に対する寄与は、無視できるほど小さくはない。微小粒径粒子による消散係数への寄与が大きくなる上空ほど case1と ILAS 観測値の差が大きくなることも、未計測領域の粒径粒子の寄与が現在の見積もりより大きい可能性を示唆している。

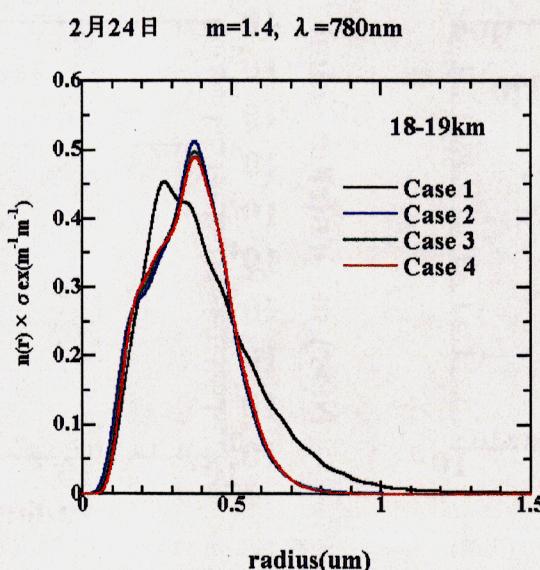


図13 OPC観測から得られた消散係数粒径分布  
モノモードフィッティング(case1)およびバイモードフィッティング  
(case2-4)に対する消散係数粒径分布の比較

## 5. 本研究により得られた成果

ピナツボ火山の噴火の影響がなくなり、ライダーで観測できる成層圏エアロゾルがバックグラウンドに近いところに落ち着いてきたのは 1998 年からだと考えられる。1996 年の北極域ユーレカにおけるライダー観測で検出された PSCs についてのモデル計算を行い、OPC とライダーで求めた変換係数を用いることで、液滴に関しては、ライダーの後方散乱係数をより一般的な量である体積密度に変換して議論することが可能になった。ILAS が 1997 年 1 月から 3 月にかけて北極上空で観測した約 60 の PSC プロファイルについて微量気体成分との比較からその組成推定を試みた。その結果、1 月中旬に観測された PSC イベントでは消散係数、硝酸とも STS 理論値に良く対応していた。3 月に観測された PSC イベントは少数であるがそれらのイベントはほぼ NAD か NAT に分類できた。南極成層圏エアロゾルの観測からは極成層圏雲の出現特性が高度によって大きく異なり、既存エアロゾル粒子の分布領域との関係があることが示唆された。また、極成層圏雲の出現の前後で、既存エアロゾルの組成にヒステリシス的変化がある可能性が示唆された。さらに、ILAS による 780nm 消散係数が直接観測から得られた粒径分布に基づく消散係数推定値と数 10% の誤差で、よく一致していることが示された。同時に、半径  $0.15\mu\text{m}$  以下領域の粒径分布を直接計測することが消散係数の検証には不可欠であることが明らかになった。

## 6. 引用文献

- 1) Carslaw, K. S., et al., *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1877-1880, 1995.
- 2) Newman, P. A. et al., *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2689-2692, 1997.
- 3) Yasui, M., et al., *SPIE*, Vol.4153, 488-495, 2000.
- 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) Hayashida, S., et al., *J. Geophys. Res.*, 105, 24,715-24,730, 2000.
- 7) Saitoh N., et al., submitted to *J. Geophys. Res.*, 2001.
- 8) Hayashida, S., et al., *Soc. Photo Opt. Instrum. Eng.*, 2000.
- 9) Worsnop, D.R., et al., *Science*, 259, 71-74, 1993.
- 10) Hanson, D., and K. Mauersberger, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-858, 1988.
- 11) Luo, B., et al., *Geophys. Res. Lett.*, 23, 3707-3710, 1996.
- 12) Toon, O. B., et al., *J. Geophys. Res.*, 99, 25,631-25,654, 1994.
- 13) Deshler, T., et al., *J. Geophys. Res.*, 105, 3943-3953, 2000.
- 14) Shibata, T., et al., *J. Geophys. Res.*, 102, 10829-10840, 1997.

### [研究成果の発表状況]

#### (1) 誌上発表

- ① Y. Sasano, M. Suzuki, T. Yokota, H. Kanzawa, H. Nakajima, H. Nakane, M. Shiotani, Y. Kondo, and S. Hayashida: *Soc. Photo Opt. Instrum. Eng.*, 3561, 61-71(1998)

“Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS): Validation and Preliminary Scientific Results,  
Optical remote sensing of the Atmosphere and Clouds”

