

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

(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

大気圏環境研究領域 大気物理研究室

杉田考史

地球環境研究センター 衛星観測研究室

横田達也

<研究協力者> 独・国立環境研究所

笹野泰弘

独・国立環境研究所

Sergey Oshchepkov

独・国立環境研究所

田中智章

平成16～18年度合計予算額

41,800千円

(うち、平成18年度予算額

13,800千円)

[要旨] ILAS/ILAS-IIデータを利用したオゾン層科学の定量的解析研究を行なう上で、データの正しい誤差評価を含めたより確からしいデータの提供は不可欠である。このため本サブテーマでは観測スペクトルデータが含有する情報を最大限引き出すべく調査研究を実施した。平成16年度では、ILASデータを用いて主に気体成分とエアロゾル成分を同時に推定する手法の開発を実施し、それによって得られる気体濃度の高度分布が十分に科学解析に資する情報を持っていることを示した。平成17年度では、更にこの同時推定スキームの改善の可能性、および導出されたデータの質の評価・妥当性についてより詳細な検討を実施した。平成18年度では、引き続きILAS-IIの冬期間の全データに対して高度分布導出(リトリーバル)処理を行い、より統計的な観点から、新手法の有効性を評価した。赤外波長域における衛星搭載ブロードバンド分光観測から、世界で初めて、気体とエアロゾル濃度等の情報を同時に引き出すことに成功したことは、特筆に値する。

[キーワード] ILAS、ILAS-II、リトリーバル、オゾン、エアロゾル

1. はじめに

ILAS/ILAS-IIのようなブロードバンド分光計(波長分解能が0.1ミクロン程度)からの大気吸収スペクトルを利用する上では、ある根本的な問題がある。それは、測定された赤外域(6から12ミクロン)の吸収スペクトルには、様々な気体による吸収と、同時に存在するエアロゾル(局所的には極成層圏雲、これをPolar Stratospheric Clouds (PSCs)と呼ぶ)による吸収が含まれるために、それらをどのように精度良く切り分けることができるのか、ということである。従来、この問題に対して、気体による吸収の寄与が相対的に他の波長帯に比べて小さい、4つの波長帯における消散係数を波長方向に直線内挿・外挿することで、簡易的に気体・エアロゾル吸収を切り分けてきた。

このような背景のもと、平成13年度から15年度にかけて実施された前A-10課題において、気体・エアロゾル成分の同時推定手法の開発を実施してきた。その課題では、バックグラウンドとして

重畳するエアロゾルの吸収スペクトル（ベース曲線）は、波長に対して滑らかな構造を持つとする制約条件を与えて、気体とエアロゾルの吸収成分の切り分けを行うという手法（これをスムーズネス制約法とする）を開発してきた。一方、この課題では、更なる発展として、エアロゾル成分の推定のために理論的な物理モデル（室内実験によるPSC吸収スペクトルの結果とミー散乱理論に基づく）を構築し、気体成分と同時にエアロゾルの濃度・組成情報も導出可能な新手法を開発した。特に、PSCが発生している時期においては、一部（メタンや水蒸気）の気体濃度分布の正確さが、気体・エアロゾル分離が不十分であったために悪くなっていたが、これがどの程度改善されたのかを定量的に評価した。

その他の課題として、定常運用処理から得られる、いわゆる標準プロダクトとは別に、一部の気体や気温・気圧高度分布の更なる高度化に寄与するための研究プロダクトの導出実現可能性について調査研究を行った。詳細は2章以降で述べる。

2. 研究目的

環境省が開発したオゾン層観測用衛星搭載センサであるILASおよびILAS-IIの大気衛星観測データ（透過率スペクトル）から、実際の大气中濃度分布を導出（リトリーブ）するためのアルゴリズムの開発・改良を通じて、大気科学の研究に有効利用され得るレベルの質の高いデータを生成することが目的である。そのための具体的目標は以下の通りである。これまでに1996年の南極および1997年の北極冬期でのILAS観測結果に対して培ってきた、気体とエアロゾル組成毎の粒径分布情報とを同時に精度良くリトリーブする手法を完了させ、実際に大気科学研究に資する情報とすることが第一の目標である。2003年南極を観測したILAS-IIのデータに対しても、その新たな気体・エアロゾル同時推定手法によって、リトリーブを試み、更なる手法の高度化を実施し、最終的にそのデータ質を詳細に評価する。

次にこれまでにデータ質の検証作業などから明らかにされてきた、最新のアルゴリズム版（バージョン）によってもまだデータ質の劣るいくつかの点について、様々な角度からこれらを克服するための試行錯誤的調査を行なう。特にメタン濃度が、冬季間において正のバイアスを持つ問題や、各気体濃度に対して評価されている誤差値が現状では謙虚すぎるために、不本意に大きな誤差棒となっていること、さらに気温・気圧データの高高度（上部成層圏）での検証データとの大きな乖離について、それらの要因を特定する。

3. 研究方法

基本的考え方として、衛星などによる大気観測スペクトルデータからの気体等の濃度分布導出は逆推定に基づいている（つまり、ある気体濃度プロファイルを仮定した時、それを元に計算で求めたスペクトルが最も良く観測スペクトルを再現する時に、それが答えだろうという考え）。従って如何にして精度の高い、かつ計算資源コストの安いリトリーブアルゴリズムを構築するのかが鍵となる。そのために仮定した気体濃度プロファイルからスペクトルを計算するフォワードモデル（各気体の吸収線データや測器の装置関数など多くの情報を用いて計算）における不確定要素をどのように特定するかが非常に重要である。気体濃度の高度分布は、フォワードモデル計算において、固定値として気温・気圧を与え（正確な気象データを利用）、さらに初期値として適当な気体濃度プロファイル（気候値と呼ばれる過去の観測結果を集約したものを用いること

が多い)を仮定することによって、求める気体濃度を未知パラメータとして導出することが可能である。

我々は、この課題において、以下4つの調査研究を実施した。

1. フォワードモデルにおいて、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。そして、得られたその結果の評価とリトリーバルアルゴリズムの高度化を繰り返し実施し、最終的により尤もらしい結果が期待されるアルゴリズムにより、数多くの実際のデータ処理を行った。そのことにより、統計的により有意な立場で、定量的なデータ質評価を行った。

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。

(1) 気体・エアロゾル同時推定法の開発とそのデータ質評価

研究の背景として、そもそも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粒子(全球的に偏在する成層圏エアロゾルやごく限られた期間や場所で存在する極成層圏雲(PSC))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スペクトル素子)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(図1を参照)。なお、透過率の変化とそれに対応する濃度の変化の比は、各気体、各波長帯により異なるため、必ずしも逸脱度の大きさが気体濃度の推定誤差には結びつかないことには留意されたい。例えば、PSCの一つである硝酸三水和物(NAT)のスペクトルは7ミクロン付近に特徴的な強い吸収構造を持つために、線形補間で正確なベース曲線を再現することが不可能である。従って、実際に観測大気中にNAT粒子が存在する場合には、いくつかの気体濃度の導出が不正確となる。

