

課題名	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		
課題代表者名	中島英彰（独立行政法人国立環境研究所大気圏環境研究領域）		
研究期間	平成16-18年度	合計予算額	165,800千円（うち18年度 54,800千円）
研究体制	<p>研究体制</p> <p>(1) ILAS/ILAS-II観測スペクトルデータからの大気パラメータ導出手法の高度化に関する研究（独立行政法人国立環境研究所）</p> <p>(2) 地上・気球・他衛星データ等を利用した衛星データ検証に関する研究（独立行政法人情報通信研究機構、京都大学、東北大学、福岡大学）</p> <p>(3) ILAS/ILAS-II等衛星データを用いた極域オゾン破壊機構解明に関する研究（独立行政法人国立環境研究所、奈良女子大学、京都大学、東京大学）</p> <p>(4) 化学輸送モデルを用いた極域オゾン破壊に関する研究（独立行政法人国立環境研究所、名古屋大学）</p> <p>(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）</p>		
研究概要	<p>研究概要</p> <p>1. 序（研究背景等）</p> <p>1980年代初頭の南極オゾンホールが発見に端を発する国際的なオゾン層保護の動きの中で、1985年には「オゾン層保護のためのウィーン条約」が採択された。その後1987年にはオゾンを破壊する物質であるフロン等の生産量・消費量を国際的に規制するための具体的な行動を定める「モントリオール議定書」が採択され、1989年1月に発効した。わが国でもこれらの国際的な動きを受けて、「特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する法律（オゾン層保護法）」が1988年5月に制定・公布されている。ウィーン条約においては、締結国は、「研究及び組織的観測等に協力すること（第3条）」と定めており、またわが国のオゾン層保護法においても、「国は、特定物質のオゾン層に及ぼす影響の研究その他のオゾン層の保護に関する調査研究を推進する（第26条）」ことが規定されている。このような流れを受けて、環境庁（当時）では1988年わが国独自のオゾン層観測衛星センサーの開発・運用に取り込むことを決定し、1996年8月打上げのADEOS衛星搭載の大気環境観測センサー・改良型大気周縁赤外分光計（ILAS）を開発した。また、その後継機として、2002年12月打上げのADEOS-II衛星搭載の大気環境観測センサー・改良型大気周縁赤外分光計II型（ILAS-II）を開発した。ILASは1996年11月から1997年6月まで、ILAS-IIは2003年4月から10月まで、南北両半球高緯度におけるオゾン破壊に関連した微量気体成分の高度分布を測定することに成功した。</p> <p>南極オゾンホールで知られるように、極域成層圏では冬期間の低温化と極渦の発達→極成層圏雲（PSC）の発生→PSC表面上での不均一反応による塩素化合物の活性化とPSCの重力落下による硝酸の除去（脱窒・脱硝）→太陽光が得られる春季に大規模なオゾン破壊、といった一連の化学・力学過程が生じると考えられている。このような過程の示唆は、航空機や衛星などの各種観測から過去十数年の間に飛躍的に理解が進んだが、それにも関わらず、依然として化学的オゾン破壊の定量的な理解には問題が残っている。最近では、モデルに利用されている臭素の量が少ないために、オゾン破壊量を過小評価しているのではないかと、ということも議論され始め、寿命の非常に短い臭素化合物の成層圏への侵入の重要性も指摘され始めている。また、そのような臭素化合物の発生量の変化は、地球温暖化・気候変動と関連し得る可能性についても指摘され始めているところである。いずれにせよ、未だ我々の成層圏科学に対する理解が不十分であることを示している。</p> <p>2. 研究目的</p> <p>本研究では主にILAS-IIやILAS等わが国の衛星センサーによって得られたデータ、及び海外の衛星センサーによって得られたデータを包括的に用いて、極域オゾン層変動の定量的把握とその変動を引き起こす物理・化学的メカニズムの解明を課題の目的とする。そのため、衛星観測スペクトル</p>		

データから微量気体量を導出するアルゴリズムの高度化のための研究、衛星データ質の検証とその評価に関する研究、精度の確立された衛星データを用いた極域オゾン層破壊メカニズムに関する詳細な解析的研究、及び3次元化学輸送モデルと衛星データの比較による、オゾン破壊メカニズムの理解に関する研究を行うことを目的とする。

目的達成のための目標は以下のとおりである。ILAS-IIデータに関しては、史上最大規模に発達した2003年の南極上空でのオゾンホール発生の発生から消滅までを観測することに成功した。課題の開始時点では、初期的な高度分布導出アルゴリズムである、バージョン1.4を用いた処理が始まったばかりであったが、この課題を通じて、これまでILASでも問題になっていた、極成層圏雲(PSC)発生時における、気体濃度の導出精度の劣化を抑えるための気体・エアロゾルの同時算出手法の高度化や、冬期のメタンに見られる正バイアスの低減に向けた調査研究を実施することを目標とする。次に、それらデータの質を評価するために、独立に観測された他衛星データや、海外キャンペーン等を通じて得られた地上からの検証データを利用した総合的な検証解析を実施し、その結果をアルゴリズムの高度化にフィードバックすることを目標とする。これらのアルゴリズム開発/データ検証解析と平行して、特に2003年南極のデータから、PSCの発生頻度の定量化と脱窒規模の定量化を行い、オゾンホールの生成に必要な条件がどの程度整っていたのかを調べることを目標とする。さらに、実際のオゾン破壊量および破壊速度に関して、大気力学トレーサー(亜酸化窒素やメタン)などを活用し、定量的にそれらの規模を把握することを目標とする。さらに大気力学的観点からは、これまで中層大気における子午面循環は、直接的な観測が困難なため、精密な放射計算にもとづく熱収支あるいは大気波動にともなう運動量収支から間接的に求められてきたが、これに対し、ILAS-IIからの力学トレーサーの分布から鉛直流の見積もりを実施する。

ILASデータに関しては、ILAS-IIに先行してデータ質の評価が完了した硝酸塩素(ClONO<sub>2</sub>)のデータを利用して、1997年北極の塩素化合物の時間変化(振る舞い)を明らかにすることを目標とする。また、三次元の化学輸送モデルと別個の流跡線解析ツールを利用した大気の混合過程の定量化を行い、1997年春季のILASデータとの比較を通じて、北極で破壊されたオゾンが、より低緯度(中緯度側)のオゾンに与える影響について定量的に把握することを目標とする。

### 3. 研究方法

本研究は、以下の4つのサブテーマから構成される。(1) ILAS/ILAS-II観測スペクトルデータからの大気パラメータ導出手法の高度化に関する研究、(2) 地上・気球・他衛星データ等を利用した衛星データ検証に関する研究、(3) ILAS/ILAS-II等衛星データを用いた極域オゾン破壊機構解明に関する研究、及び(4) 化学輸送モデルを用いた極域オゾン破壊に関する研究、(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の5つである。

サブテーマ(1)では、主にILAS/ILAS-II観測スペクトルデータから気体とエアロゾルを首尾よく切り分けるためのアルゴリズム高度化を実施した。サブテーマ(2)と(5)では、米国アラスカやスウェーデン・キルナに設置された地上FTIRや、北極ニーオーレンで実施された気球観測、及びGPS衛星データ等を利用して、ILAS-IIのデータ質評価・検証解析を実施した。サブテーマ(3)では、主に2003年南極オゾンホール中で生じたいくつかの化学・力学過程の定量化研究や、実際のオゾン破壊量・破壊速度の定量化を実施した。また、ILASデータを用いた1997年北極での塩素化合物の動態に関する研究を行った。サブテーマ(4)では、主に化学輸送モデルを用いた北極でのオゾン破壊空気が、中緯度オゾンにどのような影響を及ぼしているのかを定量的に評価した。以降、それぞれのサブテーマの内容の概要を述べる。