- ② S. P. Burton, L. W. Thomason, Y. Sasano, and S. Hayashida: Geophys. Res. Lett., 26, 1719-1722 (1999) “Comparison of aerosol extinction measurements by ILAS and SAGE II”
- ③ Y. Sasano, Y. Terao, H. L. Tanaka, T. Yasunari, H. Kanzawa, H. Nakajima, T. Yokota, H. Nakane, S. Hayashida, and N. Saitoh: Geophys. Res. Lett., 27, 213-216(2000)  
“ILAS observations of chemical ozone loss in the Arctic vortex during early spring 1997”
- ④ S. Hayashida, N. Saitoh, A. Kagawa, T. Yokota M. Suzuki, H. Nakajima, and Y. Sasano: J. Geophys. Res., 105, 24,715-24,730(2000): “Arctic Polar Stratospheric Clouds Observed with the Improved Limb Atmospheric Spectrometer during the Winter of 1996/1997”
- ⑤ S. Hayashida, N. Saitoh, M. Horikawa, Y. Amemiya, C. Brogniez, T. Deshler, and Y. Sasano: Soc. Photo Opt. Instrum. Eng., 4150, 76-86(2000) “Stratospheric background aerosols and polar stratospheric clouds observed with satellite sensors -Inference of particle composition and sulfate amount-”

## (2) 口頭発表

- ① 斎藤尚子、林田佐智子、中島英彰、笹野泰弘: 1999 年度日本気象学会春季大会(1999)  
「ILAS で観測された両極域 PSC の解析 –判定条件の検討と気温履歴について」
- ② N. Saitoh, S. Hayashida, H. Nakajima and Y. Sasano,: Asia Aerosol Conference, Nagoya, 1999 “Polar Stratospheric Clouds Observed with the Improved Limb Atmospheric Spectrometer”
- ③ S. Hayashida, N. Saitoh, T. Deshler, H. Nakajima and Y. Sasano: Asia Aerosol Conference, Nagoya, 1999  
“Intercomparison of Arctic Polar Stratospheric Clouds Observed with Satellite and Balloon-borne sensors”
- ④ M. Yasui, M. Hayashi, K. Mizutani, T. Itabe, O. Uchino, T. Nagai, T. Fujimoto, T. Matsumura, M. Fujiwara, T. Shibata , International Laser Sensing Symposium, Fukui. Japan, 1999  
“Lidar and Optical Particle Counter (OPC) measurements of polar and tropical stratospheric aerosols”
- ⑤ 林政彦他 : 気象学会 1999 年秋季大会 (1999)  
「ドームふじにおける OPC とライダーによる極成層雲の観測」
- ⑥ 林政彦 他 : 第 22 回極域気水圏シンポジウム (1999)  
「ドームふじ上空の成層雲エーロゾルの季節変動 –エーロゾル・PSCs の輸送–」
- ⑦ 林田佐智子、斎藤尚子、堀川真理子、濱村翠、笹野泰弘: 大気化学シンポジウム(2000) 「ILAS で観測された 1997 年北極域 PSC の解析 1 –硝酸との対応に着目して-」
- ⑧ 斎藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘: 大気化学シンポジウム(2000)  
「ILAS で観測された 1997 年北極域 PSC の解析 2 -気温との対応に着目して-」
- ⑨ 斎藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘: 2000 年度日本気象学会春季大会(2000)  
「ILAS で観測された北極域 PSCs の組成について」
- ⑩ N. Saitoh, S. Hayashida, H. Nakajima and Y. Sasano: Western Pacific Geophysical Meeting, Tokyo(2000) “Characteristics of Polar Stratospheric Clouds inferred from ILAS measurements”
- ⑪ S. Hayashida, Y. Amemiya, N. Saitoh ,T. Deshler, M. Hayashi, and Y. Sasano: Quadrennial ozone

- symposium, Sapporo(2000) "Comparison of ILAS PSC measurements with lidar and balloon measurements"
- ⑫ N. Saitoh, S. Hayashida, H. Nakajima and Y. Sasano: Quadrennial ozone symposium, Sapporo, (2000)  
"Arctic PSCs observed with ILAS during the winter of 1996/1997: Analysis of temperature history and inference of the chemical composition of particles"
- ⑬ 斎藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘: 2000 年度日本気象学会秋季大会(2000)  
「1996/97 年冬期北極域 PSCs の化学組成」
- ⑭ M.Yasui, M.Hayashi, T.Nagai, T.Matsumura, K. Mizutani, T.Itabe, O.Uchino, T. Fujimoto, M. Fujiwara, T. Shibata, S. Kaloka, S. Hamdi: SPIE, Vol.4153 (2000), Sendai, Japan "Lidar and Optical Particle Counter (OPC) measurements of polar and tropical stratospheric aerosols"
- ⑮ 斎藤尚子、林田佐智子、笹野泰弘、第 29 回日本リモートセンシング学会秋季大会(2000)  
「ILAS データを用いた 97 年北極極成層雲の組成推定」
- ⑯ 雨宮百合子、斎藤尚子、林田佐智子、白石浩一、林政彦、笹野泰弘: 第 11 回大気化学シンポジウム(2001) 「ライダー及び ILAS データを用いた極成層雲の解析 -1997 年冬期南極の化学組成に注目して-」

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

①Americxan Geophysical Union Outstanding Student Paper Award:

N. Saitoh, , S. Hayashida, H. Nakajima and Y. Sasano, Western Pacific Geophysical Meeting, Tokyo, Japan, June 2000 "Characteristics of Polar Stratospheric Clouds inferred from ILAS measurements"

(5) 一般への公表・報道等

なし