このような不利点を克服すべく、前A-10推進費課題(平成13-15年度)において、気体成分とともにベース曲線を形成するエアロゾル成分の同時推定手法の開発を実施してきた。その課題では、バックグラウンドとして重畳するベース曲線は、波長に対して滑らかな構造を持つとする制約条件を与えて、気体とエアロゾルの吸収成分の切り分けを行うという手法を開発してきた(これをスムーズネス制約法とする)。本課題では更なる情報の抽出と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のベース曲線を定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

と思われる粒径ビンを設定し、そのビン毎の吸収スペクトルを計算した（図2を参照）。スペク

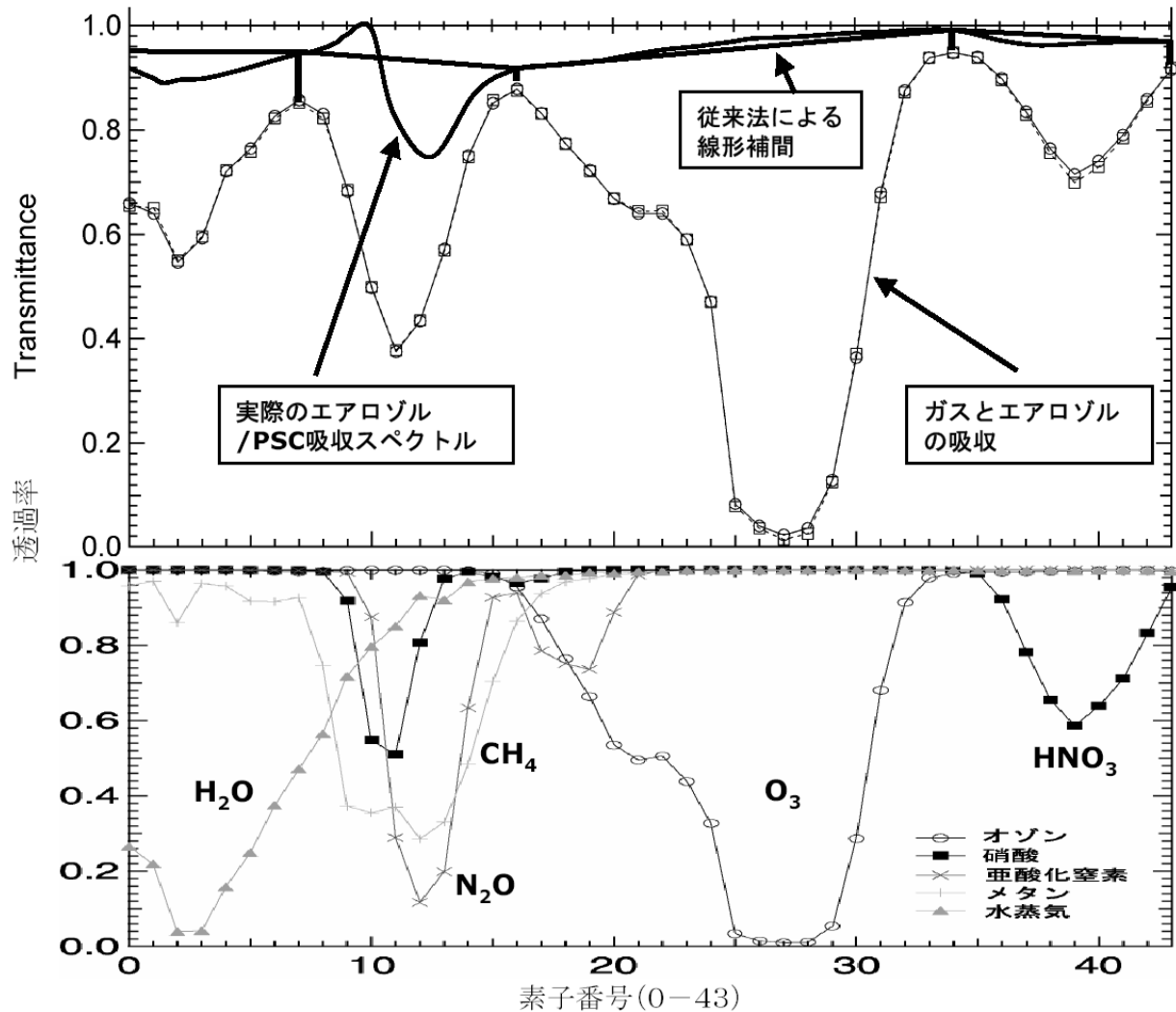


図1 (上のパネル) 気体・エアロゾル成分同時推定の必要性を示した概念図。従来法では、気体の吸収が比較的小さな4つの素子において気体吸収分を予め決め、他の波長領域の気体吸収分を線形補間で求めていた。同時推定法では、実際のエアロゾル吸収スペクトルに相当するベース曲線を気体吸収分とともに推定する。従ってより正確な気体濃度の導出が可能となる。(下のパネル) 各気体成分の吸収位置を示したもの。実際のエアロゾルスペクトルが上記である場合、従来法では、線形補間からのずれが大きくなると10から13素子に吸収を持つ亜酸化窒素やメタンの濃度が誤って推定されることを意味する。

トルは、6つの組成毎に6つの粒径ビンを仮定したため、全部で36となる。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と気体濃度が同時に導出される。スムーズネス制約法もエアロゾル物理モデルに基づく方法も、これまではILASのデータに対して試験的に適用してきた。以下、エアロゾル物理モデルを利用した気体・エアロゾルの同時推定法によるリトリバルアルゴリズムをバージョン7と呼ぶ。