(1) ILAS/ILAS-II観測スペクトルデータからの大気パラメータ導出手法の高度化に関する研究  
ここでは、以下4つの調査研究を実施した。

1) 気体成分による吸収スペクトルに重畳するエアロゾルの吸収によるベース曲線をより精密に推定する方法を調査研究した。2) 従来より指摘されてきたメタンデータの季節依存の正バイアスの問題に対して、その問題解決のためのリトリーバル高度化に関する調査を行なった。3) 気体濃度プロファイルの誤差評価に関する調査を行ない、新たな評価手法を開発した。4) 可視領域(0.8ミクロン付近)における波長領域の選択から気温・気圧データのリトリーバル高度化に関する調査を行なった。2)から4)については成果詳細版に譲ることとし、ここでは1)について簡潔に述べる。

研究の背景として、ILAS/ILAS-IIの赤外領域(6-12ミクロン)の観測スペクトルデータは気体成分の吸収とエアロゾル/PSC粒子の吸収により、特徴的なスペクトルを形成している。これを従来法で

は、気体成分の吸収が比較的小さい4つのスペクトル素子(全部で44素子)において予め気体吸収分を推定し、その後、他の波長領域における気体吸収分を線形補間により推定する(これを線形補間法と呼ぶ)。これにより簡易的に気体・エアロゾルの分離を行ない、平行して、気体濃度プロファイルの導出と、4つの素子でのエアロゾル濃度(消散係数)の導出を実施している。しかしながら、実際のエアロゾル粒子の吸収スペクトルは線形では表現できないため、一般に、線形からの逸脱度に応じて気体吸収分が不正確に推定されることになる。このような不利点を克服すべく、本研究ではより精度の高い気体・エアロゾル吸収の分離を目指して、最新の室内実験により得られたいくつかのタイプのエアロゾル組成の複素屈折率データをもとに、ミー散乱理論に基づき「エアロゾル物理モデル」を構築し、エアロゾル/PSCのベース曲線を決める手法で気体濃度プロファイルと同時に、各粒径・組成毎のエアロゾル/PSCプロファイルの導出を試みた。過去の気球観測等による粒径分布の観測例などから、妥当と思われる粒径ピンを設定し、そのピン毎の吸収スペクトルを計算した。これらスペクトルを線形結合することで、ベース曲線となるべきエアロゾルの吸収スペクトルを表現し、同時に気体濃度を導出する。この手法で導出された気体濃度プロファイルの妥当性について、詳細に検討した。ILASの全データ(約6000プロファイル)について、新手法と従来法による結果を、各気体毎、高度毎に濃度の絶対値差として比較した。なお、PSCが発生しているシーンにおいて、特に水蒸気やメタンに不本意な正または負のバイアスが現れることが分っている。

## (2) 地上・気球・他衛星データ等を利用した衛星データ検証に関する研究

ここでは、南北両半球高緯度における地上・気球・航空機・衛星観測データ等を用い、データ処理アルゴリズムの高度化および国際的に高水準な品質のデータを得るために必要不可欠な、他観測データを用いた比較検証および関連研究を行った。なお、ILAS-IIとの同期観測、および直接比較が適当でないものは検証に寄与する観測・データ解析を含めて「検証解析」を行った。1)地上FTIR観測を用いた大気微量成分の比較・検証、および解析手法の高度化を行うとともに、2)地上FTIR観測の装置誤差調査および手法改善をはかり、さらに3)衛星データ検証のためのGPS掩蔽衛星観測による気温観測、4)極域成層圏エアロゾル・極成層圏雲の粒径分布変動の気球観測をすすめた。

1) 情報通信研究機構が推進するアラスカプロジェクトの一環として運用されている、米国アラスカ州ポーカフラット(65.1N, 147.5W)のフーリエ変換型赤外分光計(FTIR)データを用いた。2003年4-5月のILAS-IIによる65N付近の観測結果をFTIRによるオゾン・硝酸データと比較した。アラスカFTIR(Bruker120HR)の周波数分解能は $0.0019\text{cm}^{-1}$ であるが、太陽天頂角変化量を最小限に抑えるため $0.0035\text{cm}^{-1}$ で観測を行った。年間観測日数はオゾン(2425~3060 $\text{cm}^{-1}$ )の場合2001、2002、2003年でそれぞれ107、101、93日間であった。スペクトル反転解析にはロジャーズ最適法アルゴリズムを用いた。これら一連の作業はSFIT2(version3.7)ソフトウェアを使用した。

2) またFTIRの装置誤差調査については、つくばに設置されたFTIRを用いた。装置関数の測定では、まず臭化水素や亜酸化窒素のガスセルを分光器内にセットし、これらのガスの吸収線を測定する。ガスセル測定結果からの装置関数の決定には、ドイツのHaseらによるプログラムLINEFITの改良版であるLINEFIT9を使用する。光軸の調整はfringeを用いた方法と焦点調整、望遠鏡を用いた調整などを行い、そのたびに装置関数を測定して結果を確認した。長期解析に用いたデータは1998年12月から2005年6月の6年半のもので、観測日数は塩化水素が451日、フッ化水素が421日、オゾンが428日、硝酸が417日、亜酸化窒素が427日、一酸化炭素が437日である。経年変動を見るために季節変化と経年変動はサインカーブ+2次曲線によってフィッティングしている。

3) GPS掩蔽観測は、測位電波が大気中を伝播する際の遅延特性から屈折率の高度プロファイルを求め、さらに気温(対流圏下部では湿度、電離層では電子密度)を得る斬新な衛星観測手法である。世界初のGPS掩蔽実験は1995年に開始されたGPS/METであるが、小型衛星で実現できること、またsecondary payloadとして搭載しやすいことから、その後多くの衛星ミッションが行われている(最近では、2006年4月に6台の小型LEO衛星によるFORMOSAT-3/COSMICがGPS掩蔽観測を開始した)。この研究では、2001年にドイツが打ち上げたCHAMP衛星によるGPS掩蔽観測で得られたデータを用いた。

4) 極域成層圏エアロゾル・極成層圏雲の気球観測については、冬季にスピッツベルゲン諸島Ny-Aalesund(79N, 129W)において、2002/03の冬季から2005/06の冬季にかけて4回の冬季および2005年の秋季の観測を行った。気球搭載式粒子計数装置として、2種類の光散乱式粒子計数装置を用いている。半径0.15 $\mu\text{m}$ 以上の粒径の観測には、半導体レーザーを光源としたOPCを、半径0.15 $\mu\text{m}$ 以下の粒径に関しては、外部ミラー型He-Neレーザーを光源としたLPC(閾半径:0.056、0.075、0.1、0.125、0.15 $\mu\text{m}$ )を用いた。同時に、ライダーによる後方散乱係数(532nm、1064nm)、

偏光解消度(at 532nm)の bulk特性観測を実施した。これらの気球による粒径分布の直接観測データとライダーによる遠隔観測データ、ILAS、ILAS-II観測データを比較解析した。さらに、昭和基地において1997年より継続的に通年実施されているOPCゾンデ観測データの解析により、ILAS、ILAS-IIが観測を実施した時期の成層圏エアロゾルの長期変動について、特に1991年ピナツボ火山の成層圏エアロゾル擾乱の減衰に着目した解析を行った。

### (3) ILAS/ILAS-II等衛星データを用いた極域オゾン破壊機構解明に関する研究

ここでは、以下のオゾン層破壊過程とそれに関連する化学・力学過程の定量解析を行った。

1) 定量解析に先んじて、総合的なILAS-IIのデータ質評価を実施した。そのデータセットを利用して、2) 2003年南極での極成層圏雲(PSC)の発生頻度を定量化した。3) PSCの発生に伴う、一時的な気相硝酸のPSC粒子中への取り込みや、粒子の重力落下による不可逆的な硝酸の除去(脱窒もしくは脱硝)を確認した。4) そのような特殊な状況下の中で、実際のオゾン破壊量と破壊速度を高度毎に定量化することに成功した。5) サブテーマ1で開発・改良された、エアロゾル物理モデルに基づく気体・エアロゾル同時推定法を利用したILASデータセットを用いて、1997年の北極塩素化合物の時間発展について世界で初めてその詳細な連続測定結果を示した。6) 大気トレーサーの測定から、極域成層圏における大気の下降速度を定量的に見積もった。