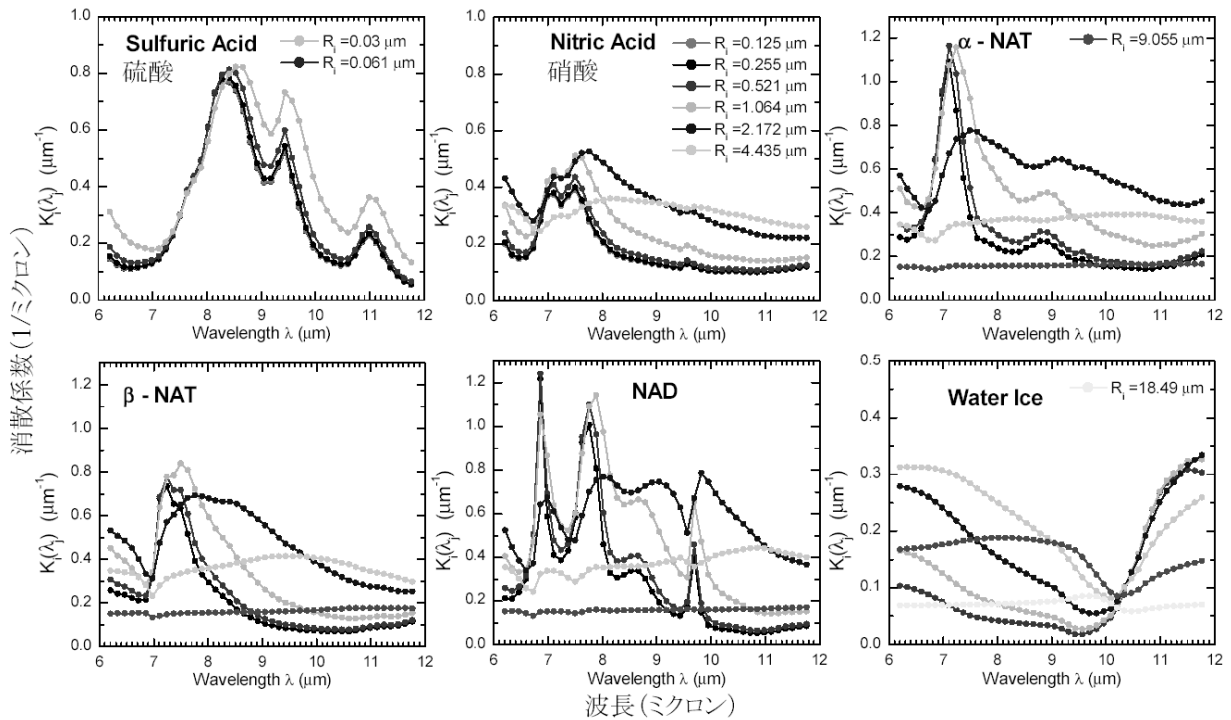


図2 6つの組成毎に6つの粒径分布を仮定した時に計算されるエアロゾル吸収スペクトル（単位は1マイクロン当りの消散係数）。成層圏中に存在するエアロゾル粒子の組成として考えられている硫酸、硝酸、硝酸三水和物（NAT、但し結晶構造の違いから α と β が存在）、硝酸二水和物（NAD）、そして氷について、それらの複素屈折率データをもとに計算した。

上述のやり方で導出されたバージョン7の気体濃度プロファイルのデータ質・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、バージョン7による結果を従来法（線形補間法）のバージョン6と各気体毎、高度毎に比較した。前述のように、特にPSCが発生しているようなシーンにおいて、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。従って、PSCの指標として、別途可視域の分光器から測定されている、780 nmの消散係数を用いた。PSCが発生しているケースとバックグラウンドのケースに分けて、2つのバージョン間のリトリバル結果の差を単純に次式で求めた。

$$AD(h, \text{spec}) = V7(h, \text{spec}) - V6(h, \text{spec})$$

ここで、ADは高度h毎、化学種spec毎の混合比の絶対値差（ppmvまたはppbv）、V7(h)およびV6(h)は高度h毎、化学種spec毎のV7およびV6での混合比（ppmvまたはppbv）である。

(2) 冬期メタン濃度の正バイアスの低減の調査

これまでにILASの赤外スペクトルデータから導出されたメタンデータは両半球ともに、冬季間において正のバイアス（30%程度）が高度25 km付近を中心に発生することが分かっている。しかし、この現象はILAS-IIの赤外スペクトルから導出されたメタンデータにも認められ、原因の特定が急務の課題となっている。この問題を解決すべく、まず初めに、ILAS-IIで追加された中間赤外領域（3－6マイクロン）の分光器からのデータを利用したリトリバルを行い、試験的に両半球

の四季（1、4、7、10月）の結果を確認した。しかしながら、ある程度は3.3ミクロン帯のメタンを使うことで、正バイアスが低減したが、結論としてはまだ不十分であることが分った。

そこで次の段階として、最新のHITRAN分子分光データ（Rothman et al., 2004）を用いて新たに吸収係数の計算をやり直し、メタンデータに対する影響を調べた。実際にメタンの分子分光データに大きな変更は無いが、メタンに重畳する硝酸の線強度（line strength）がfactor 0.879と変更されているために、同時に存在する硝酸濃度の大小に依存してメタンデータが変わり得ることが推測される。従って、冬季南極で硝酸が脱窒（硝酸を含むPSCの重力落下による除去のこと。そのため脱硝とも言う）により殆ど存在していないシーンと通常のシーンについてメタン濃度がどの程度変化するのかを確認した。

（3）気体濃度プロファイルの誤差評価

研究背景として、従来は気体濃度プロファイルの誤差評価として、計算と観測透過率のスペクトル残差の情報に基づくエラー値を利用してきた。しかしながら、この評価法では、特にオゾン等の吸収の大きな物質以外の誤差値が本意に増大して（謙虚に）評価されることが分かっている。その理由としては、スペクトル残差の統計解析の結果、全ての測定シーンにある程度共通の系統的な残差成分が存在することが分かり、それらは、必ずしもスペクトルフィッティングによって排除することが出来ないからと考えられる。

このため、今年度では、ILAS/ILAS-IIの誤差評価の高度化に関して、実際のリトリバル結果から測定器の繰り返し精度に匹敵すべき物理量を推定する手法と、系統的なスペクトル残差を予め計算し実際のスペクトルから除去する手法の2つを開発し、これらを実データに適応し、従来の誤差評価結果と比較した。

一つ目に開発した手法（手法1）は、実際に導出された混合比データから繰り返し精度を求めるやり方である。このため、まず、相対標準偏差（標準偏差を平均値で割った値）を連続した100シーンのビン（およそ7日間）において各高度毎、半球毎に計算した。次にその連続ビンを50シーンずらし、最後の連続ビンまで繰り返し計算した。各高度、半球毎の相対標準偏差の最小値が繰り返し精度として参照され、また、それは測定精度の上限値としても考えられる。なぜなら、どの連続ビンにおいても、実大気の変動を完全に排除は出来ないからである。この手法の不利点は個々のシーンのスペクトル残差の状況を反映していないことにある。

2つ目の手法（手法2）は、従来からの残差スペクトルに基づいてはいるが、どのシーンにもある程度共通して発生している系統的な残差成分を予め計算で求めておき、各シーンの観測スペクトルからその系統成分を差し引き、誤差評価する方法である。

（4）可視領域から気温・気圧データのリトリバル高度化

研究背景として、ILAS/ILAS-IIの可視分光計によって観測される酸素Aバンドの吸収データからの気温・気圧の高度分布導出に関して、従来からそれらリトリバル値と検証データとの乖離が問題になっている。気温・気圧は、酸素濃度が成層圏から下部熱圏（高度10-70 km）にかけて一定であるという仮定の下、フォワードモデル計算に必要な気温・気圧を逆に未知パラメータとして導出することが可能である。ILAS-IIではILASの分光器よりも、波長分解能が0.15 nmから0.06 nmへ向上し、かつシグナル対ノイズ比が1500程度から6000程度へと格段に向上している。しかしな

がら、ILAS-II観測点における気象データ（英国気象局提供のデータをここでは利用）との比較を行なった結果、どの季節も同様に、高度40 km以下において、平均的にゼロから10K程度ILAS-IIの気温が低くなっていることが分かった。また、より高高度では逆に最大で高度50 kmにおいて、30-40 K程度ILAS-IIの気温が高い。気圧については高度40 km付近までは、ILAS-IIが最大で10%位低い、それ以上では、高度とともにILAS-IIの気圧がより小さくなり、高度50 kmでは最大で-50%に達する。

このような結果を踏まえて、今年度では分光学的知見から以下の調査を行なった。可視分光計が測定する波長780 nm付近の酸素Aバンドは、波長の短い方からP枝（ブランチ）とR枝により構成されている。各々の枝には、300本程度の吸収線が存在している。これらの分子分光パラメータは室内実験により精度良く決められており、最新の分子分光データベースを利用した。リトリバルに利用する酸素Aバンドの吸収波長領域の変化がどの程度気温・気圧の高度分布導出に影響し得るのかを調べた。R枝の領域のみ、P枝の領域のみ、そしてその両方を使った場合の3ケースについて感度解析的にリトリバルを実施した。

4. 結果・考察

(1) 気体・エアロゾル同時推定法の開発とそのデータ質評価

初めに、バージョン7同時推定法により計算した透過率スペクトルと観測のスペクトルとの残差の状況を図3に示す。同じ図に従来法での残差の状況も示す。明らかに新手法の方が残差が図に示した高度14, 21, 23kmのどの高度でも小さく、結果として導出された気体濃度プロファイル（後述する）も科学的見地から尤もらしいことが分かった。この新手法をPSCが観測大気中に存在

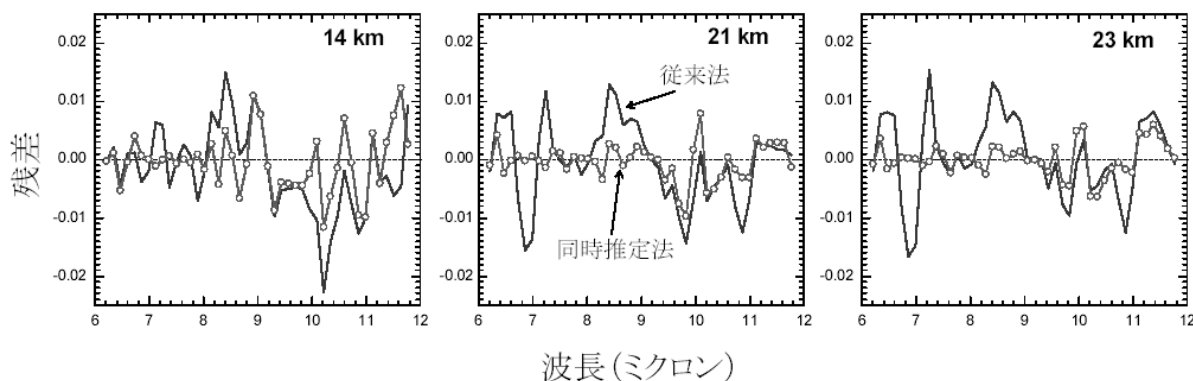


図3 従来法と同時推定法での計算と観測の透過率スペクトルの残差の状況。高度14 km, 21 km, 23 kmについて示す。どの高度においても、同時推定法による残差が格段に小さくなっていることが分かる。また、従来法で7ミクロン付近に見られていた大きな残差は、NATが存在していたことで、線形補間では再現出来てなかったことを意味している。

していたために（PSCは一般に、高度15-25 kmの範囲で発生する）、従来法では、正確に解けなかった測定シーンに対して適応し、その有効性を判断した。その結果、これまでメタンや水蒸気、亜酸化窒素などの気体濃度のプロファイルが異常となっていたシーンの多くが適当な濃度プロファイルで解かれることが分かった。

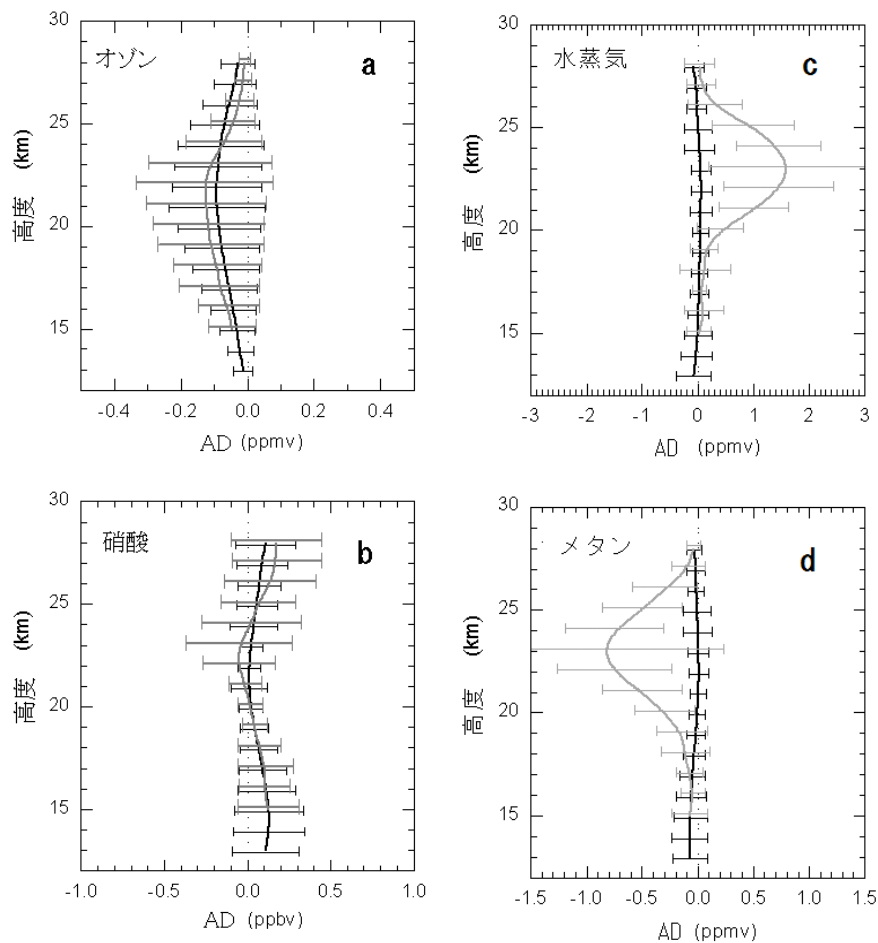


図4 エアロゾル物理モデルに基づく気体・エアロゾル同時推定法による結果（バージョン7）と従来の線形補間法に基づく結果（バージョン6）の混合比差。黒線はILASの全シーン（約6000）についての差の平均値とその1シグマ標準偏差をバーで示す。グレーのプロファイルは、780 nmでの消散係数が（a）オゾン、（b）硝酸の場合、 0.0005 km^{-1} よりも大きい場合、（c）水蒸気、（d）メタンでは、それが 0.001 km^{-1} よりも大きい場合のみを取り出したものである。