1) 初めに、ILAS-IIのデータ質評価については、最初のデータ版であるバージョン1.4のオゾン、硝酸、亜酸化窒素、メタン、エアロゾル消散係数について、ILAS-II観測と時空間一致の良い他の衛星観測データとの比較を主に行った。さらに、数は限られるが、より精度の高い気球観測データとの比較も実施した。

このデータを用いて、以下の2)から5)の2003年南極オゾンホール中の化学過程の定量解析を行った。

2) PSCの発生頻度に関しては、そのPSC規模の指標となるエアロゾル消散係数を用いて、極渦内でのILAS-II観測のうち、ある閾値を超えるエアロゾル消散係数をもつILAS-II観測の割合を求めた。ここで閾値をどのように決めるかが鍵となる。ここでは、これまでに実績のある手法として、10日間毎に観測高度別のエアロゾル消散係数の平均値と標準偏差値を算出し、その平均値に標準偏差を5倍した値を加算して、それをその期間・高度での閾値とした。

3) 次に、そのPSCの発生により生じる一時的もしくは不可逆的な脱窒過程について調べた。手法としては、空気塊の流跡線解析を用いてILAS-IIの各高度の観測位置(これを測定1とする)から順方向に他のILAS-IIの観測位置(これを測定2とする)を探す、いわゆるマッチ手法を利用して測定ペアを抽出した。これら測定1(始点)と測定2(終点)を1つのマッチペアとする。始点および終点での硝酸およびエアロゾル消散係数の変化量から数日以内の比較的短い時間スケールで生じた物理化学過程を議論する。

4) 最後に、オゾン破壊量と破壊速度の定量化の手法について述べる。オゾン破壊進行直前の6月中旬におけるオゾンと亜酸化窒素の相関関係を確立した。亜酸化窒素は下部成層圏において、極めて長い化学的寿命をもち、また、オゾンも光化学的な破壊を受けない限りは、この時期の下部成層圏では十分に寿命が長いと、季節進行によって、オゾン破壊が生じると、基準相関からの逸脱が生じる。この規模が、化学的なオゾン破壊量に相当する。これを一般にトレーサー相関関係法と呼ぶ。このような相関関係を10日毎に、6月中旬以降、10月中旬まで解析した。さらに、いくつかの高度領域に分けて、基準相関からの逸脱量を時系列で表した。これがオゾン破壊規模の時間変化となる。この時間変化を日毎平均し、前日との差分を取ることで、1日当たりのオゾン破壊速度を求めた。これらの定量解析結果について議論する。

5) 一方、ILAS-IIのメタンデータを利用した極域成層圏から中間圏における大気下降速度の定量化については、先ず、メタン濃度の高度時間断面を作成する。メタンは大気トレーサーとしてしばしば用いられるように化学的寿命が長く、その濃度は高度とともに減少する。同じ濃度のメタンが見られる高度が時間とともに、どのように変化するかを見ることで大気の上昇下降速度を見積もることが可能である。

6) ILASからの1997年北極成層圏における塩素化合物の振る舞いについて、硝酸塩素( $\text{ClONO}_2$ )のデータ(ILAS-IIでは未だ未検証)を利用した。初めに、PSCイベントの抽出を従来の手法(前述の2)と同じ)で行った。また、同時に測られている亜酸化窒素( $\text{N}_2\text{O}$ )から、これまで知られている $\text{N}_2\text{O}$ と無機塩素量( $\text{Cl}_y$ )の関係式を用い、全塩素量の増加率を年2.8%と仮定して1997年の $\text{Cl}_y$ を推定した。これにより、 $\text{Cl}_y$ の力学的な変動要素を排除した上で、 $\text{ClONO}_2$ の振る舞いを解析できる。さらに、 $\text{ClONO}_2$ と密接な光化学的繋がりのある二酸化窒素( $\text{NO}_2$ )のデータを複合的に利用して、 $\text{ClONO}_2/\text{Cl}_y$ 比

の変動要因を解析した。

#### (4) 化学輸送モデルを用いた極域オゾン破壊に関する研究

時間閾値解析法は、空気粒子のトラジェクトリーを解析し、トラジェクトリーが境界（本研究では北極渦の境界）を横切る粒子の数を勘定する。ただし、すべての時間スケールの粒子の境界超えを数えることはせず、ある閾値以上の時間スケールの粒子の境界超えのみを勘定する。本研究では閾値を1日、3日、7日、15日に設定し、計算を行った。例えば、閾値7日の場合は、極渦の内側に7日以上滞在した粒子が極渦の境界を越え、極渦の外側に7日以上滞在したとき、極渦の内側から外側へ粒子が通過したとみなす。

水平分解能T42 (2.8度×2.8度) のCCSR/NIES化学輸送モデルを使って、以下の3つの数値実験を行った。

- ・実験1：化学輸送モデルの全領域で化学過程を働かせる。
- ・実験2：上部対流圏から下部成層圏にあたる高度220 hPa～8.6 hPaの間の極渦の内側でのみ化学過程を働かせ、極渦の外側では、オゾンを経験しないトレーサーとして計算する。
- ・実験3：高度220 hPa～8.6 hPaの間の化学輸送モデルの全領域でオゾンを経験しないトレーサーとして計算する。

例えば、オゾン分布の実験2と実験3の差は、極渦内で化学反応により破壊されたオゾンの影響を表す。

#### (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

ILAS-IIのバージョン1.4データとの比較のために、地上からの分光観測データとして、以下の述べるスウェーデン、キルナ(北緯68度)における赤外分光フーリエ変換分光計 (FTIR) からの高度分布導出結果を用いた。また、衛星観測データとして、欧州環境観測衛星 (Envisat) 搭載の受動型大気測定マイケルソン干渉計 (MIPAS) からのデータを用いた。FTIR分光計は、そのスペクトル分解能が約0.003 cm<sup>-1</sup>という高分解能の装置である。測定したスペクトルは、既存の高度分布導出プログラムにより、オゾンを始め、硝酸、亜酸化窒素、メタン、水蒸気などのプロファイルが得られる。但し、地上からの測定であるため、高度分解能は、下部成層圏において、8-10 kmと悪くなる。キルナとILAS-IIの観測が同期するのは、そう多くはなく、お互いの観測の距離差が500 km、時間差が12時間以内の一致基準を用いると、19の一致が見られた。次に、比較のために、ILAS-IIの高度分解能 (1-2 km) を、FTIRの高度分布導出法に基づく特別な方法で高度方向になまらせて、FTIR結果との比較を実施した。一方、MIPASとの比較は、お互いの高度分解能は大きく違わないため、そのまま比較を行った。比較に用いた観測ペア数は、一致基準を距離差300 kmと時間差12時間としたところ、北半球から200余り、南半球から600余りの非常に多くの一致が抽出された。

### 4. 結果・考察

#### (1) ILAS/ILAS-II観測スペクトルデータからの大気パラメータ導出手法の高度化に関する研究

初めに新手法と従来法により計算した透過率スペクトルと観測スペクトルとの残差の状況を確認した。その結果、エアロゾル/PSCが存在する高度14-23 kmのどの高度でも新手法による残差が小さく、後述するように結果として導出された気体濃度プロファイルも尤もらしくなることが分かった。次に、より統計的観点からこの新手法の妥当性を評価するために、全てのILAS測定シーン (8ヶ月間の衛星運用期間中に約6000) についてこの手法を適応し、特にPSCが存在している時期での改善について確認した。気体の吸収が比較的強い、オゾン、硝酸、水蒸気、メタンについての結果を考察する。オゾンと硝酸はその吸収帯の波長位置と吸収強度が大きいことから、エアロゾル/PSCによる影響を受けにくいと、エアロゾル消散係数がある程度大きな場合でも、気体プロファイルは変化しないことが分かった。一方、水蒸気とメタンでは、消散係数がある程度大きいと明らかに従来法では異常なプロファイルであるが、新手法ではそれが改善されることが分かった。水蒸気では最大で1.5 ppmv程度、メタンでは0.8 ppmv程度、PSC発生シーンにおいてバイアスが解消された。