次に、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、PSCが存在している以外のシーンでも従来法と同等の気体プロファイルが導出され得るかどうかを判断した。そのILASバージョン7でリトリバルした全10種の化学種についての結果を図4 aから図4 jに示す。同じ図には、従来法（これをバージョン6とする）による結果も示す。

図中の黒線のプロファイルは全6000シーンについて結果である。はじめに、オゾン、硝酸、水蒸気、メタンについての結果を考察する。オゾンと硝酸は特徴的なエアロゾル/PSCによる吸収スペクトルの影響を受けにくいいため、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わかる。図4 aと4 bのグレーのプロファイルは、消散係数が 0.0005 km^{-1} よりも大きい場合を取り出して見たものである。おおよそ、その値よりも小さい時は、バックグラウンド状態（硫酸エアロゾル）と考えられる。なお、黒もグレーもどちらのプロファイルでも、誤差棒は1シグマ標準偏差を示す。一方、図4 cと4 dのグレーのプロファイルは、消散係数が 0.001 km^{-1} よりも大きい明らかにPSCが発生していると考えられる場合を取り出して見たものである。この場合、水蒸気ではバージョン6に負のバイアスが、メタンには正のバイアスが存在していたために、それらを解消させ得るバージョン7では、水蒸気で値が大きく、メタンでは、値が小さく変化し

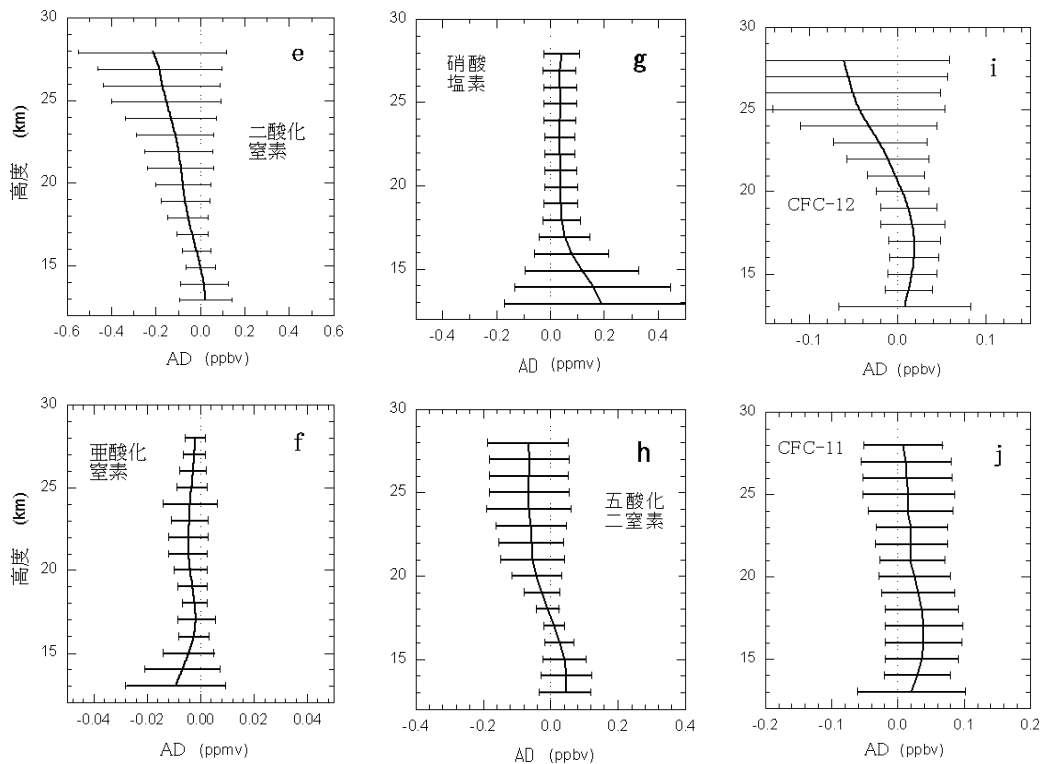


図4 (続き) (e) 二酸化窒素、(f) 亜酸化窒素、(g) 硝酸塩素、(h) 五酸化二窒素、(i) CFC-12、(j) CFC-11

たことがよく分る。また、このように特徴的な気体濃度への影響を生み出すベース曲線は、主に硝酸三水和物 (NAT) が存在する場合と推測できる (図2を参照)。

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。これら全て、オゾン、硝酸と同様に、水蒸気やメタンほど消散係数の違いで大きな違いはない。全体的な傾向として、二酸化窒素、亜酸化窒素、CFC-12では、バージョン7の方が小さくなったことが分かる。ここで、バージョン6のデータ質について大雑把にまとめると、気球などの検証データに比べて、亜酸化窒素はやや大きめ、硝酸塩素はやや小さめ、CFC-12は25 km以上で大きめであった。バージョン7では、これらが一度に解消される方向にあることが分かる。

残される課題としては、高度15 km以下において、新手法 (バージョン7) は、従来法 (バージョン6) よりも例えば亜酸化窒素濃度が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。

最後に、ILAS-IIデータに対しても、ILASで確立したものと同一のアルゴリズムで先行的にデータ処理を実施した。ILAS-IIは初めに述べたとおり、南極の冬期間の観測に成功したため、数多くのPSCの発生していたシーンを含んでいる。典型例として、2003年7月のメタンと亜酸化窒素の相関関係を、従来法と新手法で比較した結果を図5に示す。図5 aは、従来法である線形補間法によって、気体・エアロゾルの分離を行ってリトリーバルした結果である。一方、図5 bは、新手法である同時推定法による結果である。図5 aで、メタンの値が大きく正のバイアス (亜酸化窒素濃度に依存して、1.0から1.5 ppmv以上になっているケース) を受けているケースは、PSCが発生していた時に一致する。このように、従来法において、メタンはPSC発生による影響を最も受けやすい化学種の一つである。さらに、もう一つ特徴的なことは、以下の3.(2)でも述べるが、参照値

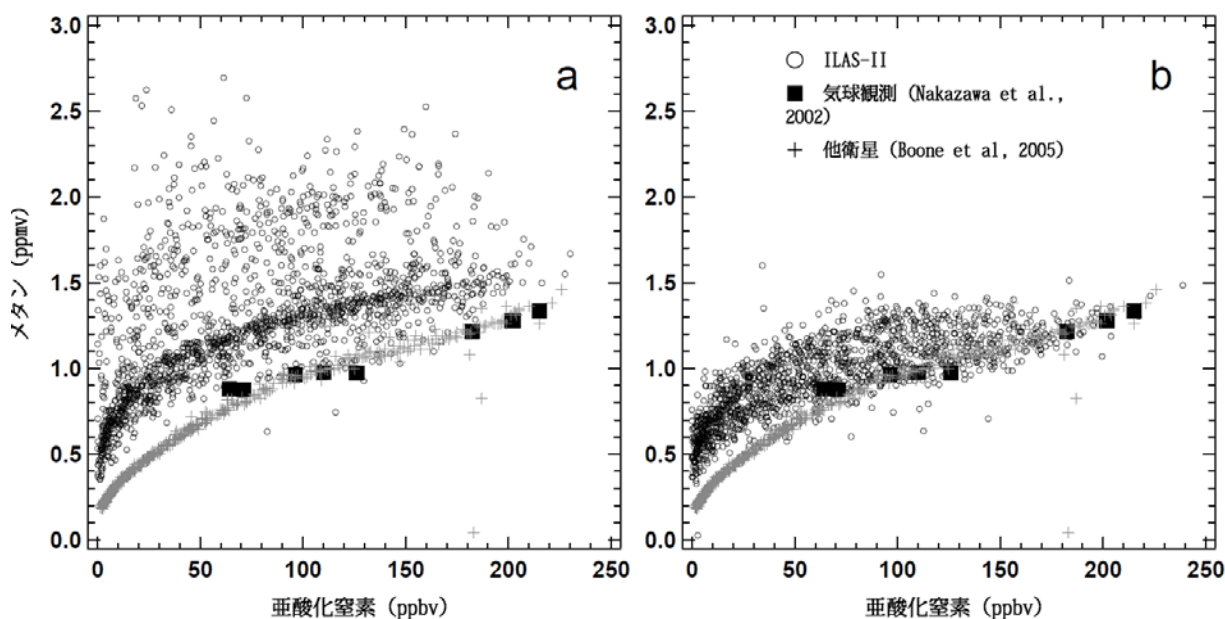


図5 ILAS-II観測期間中の2003年7月の南極におけるメタンと亜酸化窒素の相関関係。(a) 従来法（線形補間法）によるリトリーバル、(b) 新手法（同時推定法）によるリトリーバル。本来あるべき相関関係として、1998年1月の昭和基地上空における気球観測の結果(Nakazawa et al., 2002)と、最近の衛星観測ACE-FTSバージョン1の結果(Boone et al., 2005)を参考値として示してある。

となる気球観測や他衛星結果に比べて、ベースとなる相関関係も30%程度メタンに正バイアスが見られる。

一方、新手法による図5bでは、まず、PSCによるバイアスが殆ど取り除かれて、コンパクトな相関関係になっていることが分かる。さらに、その効果とは別に、3.(2)で述べる、分子分光データの改訂の結果、全体的にもメタンの正バイアスが低減されているのが分かる。しかしながら、今後の課題として、やはりまだ、参照値に比べてメタンが平均的に15-20%程度高めになっており、かつ、そのバラツキ度合いも大きい (+/-20%程度) ことが挙げられる。

(2) 冬期メタン濃度の正バイアスの低減の調査

図6は一般的な南極4月の硝酸とメタン混合比の高度分布を示す。HITRANと呼ばれる分子分光データベースの最新版、HITRAN 2004では、従来のHITRAN 2000から硝酸の吸収線データに変更がなされているが、特に硝酸のリトリーバル結果に大きな変化は見られていない。一方で、メタンは従来に比べて値が全体的に小さくなっていることが分る。これは、これまでに問題となっていた、メタンの正バイアスを解消する方向に効く。絶対値としておおよそ0.1 ppmvなので、バイアス全てを解消するには至らないが、一定の進歩が、より精度の高い吸収線データを利用することで可能になることが分った。メタンの吸収の一部は7.6ミクロン付近で硝酸と重なっていることから、硝酸の吸収線データの変更が間接的にメタンへ影響したものと考えられる。

一方、図7は脱窒が生じた後の硝酸が下部成層圏で減った場合の高度分布である。この図から分ることは、硝酸が十分に無ければ、それを通じてメタンに影響を与えることは無い、ということである。これは、問題となっていた正のバイアスが季節変化する（夏場はバイアスが少なく、冬場にバイアスが大きい）ことを考えると、硝酸がより小さくなる夏場や局所的に脱窒が生じた

場面では、メタンへの影響が少なく、硝酸がより大きくなる脱窒の無い冬場では、メタンへの影響が大きく（バイアスを解消させる方向）なることと定性的に辻褃が合う。先の3.(1)でも課題として述べたが、今後もメタンの正バイアスの除去に向けて、特に分子分光データの進展状況などの情報収集が継続して必要であろう。

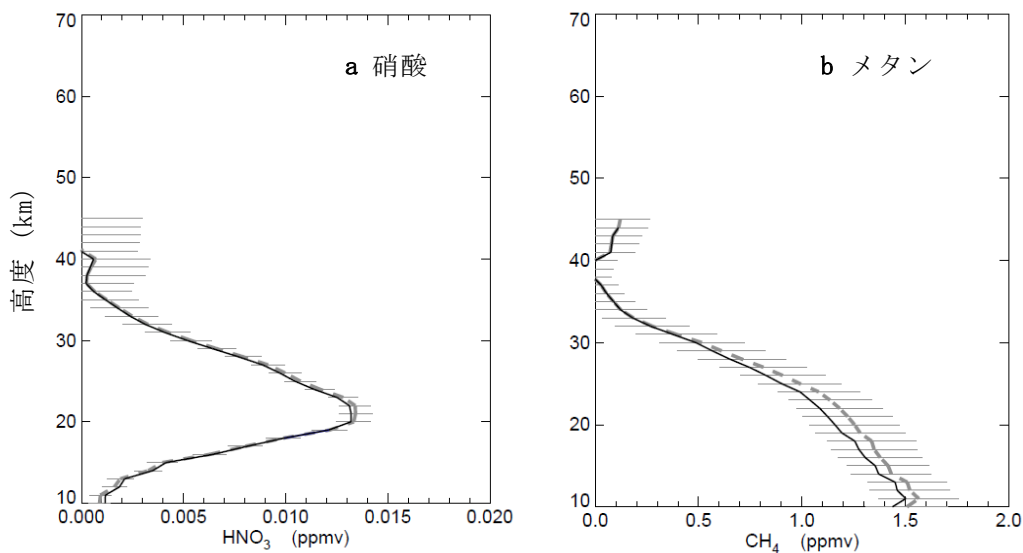


図6 ILAS-IIによる(a)硝酸と(b)メタンの混合比プロファイル。典型例として、南極の4月。太いグレーは従来のHITRAN 2000データベースを基にしたリトリバル結果。黒い細線は、新しくHITRAN 2004データベースを基にした結果。エラーバーは従来についてのみ示してある。