次に、二酸化窒素、亜酸化窒素、硝酸塩素、五酸化二窒素、CFC-12、そしてCFC-11についての結果を考察する。全体的な傾向として、二酸化窒素、亜酸化窒素、CFC-12では、新手法の方が導出された気体濃度が小さくなることが分かった。一方、硝酸塩素は多少大きくなることが分かった。従来法によるデータ質は、亜酸化窒素、CFC-12はやや大きめ、硝酸塩素はやや小さめであったため、新手法では、これらの問題も一度に解消される方向にあることも分かった。

残される課題としては、高度15 km以下において、新手法は、従来法よりも、亜酸化窒素濃度が5-10%程度低くなることが分かる。このような結果を踏まえ、成層圏最下層領域での新手法の向上を図る必要があることも明らかとなった。

## (2) 地上・気球・他衛星データ等を利用した衛星データ検証に関する研究

本サブテーマでは、南北両半球高緯度における地上・気球・航空機・衛星観測データ等を用い、ILAS-IIデータの検証解析に資することを目的とする。データ処理アルゴリズムを高度化して国際的に高水準な品質とするためには、他観測データを用いた検証は必要不可欠である。ここではILAS-IIとの同期観測、および直接比較が適当でないものは検証に寄与する観測・データ解析を含めて「検証解析」を行う。本研究では以下の成果を得た。

1) アラスカ(65.1N, 147.5W)のフーリエ変換赤外分光器 (FTIR) 観測 (2003年春季) からILAS-II v1.4データと比較検証したところ、オゾンでは気柱全量および各高度での混合比とも20%以内、硝酸では高度17km以上で10%以内の差で一致した。FTIRデータの誤差解析を行ったところ誤差は20%以内であり、ILAS-II観測との差は誤差の範囲であった。また統計的な誤差を評価するため、時系列(季節変動・年々変動)を導いた。オゾンなど基本的な大気物理量に対して観測精度を明らかにしたことにより、ILAS-II比較検証結果が適切であることが確認された。

2) FTIR観測においては分光計の装置関数が大気微量成分の高度分布推定に大きく影響するため、つくばのFTIRを用いて装置関数の測定および光軸調整などを行った結果、大幅な装置関数改善が可能となり、かつ装置関数改善により高度分布導出精度が向上したことを解析結果から確認した。また観測結果された経年変動から塩化水素、フッ化水素全量にフロン規制の効果が見え始めていることがわかった。

3) GPS掩蔽観測で得られる高品質の成層圏気温データをILAS-II気温プロファイルの検証に用いるため、CHAMP衛星によるGPS掩蔽データの蓄積と整理、気温データ検証解析などを行った。従来の処理法では高度35 km以上で温度推定に誤差が含まれるため、新たな解析法を開発し、他の観測結果との比較・検証を行った。またこの研究により、極域成層圏における温度擾乱の気候学的特性を明らかにすることができ、極域の重力波は地衡風調節、プラネタリー波の砕波、および極渦の崩壊と関連することが分かった。さらに、北極と南極では波動エネルギーの季節変化に相違が認められ、その卓越する生成機構も異なることが示唆された。

4) 気球搭載粒子計数装置とライダーによる光学特性の比較結果は、ILASおよびILAS-IIのエアロゾルの基本情報として利用されている可視領域の光学特性の評価のためには、バックグランドエアロゾルの可視領域の光学特性の評価には、半径0.056ミクロンからの粒径領域の粒径分布を正確に把握することが必要であること、また、この粒径領域の濃度、粒径分布は、2003年以降経年的に安定していることを示した。また、極成層圏雲の光学特性の評価にも、同様の微小粒子にいたる粒径領域までの光学特性の把握が必要である可能性を示した。これらの結果は、ILAS等の可視域衛星データの解釈にあたっては、0.15ミクロン以下の粒径領域のエアロゾル変動を考慮する必要性を示しており、経年変動を含む衛星によるエアロゾル観測結果のデータ検討に資するものである。また観測された成層圏エアロゾル量の変動から、粒径分布の変動極渦の崩壊に伴う極渦外からのエアロゾル流入が100mスケールの層でおきている領域があること、ピナツボ火山噴火の影響が噴火後10年近く継続していたことなどがわかり、ILAS、ILAS-II等のエアロゾル観測結果の経年的、季節的なデータ比較に資すると期待される。

## (3) ILAS/ILAS-II等衛星データを用いた極域オゾン破壊機構解明に関する研究

ここでは以下に述べるような成果を得ることが出来た。

1) ILAS-IIバージョン1.4データセットのデータ質評価を実施し、定量的に各データの信頼性を評価した。その結果、オゾン、硝酸、亜酸化窒素、メタン、エアロゾル消散係数がどれも10-20%の確度を持つことが分かった。

2) 2003年南極成層圏におけるPSC発生頻度(P(PSC))の高度時間断面を作成した。PSCは5月30日に高度23 km付近で初めて観測され、その後衛星の運用が停止した10月24日まで連続的に観測された。全体としては低温域とP(PSC)の高い時期・高度はおおよそ対応していることが分かった。しかし、9月の高度20 kmに着目すると、気温はかなり低いにもかかわらず、P(PSC)は20%程度と低い。PSC粒子自体は硝酸を含んでいるため、その発生を左右する気温以外の大きな要因は気相の硝酸濃度である。硝酸濃度が高ければ、PSCの発生指標としてしばしば使われる、硝酸三水和物(NAT)の存在温度(T-NAT)がより高くなり、定性的にはPSCが発生し易くなる。硝酸は高度20 kmでは7月前半には5.5から9.3 ppbvと高かったが、季節進行とともに低下し、9月中旬には0.7から1.5 ppbvまで低くなっていた。このレベルの硝酸濃度では、T-NATもかなり低下するため、気温がT-NAT以下となる確率(P(T-NAT))もまた低下すると予想される。実際に高度20 km以下では、PSC発生頻度と、気温がT-NAT以下となる確率との間に良好な相関関係が見られた。しかしこれとは対照的に、高度21-23 kmにおいてはP(PSC)とP(T-NAT)の相関は弱くなる。8月下旬から9月初旬にかけてP(T-NAT)は90%近い高値であったが、対応するP(PSC)は15-40%という低い値であった。この原因を考察した結果、その時期でのエアロゾル消散係数が冬の初期に比べて低くなっており、PSC粒子の核として働くべ

き粒子が減少したことによって、PSCの増大が抑制されたものと考えられる。このようなエアロゾル濃度の減少は、クレンジング効果とも呼ばれ、PSCの重力落下により引き起こされたものと考えられている。

3) 同じく2003年南極成層圏における硝酸とエアロゾル消散係数の振る舞いから、期待される数日以内の時間スケールでの不可逆的な脱室規模の定量化を行った。そのために、各マッチペアの流跡線上の終点での硝酸濃度から始点での硝酸濃度の差分(硝酸濃度差)を求め、それを始点での硝酸濃度、およびエアロゾル消散係数の相対変化(終点/始点比)の関数として表した。その結果、6月と8月では、極めて特徴の異なる硝酸濃度差と消散係数比との関係が得られた。6月の高度20 kmでは、硝酸濃度差が大きく、かつエアロゾル消散係数比も大きいマッチケースがいくつか見られた。これらのケースでは、始点(もしくは終点)でPSCの発生を示す程度に大きなエアロゾル消散係数となっており、逆に終点(もしくは始点)では、平穏なバックグラウンドレベルの消散係数となっていた。また、消散係数が高い時には硝酸濃度は低く、それらの間には比例関係が認められた。以上のことから、6月というまだPSC発生初期段階においては、一時的な脱室が卓越しており、硝酸濃度差の規模は、エアロゾル消散係数比の規模と非常に良く相関することが初めて分かった。一方、6月よりもさらに気温の低下が進んだ8月では、始点および終点どちらの硝酸濃度も、2 ppbv程度に低く、これは、冬の初期(5月上旬)の硝酸と亜酸化窒素の関係から導かれる基準硝酸濃度(12 ppbv)に比べて10 ppbvも低くなったことが分かった。同時に測定されているエアロゾル消散係数は、バックグラウンドレベルに近い低濃度であったため、既に不可逆的な脱室が進行したか、もしくは、一時的な脱室だとしても低濃度の硝酸と消散係数を説明するには、粒径が1日当たり1 km以上の落下速度をもつ規模の大きさになる必要があるため、大規模な脱室を生じ得る可能性があることが分かった。

4) 以上の解析から、5月以降の連続的な高頻度のPSC発生と8月までに生じた大規模な脱室の結果、オゾン破壊にとっての条件が十分に整っていることが分かった。実際の2003年南極オゾンホール定量化の結果、トレーサー相関関係法で求めたオゾン破壊量は、高度15-17 km付近において、基準となる6月の2.5 ppmvから、9月の終わりでは、ほぼゼロにまで低下していたことが明らかになった。同様に、高度21-22 kmでは、基準濃度の3 ppmvから1 ppmvまで変化した。この高度では、特に9月の変化が大きく、オゾン破壊速度は、最大で1日当たり90 ppbvという規模に達していたことが分かった。このような規模は、過去の報告ともほぼ一致し、現状の大気環境下では観測的にこのレベルのオゾン破壊速度が最大値であると考えられる。

5) ILAS-IIデータを利用した、力学過程の研究からは、以下のことが分かった。成層圏から中間圏における大気力学トレーサーであるメタンデータを用いて、南半球の夏から冬の時期にかけての高高度(50 km以上)の空気塊の下降運動を、世界に先駆けて見出すことに成功した。メタンの高度分布に、特徴的な濃度ピークがあることが見出され、このピーク高度が季節進行とともに下降してくる様子が明らかになった。その速度はおおよそ1ヶ月当たり10 kmになる。高度が高くなるとともに大気密度は減少するので、高高度からの早い下降はそれよりも低高度のゆっくりとした下降と整合的である。一方で、なぜこの上部成層圏領域にメタンの極大が出現するのか興味深い問題である。この点について詳しく見るため、米国の衛星センサHALOEの観測から1997年2-3月のメタンの帯状平均値を緯度・高度断面にて解析したところ、この時期メタンの極大が低緯度域から伸びた構造を持ち高度60 km付近に極大値を持っている、あるいは言い換えると南半球高緯度成層圏界面付近(50km)に低濃度域が存在していることがわかった。さらにWACCM光化学モデルデータにもとづいてこの低濃度のメタン分布を詳細に調べたところ、それがメタンの酸化によって作り出されており、同時期・同領域においてメタンの時定数は2ヶ月程度と短くなり、励起状態酸素原子や水酸基ラジカルの濃度も増加すること、さらには塩素ラジカルの濃度も増加することが分かった。

6) 最後に、ILASデータを利用した、1997年北極成層圏での、硝酸塩素の時間発展の様子を明らかにした。代表として、温位475 K, 550 K, 625 Kにおける $\text{ClONO}_2/\text{Cl}_y$ の時間発展を極渦の内側、境界、外側に分類して解析した。極渦内・境界における値の変動をより詳しく調べるために、期間を1月15-2月10日、2月11-3月10日、3月11-4月30日の3つの期間に分けた。第Iの期間では、475 Kでは $\text{ClONO}_2$ は極渦内で極渦外より低い値が多く、PSCによる活性化によって $\text{ClONO}_2$ は減少していた空気塊が多いことがわかる。第II期では、どの高度でも $\text{ClONO}_2$ は極渦内のほうが極渦外より顕著に高い傾向があり、活性塩素が $\text{ClONO}_2$ に不活性化されたことが示されている。第III期では、極渦境界の $\text{ClONO}_2$ 混合比の値が極渦内より顕著に低くなっており、極渦境界で極渦内より早く $\text{ClONO}_2$ の減少が進行していることがわかる。このような変動の要因としては気温、エアロゾル表面積、日照時間、 $\text{NO}_2$ の混合比、が考えられる。気温との関係を調べたところ、極渦内では、約195 Kを境に低温で $\text{ClONO}_2$ が顕著に減少しており、PSCの発生によって、 $\text{ClONO}_2$ が不均一反応による化学過程の影響を受けたことが明瞭であった。PSCの表面積を代表する指標として780-nm消散係数を取り、相関を調べたが、定量的な関係は見いだせなかった。3月後半になって光化学反応が活発になるにしたがって、 $\text{ClONO}_2$ の減少が顕著に観測された。日照時間と $\text{ClONO}_2$ との対応は明瞭ではなかったが、弱い相関が見られ

た。またClONO<sub>2</sub>とNO<sub>2</sub>の相関を世界で初めて継続観測から明らかにし、極渦内における春(3-4月)のClONO<sub>2</sub>の減少とNO<sub>2</sub>の増加がほぼ等量関係にあること定量的に示した。

#### (4) 化学輸送モデルを用いた極域オゾン破壊に関する研究

まず、ECMWFデータを使ったCCSR/NIES化学輸送モデルと時間閾値解析法により、ILASの観測データが存在した1997年の冬～春にかけての北極渦内外の大気の水平方向の輸送と、それに伴う極渦内オゾン破壊の極渦外オゾン濃度への影響を調べた。時間閾値解析法によって、1997年1月1日～4月30日の期間中、極渦内からその外側への空気塊の4回にわたる大流出イベントがあったことがわかった。同じ年の南極渦では時間解析閾値法によってこのような流出イベントは見つからなかったことから、非常に安定していた1997年の北極渦でさえも、南極に比べると水平方向の極渦内外の空気の交換は大きいことがわかった。そして、化学輸送モデルを用いた極渦内化学ON/OFF実験により、極渦の境界のすぐ外側の55°～65°Nの等価緯度帯では、その影響は、450 Kの高度で20～25%、365-525 Kの下部成層圏の範囲では、15 DU程度の影響があることがわかった。特に、450K付近のILASのオゾンデータが示す2月中旬から3月下旬にかけてのオゾン濃度の低下はこの影響によるものであることが、明らかとなった。

次に、極渦空気の鉛直方向の輸送を調べるため、時間閾値解析法によってその鉛直フラックスを計算した。その結果、1月～4月の期間の下降流速の平均値として約1.6 km/monthの値が得られた。

極渦空気の孤立性は、冬の間の極渦空気の下降と、極渦外の空気との水平方向の混合とによって決定されるが、1997年の北極渦の場合、水平方向の極渦空気の入れ替わりは鉛直方向に比べて一桁小さいことがわかった。また、上述の極渦内鉛直速度だと北極渦が成立している12月から3月または4月にかけての4～5ヶ月の間に、極渦内の空気がすべて入れ替わってしまうことはないことが示唆される。つまり、北極渦は極渦の周りの大気に対してオゾン濃度減少のFlowing Processor(極渦の存在期間中に空気の混合が発生)として完全に働いているわけではないことがわかった。しかしながら、極渦周辺の限られた等価緯度帯では極渦成立中にオゾン濃度低下の影響を起こしており、この部分はFlowing Processorとしての働きをしている。一方、1997年5月上旬の北極渦崩壊時には極渦内のオゾン濃度が低下した空気を周囲にばらまくので、Containment Vessel(極渦がタイトで化学反応の収納容器のようなイメージ)としての特性も持ち合わせている。