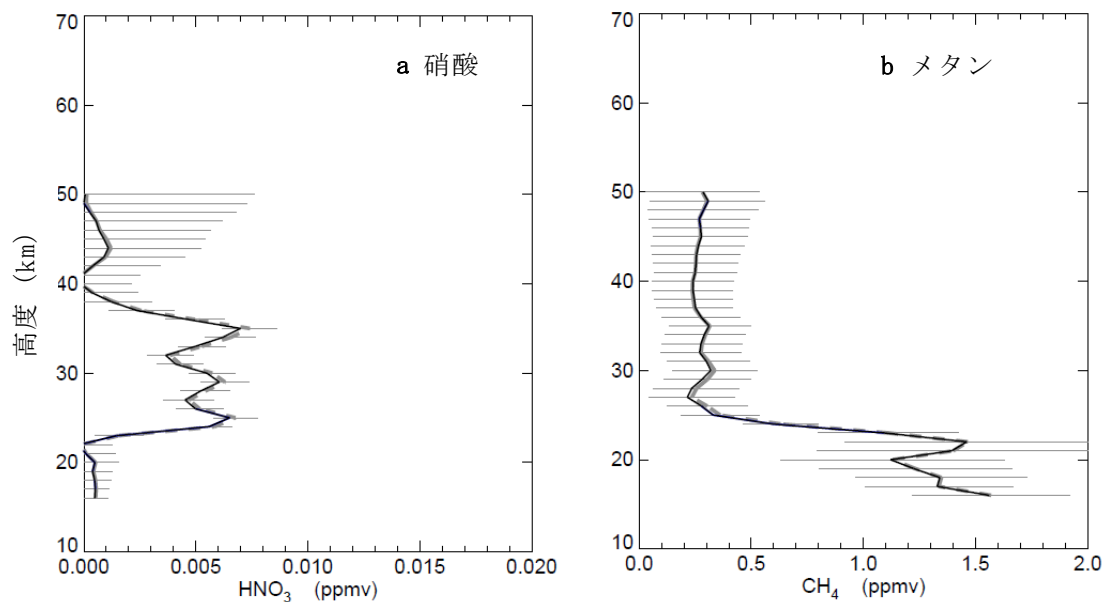


図7 図6に同じだが、別の典型例として、南極の8月。グレーと黒の線はどちらの化学種でも殆ど重なっている。

(3) 気体濃度プロファイルの誤差評価

ILAS-IIの観測データに対して、手法1により評価したエラー値を従来のエラー値と比べた(図8)。その結果、オゾンのように非常に強い吸収を持つ化学種では全高度に渡って、また硝酸についても高度25 km以下において、特段の違いは見られなかったが、その他の成分については、2倍からより高高度では数倍以上も従来のエラー値が大きいことが認められた(図8のメタンや亜酸化窒素)。見直されたエラー値は科学的解析に良く用いられる下部成層圏(高度25 km以下)において、どの成分も概ね10%程度前後の大きさであり、そのレベルの測定精度を持つことが分かった。

一方、手法2については、ILAS-IIの観測スペクトルデータの一部にまだ未説明の問題(機器の一部不具合に起因)が残っているために、ILASの観測データに対して手法2によりエラー値を評価した。これは「研究方法」で述べたように手法1とは別のアプローチによるものであるが、概ね手法1で評価した値に近いことが分かっている。しかしながら、オゾン、硝酸、エアロゾルを除く殆どの化学種場合、高度30 km以上においては、手法2により評価したエラー値が2倍からそれ以上大きいことも分かった。従って、高高度における手法2によるエラー値はより謙虚な(安全側)ものであるが、個々のシーンのスペクトル残差の情報に基づいているという意味で手法1に比べて優位性がある。この手法2に基づき、ILAS-IIデータの誤差評価を実際に行った。

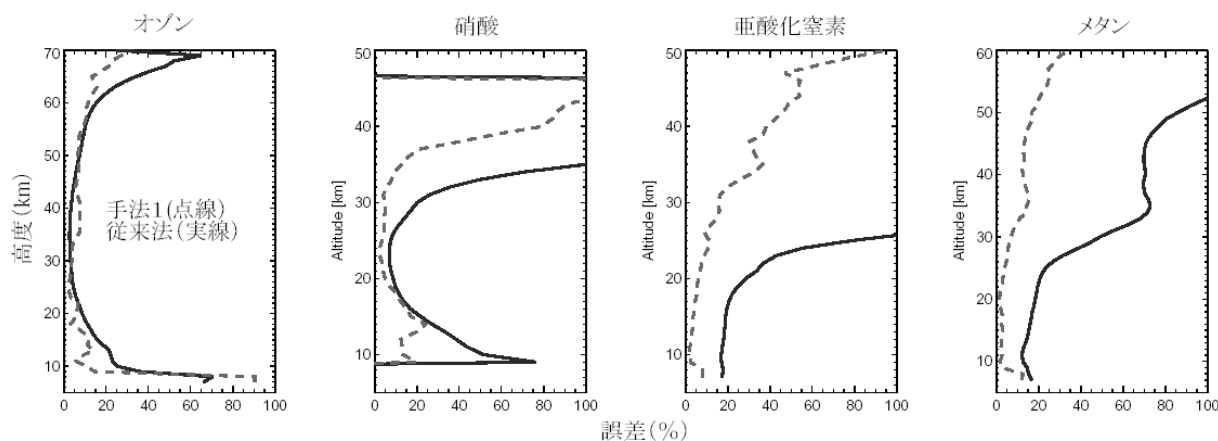


図8 従来法によるスペクトル残差に基づいて評価された誤差(実線)と新手法1により大気変動の最小期間における実際の各成分(オゾン、硝酸、亜酸化窒素、メタン)の混合比のパラッキ度合いから評価された誤差(点線)。ILAS-IIによる南半球の結果。

(4) 可視領域から気温・気圧データのリトリーバル高度化

酸素分子AバンドのP枝、R枝、その両方の波長範囲をリトリーバルに利用して、気温・気圧の高度分布を導出した。その結果、P枝とR枝による気温の違いは高度40 km以下では、数Kから5 K程度の違いとなり利用する波長領域に対して鈍感であることが分かったが、それ以上では差が拡大し、高度50 kmにおいて最大で20 K程度の違いがあることが分かった。一方、気圧も気温と同様に高度40 km以下では数%程度の違いであるが、高度50 kmでは最大で14%に達することが分かった。このような高高度での大きな比較検証データとの差異は、リトリーバルに利用する波長領域の違いでは説明することが出来ない可能性が高いことが分かった。今後の課題としては、透過