#### (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

FTIR分光計との比較から、オゾンについては、ILAS-IIとの相対値差が高度20 km以下で5%以下、22 km以上では、最大20%まで増加した。絶対値差で見ると、おおよそ0.9 ppmvほどILAS-IIの方が、FTIRよりも値が小さいことが分かった。硝酸は、高度24 km以上で逆にILAS-IIの方が、FTIRよりも1.3 ppbvほど(相対値差で20-22%)大きいことが分かった。亜酸化窒素とメタンは、ともにILAS-IIの方が、FTIRよりも小さく、前者で10-15%、後方で10-20%の相対値差であることが分かった。解析に用いることが出来た一致シーン数が少なかったため、統計的には十分な結果が得られていないが、全く異なる測定原理に基づく比較研究例として意味のある結果である。

一方、MIPASとの比較から、オゾンについては北半球において最大でも0.4 ppmvの違い(ILAS-IIの方が大きい)、南半球において最大でも0.6 ppmvの違いに留まり、良好な結果が得られた。一方水蒸気とメタンはともに北半球において、特に高度20 km以上で大きな差(ILAS-IIの方が小さい)が見られた。この問題については、ILAS-IIの高度分布導出アルゴリズムの問題であることは、前から周知のことであり、本推進費課題とは別のアルゴリズム改訂作業により検討を重ねてきた。その改訂により処理されたバージョン(2.1)のデータとの比較も実施し、問題であった水蒸気とメタンの高高度のデータ質が格段に改善され、水蒸気では高度40 kmで6 ppmv程度もILAS-IIが小さかったことが、0.5 ppmvにまで縮小していることを確認した。

### 5. 本研究により得られた成果

#### (1) 科学的意義

サブテーマ1、2、5から得られた精度の高い極域成層圏気体・エアロゾルデータを用いて、サブテーマ3では2003年南極オゾンホール中および1997年北極での物理化学プロセスの定量化研究を、サブテーマ4では、3次元化学輸送モデルを駆使して1997年北極でのオゾン破壊が我々の住む中緯度域に与える影響評価を実施した。

サブテーマ1では、世界で初めて中庸な波長分解能(0.1ミクロン程度)の赤外分光計からの大気吸収スペクトルに含まれる、気体・エアロゾル成分の同時推定手法を確立した。

サブテーマ2(および5)では、主にILAS-IIからの2003年の観測データを、南北両半球高緯度における地上・気球・航空機・他の衛星観測データ等を用いて検証解析を行った。データ処理アルゴリズムを高度化して国際的に高水準な品質とするために不可欠な、同期観測の比較、また観測原

理・手法の妥当性の検証に資する観測・解析を実施した。大気組成については地上FTIR観測の分光系高精度化とともに、ILAS-II観測をアラスカでの同期観測の比較・解析によって定量的に検証した。気温は校正不要で高精度に観測できるGPS掩蔽法について、上部成層圏気温導出法の開発とデータの科学的妥当性を確認しつつ気温擾乱（大気重力波）と惑星波・極渦との関係を明らかにした。エアロゾルは、ILAS-IIリトリーバル高精度化に不可欠な、気球による成層圏エアロゾル・PSCの粒径分布観測を実施するとともに、ライダー観測などとあわせて、ILAS、ILAS-II観測の解析において0.056ミクロン程度の小粒子までが重要であること、などを明らかにした。最終的に、ILAS/ILAS-IIデータは極域成層圏の科学研究に利用可能な質を持つことを包括的な検証解析から明らかにした。

データ質の確立されたILASおよびILAS-IIデータを利用して、サブテーマ3では、2003年南極において、以下の科学成果を得た。まず、定量的にPSCの発生頻度を求めることに成功した。特に、8月上旬の高度20 kmでは80%もの発生頻度をつきとめ、塩素の活性化に寄与していることが裏付けられた。硝酸とエアロゾル消散係数の変動からは、6月と8月で極めて異なる振る舞いが見出された。6月では一時的な脱窒が、8月では10 ppbv程度の大規模な不可逆脱窒が生じていたことが分かった。このように、大規模なオゾンホールを引き起こすに十分な環境が整っていたことと整合する形で、大きなオゾン破壊とその速度が確認できた。特に、9月下旬の高度21 kmではオゾン濃度は、冬の初めの3 ppmvからほぼゼロとなっていた。また、その時期のオゾン破壊速度も、過去に記録された値と同程度の、1日当たり80-90 ppbvという極めて高い数値であることが明らかになった。力学過程については、大気トレーサーであるメタンデータにもとづいて南半球高緯度域の夏から冬にかけて、中間圏から成層圏への下降流の存在が示唆された。1997年の北極については、塩素の活性化度合いを見積もるために重要な、硝酸塩素( $\text{ClONO}_2$ )の複雑な時間変化を捉えることに成功した。特に、同時に測定されている二酸化窒素( $\text{NO}_2$ )との非常に良い逆相関関係が、春先の3-4月に見られたことは、世界で初めてのことである。

最後にサブテーマ4からは、時間閾値解析法、CCSR/NIES化学輸送モデルによる極渦内化学ON/OFF実験、およびILAS観測データの独自の3つの手法を使って1997年北極渦の孤立性と極渦内オゾン破壊のその周りの大気への影響を定量的に明らかにした。時間閾値解析法は、ラグランジュ的視点からの物質輸送の新しい解析法であり、それを極渦内外の空気塊輸送に初めて応用した。

## (2) 地球環境政策への貢献

この研究で得られた成層圏プロセス研究の一部は、環境政策決定者向けの国際共同報告書である世界気象機構(WMO)のオゾン破壊に関する科学的評価報告書(2007年出版)の第4章「極域オゾン：過去と現在」において掲載された。また、世界気候研究計画(WCRP)傘下の成層圏プロセスとその気候における役割研究計画(SPARC)の極成層圏雲評価報告書(2007-2008年頃出版予定)にも本研究の内容の一部が掲載予定である。

## 6. 研究者略歴

課題代表者：中島英彰

1963年生まれ、東北大学理学部卒業、東北大学大学院理学研究科後期博士課程修了、博士(理学)、現在(独)国立環境研究所大気圏環境研究領域主席研究員、東北大学大学院環境科学研究科客員助教授併任

主要参画研究者

### (1) 1) 杉田考史

1969年生まれ、北海道東海大学工学部卒業、名古屋大学大学院理学研究科後期博士課程修了、博士(理学)、現在(独)国立環境研究所大気圏環境研究領域大気物理研究室主任研究員

### 2) 横田達也

1956年生まれ、東京大学工学部卒業、東京大学工学研究科後期博士課程修了、工学博士、現在国立環境研究所地球環境研究センター衛星観測研究室長

### (2) 村山泰啓

1964年生まれ、大阪大学基礎工学部卒業、京都大学大学院工学研究科後期博士課程修了、博士(工学)、郵政省通信総合研究所入所、現在(独)情報通信研究機構第3研究部門電磁波計測研究センター環境情報センシング・ネットワークグループ研究マネージャ

### (3) 1) 林田佐智子

1957年生まれ、京都大学理学部卒業、名古屋大学大学院理学研究科後期博士課程修了、理学博士、現在奈良女子大学理学部教授

2) 中島英彰 (課題代表者に同じ)

(4) 秋吉英治

1961年生まれ、九州大学理学部卒業、博士(理学)、現在(独)国立環境研究所大気圏環境研究領域大気物理研究室主任研究員

(5) Alexandra Griesfeller

1974年生まれ、ドイツ・カールスルーエ大学気象学教室卒業、Ph.D、ドイツ・Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK), Forschungszentrum Karlsruhe (FZK)にてポストドク研究員後、2005年4月から2007年3月までEFフェロー

7. 成果発表状況 (本研究課題に係る論文発表状況。査読のあるものに限る。投稿中は除く。)

(1) サブテーマ1 関連

- 1) T. Tanaka, H. Nakajima, T. Yokota, Y. Sasano, M. Fukabori, T. Aoki, and T. Watanabe : J. Mol. Spectrosc., 228, 213-215, 10.1016/j.jms.2004.07.009 (2004)  
"Absorption line parameter measurements of N2O band near 8 micron"
- 2) S. Oshchepkov, Y. Sasano, T. Yokota, N. Uemura, H. Matsuda, Y. Itou, and H. Nakajima : Appl. Opt., 44, 4775-4784 (2005)  
"Simultaneous stratospheric gas and aerosol retrievals from broadband infrared occultation measurements"
- 3) N. Uemura, S. Kuriki, K. Nobuta, T. Yokota, H. Nakajima, T. Sugita, and Y. Sasano : Appl. Opt., 44, 3, 455-466 (2005)  
"Retrieval of trace gases from aerosol-influenced infrared transmission spectra observed by low-spectral-resolution Fourier-transform spectrometers"
- 4) Y. Sasano, S. Oshchepkov, T. Yokota, and H. Nakajima : J. Geophys. Res., 110, D18212, doi:10.1029/2004JD005709 (2005)  
"Characterization of stratospheric liquid ternary solution from broadband infrared extinction measurements"
- 5) S. Oshchepkov, Y. Sasano, T. Yokota, H. Nakajima, N. Uemura, N. Saitoh, T. Sugita, and H. Matsuda : J. Geophys. Res., 111, D02307, doi:10.1029/2005JD006543 (2006)  
"ILAS data processing for stratospheric gas and aerosol retrievals with aerosol physical modeling: methodology and validation of gas retrievals"
- 6) T. Tanaka, M. Fukabori, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, T. Watanabe, and Y. Sasano : J. Mol. Spectrosc., 239, 1-10, 10.1016/j.jms.2006.05.013 (2006)  
"Spectral line parameters for CO2 bands in the 4.8- to 5.3-um region"

(2) サブテーマ2 関連

- 1) T. Tsuda, K. Hocke, and H. Takahashi: Occultations for Probing Atmosphere and Climate, edited by G. Kirchengast, U. Foelsche and A. K. Steiner, 345-352, Springer, Germany (2004)  
"Utility of occultations for atmospheric wave activity studies: results of GPS/MET data analysis and future plan"
- 2) A. de la Torre, T. Tsuda, K. Hocke, and A. Giraldez: Occultations for Probing Atmosphere and Climate, edited by G. Kirchengast, U. Foelsche and A. K. Steiner, 353-364, Springer, Germany (2004)  
"Stratospheric gravity wave fluctuations and sporadic E at mid-latitudes with focus on possible effects of the Andes"
- 3) M. V. Ratnam, T. Tsuda, C. Jacobi, and Y. Aoyama: Geophys. Res. Lett., 31, doi:10.1029/2004GL019789 (2004)  
"Enhancement of gravity wave activity observed during a major Southern Hemisphere stratospheric warming by CHAMP/GPS measurements"
- 4) T. Tsuda, M. V. Ratnam, P. T. May, M. J. Alexander, R. A. Vincent, and A. MacKinnon: J. Geophys. Res., 109, doi:10.1029/2004JD004946 (2004)  
"Characteristics of Gravity Waves with Short Vertical Wavelengths Observed with Radiosonde and GPS Occultation during DAWEX(Darwin Area Wave Experiment)"
- 5) M. V. Ratnam, T. Tsuda, C. Jacobi, and Y. Aoyama: Geophys. Res. Lett., 31,

doi:10.1029/2004GL019789 (2004)

"Enhancement of gravity wave activity observed during a major Southern Hemisphere stratospheric warming by CHAMP/GPS measurements"

- 6) M. Venkat Ratnam, T. Tsuda, M. Shiotani, and M. Fujiwara: SOLA, Vol. 1, 185-188, doi: 10.2151/sola.2005-048 (2005)

"New Characteristics of the Tropical Tropopause Revealed by CHAMP/GPS Measurements"

- 7) Y. Kasai, T. Koshiro, Y. Murayama, M. Endo, N. B. Jones, F. J. Murcray: Adv. Space. Res., 35, pp.2024-2030 (2005)

"Ground-based measurement of carbon monoxide in the upper stratosphere and mesosphere by FTIR at Poles Flat, Alaska"

- 8) A. Kagawa, Y. Kasai, N. Jones, and Y. Murayama: Atmospheric Chemistry and Physics Discussion, 6, 10299-10339, (2006):

"Characteristics and error estimations of stratospheric ozone and ozone-related species over Poker Flat (65N, 147W), Alaska observed by a ground-based FTIR spectrometer from 2001 to 2003"

- 9) M. Yamamori, A. Kagawa, Y. Kasai, K. Mizutani, Y. Murayama, T. Sugita, H. Irie, H. Nakajima: J. Geophys. Res., Vol. 111, No. D11, D11S08 10.1029/2005JD006438 (2006)

"Validation of ILAS-II version 1.4 O<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, and temperature data through comparison with ozonesonde, ground-based FTS, and lidar measurements in Alaska"

- 10) V. Velazco, S. W. Wood, M. Sinnhuber, I. Kramer, N. B. Jones, Y. Kasai, J. Notholt, T. Warneke, T. Blumenstock, F. Hase, F. J. Murcray and O. Schrems: Atmospheric Chemistry and Physics Discussion, 7, 1-8, (2007)

"Annual variation and global distribution of strato-mesospheric carbon monoxide measured by ground-based Fourier transform infrared spectrometry"

### (3) サブテーマ3 関連

- 1) H. Nakajima, T. Sugita, T. Yokota, and Y. Sasano : Proc. SPIE, 5234, 36-45 (2004)

"Current status and early result of the ILAS-II onboard the ADEOS-II satellite"

- 2) F. Khosrawi, R. Muller, H. Irie, A. Engel, G. C. Toon, B. Sen, S. Aoki, T. Nakazawa, W. A. Traub, K. W. Jucks, D. G. Johnson, H. Oelhaf, G. Wetzell, T. Sugita, H. Kanzawa, T. Yokota, H. Nakajima, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 109, 10.1029/2003JD004325 (2004)

"Validation of CFC-12 measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) with version 6.0 retrieval algorithm"

- 3) F. Khosrawi, R. Muller, M. H. Proffitt, and H. Nakajima : J. Geophys. Res., 109, 10.1029/2003JD004365 (2004)

"Monthly averaged ozone and nitrous oxide from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in the Northern and Southern Hemisphere polar regions"

- 4) H. Irie, K. L. Pagan, A. Tabazadeh, and T. Sugita : Geophys. Res. Lett., 31, 10.1029/2004GL020246 (2004)

"Investigation of polar stratospheric cloud solid particle formation mechanisms using ILAS and AVHRR observations in the Arctic"

- 5) H. Akiyoshi, T. Sugita, H. Kanzawa, and N. Kawamoto : J. Geophys. Res., 109, 10.1029/2003JD003632 (2004)

"Ozone perturbations in the Arctic summer lower stratosphere as a reflection of NO<sub>x</sub> chemistry and planetary scale wave activity"

- 6) N. Kawamoto, H. Kanzawa, and M. Shiotani : J. Geophys. Res., 109, 10.1029/2004JD004650 (2004)

"Time variations of descent in the Antarctic vortex during the early winter of 1997"

- 7) H. Nakajima, T. Sugita, T. Yokota, and Y. Sasano : Proc. of SPIE, 5571, 293-300 10.1117/12.568048 (2004)

"Atmospheric environment monitoring by the ILAS-II onboard the ADEOS-II satellite"

- 8) J. Urban, N. Lautie, E. Le Flochmoen, C. Jimenez, P. Eriksson, J. de La Noe, E. Dupuy,

L. El Amraoui, U. Frisk, F. Jegou, D. Murtagh, M. Olberg, P. Ricaud, C. Camy-Peyret, G. Dufour, S. Payan, N. Huret, M. Pirre, A. D. Robinson, N. R. P. Harris, H. Bremer, A. Kleinbohl, K. Kunzi, H. Kullmann, J. Kuttippurath, M. Ejiri, H. Nakajima, T. Sugita, T. Yokota, Y. Sasano, C. Piccolo, P. Raspollini, and M. Ridolfi : J. Geophys. Res., 110, D09301, doi:10.1029/2004JD005394(2005)