率スペクトルを算出する過程（フォワードモデル）において、何らかの見落とし点（いわゆるバグ）がないかどうか、米国の同様に酸素Aバンドを測定するセンサチームと共同で、フォワードモデル同士の比較などを進める必要がある。具体的には、例えば、透過率算出の際に外挿により求める太陽光観測スペクトル（参照透過率）と実際の大气圏透過部での観測スペクトルのシグナル自身の求め方について検討などを含む。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

本課題により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。この新手法では、実際の大气中で存在し得るいくつかのエアロゾル/PSCタイプの吸収スペクトルの室内実験データに基づく、「エアロゾル物理モデル」を構築し、各タイプ（組成）毎の粒径分布の情報を得ることに成功した。本課題では、まだ組成・粒径情報の科学的評価には至っていないが、気体濃度の高度分布の正確さについては、科学的評価を行うことが出来た。この新手法に基づく、ILASデータは、実際の定常運用処理に組み込まれ、バージョン7として約6000の観測シーンに適用された。また、ILAS-IIについても南極の冬季間に限り、約3000の観測シーンに適用された。これらのデータは、今後、広く一般の成層圏科学研究者に対して公開される予定である。これらのデータは、成層圏オゾン層の化学・力学過程の定量化研究に十分に資するデータ質であり、今後のこの分野の研究の発展に貢献できると考えられる。

(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。そして、今後、そのプロセス研究の結果が、環境政策決定者向けの国際共同報告書である、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）へインプットされ得ると期待される。

6. 引用文献

- 1) Rothman, L.S., et al., The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 96, 139-204, 2005.
- 2) Nakazawa, T., et al., Variations of stratospheric trace gases measured using a balloon-borne cryogenic sampler, *Adv. Space Res.*, 30, 1349-1357, 2002.
- 3) Boone, C.D., et al., Retrievals for the atmospheric chemistry experiment Fourier-transform spectrometer, *Appl. Opt.*, 44, 7218-7231, 2005.

7. 国際共同研究等の状況

米国NASAのEarth Science EnterpriseのスポンサーによるSolar Occultation Satellite Science Team (SOSST、太陽掩蔽法に基づく衛星サイエンスチーム)の参画メンバーとして、データリトロー

バルに関する最新の研究情報の共有化に役立っている。参加国は米国をはじめ、カナダ、英国、EU各国である。また、欧州のENVISAT衛星搭載センサMIPASの独・気象気候研究所（IMK）グループとの相互データ利用研究を実施。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 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"

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 田中智章、横田達也、中島英彰、笹野泰弘、深堀正志、青木忠生、渡邊猛 : 第14回大気化学シンポジウム研究集会講演集、235-237 (2004)
「N₂O及びCH₄の吸収線パラメータの精密測定—ILAS-II ch.1に存在する吸収帯について—」
- 2) T. Tanaka, M. Fukabori, H. Nakajima, T. Yokota, and T. Watanabe : International Workshop on Critical Evaluation of mm-/submm-wave Spectroscopic Data for Atmospheric Observations, 100-103 (2004)
"Measurements of the line parameters in the ν₄ band of CH₄ and ν₁ band of N₂O"
- 3) 横田達也 : 環境システム計測制御学会誌、10, 1, 20-26 (2004)

「リモートセンシングによる地球規模大気のマニタリング」

- 4) T. Sugita, T. Yokota, H. Nakajima, H. Kobayashi, N. Saitoh, H. Kawasaki, M. Usami, H. Saeki, M. Horikawa, and Y. Sasano : Proceedings of SPIE, 5652, 279-289 (2004)
"A comparative study of stratospheric temperatures between ILAS-II and other data"
- (2) 口頭発表 (学会)
- 1) 田中智章、横田達也、中島英彰、笹野泰弘、深堀正志、青木忠生、渡邊猛 : 日本気象学会2004年春季大会、東京 (2004)
「ILAS-II ch. 1の測定領域におけるCH₄ v₄帯の高分解能吸収スペクトル測定」
 - 2) T. Yokota, H. Nakajima, T. Sugita, and Y. Sasano : The Second Solar Occultation Satellite Science Team (SOSST) Meeting, Boulder, CO, USA (2004)
"Overview of the ILAS-II Data Products"
 - 3) T. Tanaka, M. Fukabori, H. Nakajima, T. Yokota, and T. Watanabe : The 8th International HITRAN Conference, Boston, MA, USA (2004)
"Spectral line parameters for CO₂ bands near 4.8 micrometer"
 - 4) T. Sugita, T. Yokota, H. Nakajima, H. Kobayashi, and Y. Sasano : International Radiation Symposium 2004, Busan, Korea (2004)
"Vertical profiles of temperature and pressure retrieved by the ILAS-II at the high latitudes in the stratosphere and lower mesosphere"
 - 5) Y. Kim, K-M. Lee, J. H. Park, S. T. Massie, T. Yokota, H. Nakajima, and Y. Sasano : International Radiation Symposium 2004, Busan, Korea (2004)
"Intra-seasonal variation of PSC compositions retrieved using ILAS-II data"
 - 6) 田中智章、横田達也、中島英彰、笹野泰弘、深堀正志、渡邊猛 : 日本気象学会2004年度秋季大会、福岡 (2004)
「CO₂ 4.8 μm帯の吸収線パラメータ測定」
 - 7) 杉田考史、横田達也、中島英彰、笹野泰弘、南川敦宣、青山雄一、津田敏隆、小林博和 : 日本気象学会2004年度秋季大会、福岡 (2004)
「ILAS-IIによる成層圏気温・気圧の観測」
 - 8) T. Sugita, T. Yokota, H. Nakajima, H. Kobayashi, N. Saitoh, and Y. Sasano : SPIE's Fourth International Asia-Pacific Environmental Remote Sensing Symposium, Honolulu, HI, USA (2004)
"A comparative study of stratospheric temperatures between ILAS-II and other data"
 - 9) T. Tanaka, M. Fukabori, H. Nakajima, T. Yokota, T. Watanabe, and Y. Sasano : 2004 AGU Fall Meeting, San Francisco, CA, USA (2004)
"Spectral line parameters for CO₂ bands near 4.8 micrometer"
 - 10) S. Oshchepkov, Y. Sasano, T. Yokota, H. Nakajima: Third International DOAS Workshop, Bremen, Germany, 20-22 March (2006)
" Microphysics of polar stratospheric clouds from observations of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS)"

- 11) 横田達也, ISMシンポジウム「地球環境研究における統計科学の貢献」-地球環境変動の不
確実性への挑戦-, 東京 (2007)

「衛星による成層圏オゾン層と対流圏温室効果ガスの精密測定」

- (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