"Odin/SMR limb observations of stratospheric trace gases: Validation of N<sub>2</sub>O"

- 9) N. Saitoh, S. Hayashida, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, and Y. Sasano : SOLA, 2, 72-75, doi:10.2151/sola.2006-019(2006)

"Variation in PSC occurrence observed with ILAS-II over the Antarctic in 2003"

- 10) I. Stajner, K. Wargan, L. -P. Chang, H. Hayashi, S. Pawson, and H. Nakajima : J. Geophys. Res., 111, D11S14, doi:10.1029/2005JD006448(2006)

"Assimilation of ozone profiles from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II: study of Antarctic ozone"

- 11) F. Khosrawi, R. Müller, M. H. Proffitt, and H. Nakajima : J. Geophys. Res., 111, D11S11, doi:10.1029/2005JD006384(2006)

"Northern and Southern hemispheric monthly averages of nitrous oxide and ozone: A "one-year climatology" derived from ILAS/ILAS-II observations"

- 12) Y. Kim, W. Choi, K. - M. Lee, J. H. Park, S. T. Massie, Y. Sasano, H. Nakajima, and T. Yokota : J. Geophys. Res., 111, D11S10, doi:10.1029/2005JD006445(2006)

"PSCs observed by the ILAS-II in the Antarctic Region: Dual compositions and validation of compositions during June-August of 2003"

- 13) N. Saitoh, S. Hayashida, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, M. Hayashi, K. Shiraishi, H. Kanzawa, M. K. Ejiri, H. Irie, T. Tanaka, Y. Terao, R. M. Bevilacqua, C. E. Randall, L. W. Thomason, G. Taha, H. Kobayashi, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D11S05, doi:10.1029/2005JD006315(2006)

"Intercomparison of ILAS-II Version 1.4 aerosol extinction coefficient at 780 nm with SAGE II, SAGE III, and POAM III"

- 14) H. Nakajima, T. Sugita, T. Yokota, T. Ishigaki, Y. Mogi, N. Araki, K. Waragai, N. Kimura, T. Iwazawa, A. Kuze, J. Tani, H. Kawasaki, M. Horikawa, T. Togami, N. Uemura, H. Kobayashi, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D11S01, doi:10.1029/2005JD006334(2006)

"Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) on board the ADEOS-II satellite"

- 15) A. Griesfeller, 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"

- 16) H. Nakajima, T. Sugita, H. Irie, N. Saitoh, H. Kanzawa, H. Oelhaf, G. Wetzels, G. C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier, W. A. Traub, K. Jucks, D. G. Johnson, T. Yokota, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D11S09, doi:10.1029/2005JD006441(2006)

"Measurements of ClONO<sub>2</sub> by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in high-latitude stratosphere: New products using Version 6.1 data processing algorithm"

- 17) G. Wetzels, H. Oelhaf, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, R. Ruhnke, H. Nakajima, Y. Sasano, T. Sugita, and T. Yokota : J. Geophys. Res., 111, D11S06, doi:10.1029/2005JD006287(2006)

"Inter-comparison and validation of ILAS-II Version 1.4 target parameters with MIPAS-B measurements"

- 18) H. Irie, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, H. Oelhaf, G. Wetzels, G. C. Toon, B. Sen, M. L. Santee, Y. Terao, N. Saitoh, M. K. Ejiri, T. Tanaka, Y. Kondo, H. Kanzawa, H. Kobayashi, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D11S03, doi:10.1029/2005JD006115(2006)

"Validation of stratospheric nitric acid concentration profiles observed by ILAS-II"

- 19) T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, H. Kanzawa, H. Gernandt, A. Herber, P. von der Gathen,

G. König-Langlo, K. Sato, V. Dorokhov, V.A. Yushkov, Y. Murayama, M. Yamamori, S. Godin-Beekmann, F. Goutail, H. K. Roscoe, T. Deshler, M. Yela, P. Taalas, E. Kyrö, S. J. Oltmans, B. J. Johnson, M. Allaart, Z. Litynska, A. Klekociuk, S. B. Andersen, G. O. Braathen, H. De Backer, C. E. Randall, L. W. Thomason, H. Irie, M. K. Ejiri, N. Saitoh, T. Tanaka, Y. Terao, H. Kobayashi, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D11S02, doi:10.1029/2005JD006439(2006)

"Ozone profiles in the high-latitude stratosphere and lower mesosphere measured by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS)-II: Comparison with other satellite sensors and ozonesondes"

- 20) S. Tilmes, R. Müller, J.-U. Grooß, R. Spang, T. Sugita, H. Nakajima and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D11S12, doi:10.1029/2005JD006260(2006)

"Chemical ozone loss and related processes in the Antarctic winter 2003 based on ILAS-II observations"

- 21) M. K. Ejiri, Y. Terao, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, G. C. Toon, B. Sen, G. Wetzell, H. Oelhaf, J. Urban, D. Murtagh, H. Irie, N. Saitoh, T. Tanaka, H. Kanzawa, M. Shiotani, S. Aoki, G. Hashida, T. Machida, T. Nakazawa, H. Kobayashi, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D22S90, doi:10.1029/2005JD006449(2006)

"Validation of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) Version 1.4 nitrous oxide and methane profiles"

- 22) H. Nakajima : J. Geophys. Res., 111, D20S90, doi:10.1029/2006JD007412(2006)

"Preface to special section on ILAS-II: The Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II"

- 23) S. Tilmes, R. Mueller, J.-U. Grooss, H. Nakajima, and Y. Sasano : J. Geophys. Res., 111, D24S90, doi:10.1029/2005JD006726(2006)

"Development of tracer relations and chemical ozone loss during the setup phase of the polar vortex"

- 24) D. Y. Wang, M. Hoepfner, G. Mengistu Tsidu, G. P. Stiller, T. von Clarmann, H. Fischer, T. Blumenstock, N. Glatthor, U. Grabowski, F. Hase, S. Kellmann, A. Linden, M. Milz, H. Oelhaf, M. Schneider, T. Steck, G. Wetzell, M. Lopez-Puertas, B. Funke, M. E. Koukouli, H. Nakajima, T. Sugita, H. Irie, J. Urban, D. Murtagh, M. L. Santee, G. Toon, M. R. Gunson, F. W. Irion, C. D. Boone, K. Walker, and P. F. Bernath : Atmos. Chem. Phys., 7, 721-738(2007)

"Validation of nitric acid retrieved by the IMK-IAA processor from MIPAS/ENVISAT measurements"

- 25) S. Hayashida, T. Sugita, N. Ikeda, Y. Toda, and H. Irie : J. Geophys. Res., in press.  
"The temporal evolution of ClONO<sub>2</sub> observed with Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) during Arctic late winter and early spring in 1997"

- 26) 池田奈生, 芦田尚美, 林田佐智子 : 情報処理学会論文誌:数理モデル化と応用, 印刷中  
「Support Vector Machine を用いた極成層圏雲表面積の推定」

#### (4) サブテーマ 4 関連

- 1) M. Yoshiki, N. Kizu, and K. Sato: J. Geophys. Res., 109, D23104, doi:10.1029/2004JD004870 (2004)

"Energy enhancements of gravity waves in the Antarctic lower stratosphere associated with variations in the polar vortex and tropospheric disturbances"

- 2) J. Kurokawa, H. Akiyoshi, T. Nagashima, H. Nakane, H. Masunaga, T. Nakajima, M. Takahashi: J. Geophys. Res., 110, D21305, doi:10.1029/2005JD005798 (2005)

"Effects of atmospheric sphericity on the stratospheric chemistry and dynamics over Antarctica"

- 3) H. Akiyoshi, S. Sugata, M. Yoshiki, and T. Sugita: J. Geophys. Res., 111, D22311, doi:10.1029/2005JD006540 (2006)

"Ozone decrease outside Arctic polar vortex due to polar vortex processing in 1997"

#### (5) サブテーマ 5 関連

- 1) A. Griesfeller, 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"