

A-1 衛星データ等を活用したオゾン層破壊機構の解明及びモデル化に関する研究

(1) オゾン層破壊における極渦変動の影響に関する研究

研究代表者 国立環境研究所 大気圏環境部 大気物理研究室 神沢 博
環境庁国立環境研究所

大気圏環境部 大気物理研究室 神沢 博^{*1}

地球環境研究グループ 衛星観測研究チーム 笹野泰弘・鈴木 睦^{*2}・中島 英彰^{*3}

地球環境研究センター 横田達也^{*4}

(委託先) 名古屋大学 太陽地球環境研究所 近藤 豊・小池 真

岩坂泰信・柴田 隆

松見 豊・高橋けんし

東北大学 理学部 福西 浩・村田 功

^{*1}平成10(1998)年3月までは地球環境研究センター

^{*2}平成10(1998)年10月からは宇宙開発事業団地球観測データ解析研究センター

^{*3}平成9(1997)年9月までは名古屋大学太陽地球環境研究所

^{*4}平成9(1997)年3月までは地球環境研究グループ衛星観測研究チーム

平成8-10年度合計予算額 127、044千円
(平成10年度予算額 40、166千円)

[要旨] 1996/1997年北半球冬においては、極渦が非常に安定で長期間持続した(南極域と類似)。そのことと関連し、北極の春のオゾン量が異常に低かった。ILAS オゾンデータ、さらに、キルナのオゾンデータを活用し、1996/1997年北半球冬におけるオゾンの化学反応過程による破壊量の推定を試み、下部成層圏の2月-3月の2ヶ月で、最大約50%の化学反応によるオゾン破壊があったことを示した。北極域での1996/1997年冬および他の冬の気球による総反応性窒素酸化物(NOy)と亜酸化窒素(N₂O)の観測データの解析から、脱窒(硝酸がPSCと共に落下し、NOyが成層圏から失われること)および力学輸送による混合過程が、力学過程の活発さ(すなわち極渦の強弱)に応じ、また、下部成層圏の各高度に応じ生じていることを示した。脱窒に関連して、高度約20km弱で、NOyの70%が損失されている例を観測した。北極域冬季の成層圏エアロゾル(極成層圏雲:PSC; Polar Stratospheric Clouds)の濃度分布、層構造、偏光特性などをライダーで観測し、PSCには光学的にみて性質の異なるいくつ

もの種類があることが示唆された。また、このように種類の異なる粒子がまったくランダムに混在するのではなく特徴的な構造、サンドイッチ構造をもって出現することを見いだした。成層圏の ClO 濃度を測定する装置の開発を行い、その原理実証試験を行った。測定原理は ClO を含んだ観測気体に NO ガスを添加し、塩素原子に変換して塩素ランプを照射し共鳴蛍光を検出するものである。さらに気球搭載のプロトタイプモデルを設計・製作し、その運転試験を行い十分な性能で動作することを確認した。その他、ILAS を中心として、ILAS に呼応した南北領域でのさまざまな観測が行われ、貴重なデータを得た。

[キーワード] 極渦、オゾン破壊、脱窒、水平混合、PSC、気球観測、衛星観測

1. 序

南極域に冬季から春季に存在する極渦内部でオゾンホール現象と呼ばれる大規模なオゾン層破壊過程が起きていることが 1980 年代に入って報告されている。その原因は人類が放出したフロンガス等のハロゲン化合物であると指摘されている。また、規模はいささか小さいが北極域でもオゾンホールと同様の現象が起こっており、それは、北極域だけでなく日本を含む北半球の地域の生活と健康に直接影響を及ぼす可能性がある。

成層圏の冬から春にかけて生じるオゾン破壊現象は、同時期に形成する成層圏の極渦 (Schoeberl et al., 1992) と密接な関連がある。極渦の強さ・大きさ・位置が日々および年々変動を持つことから、それらの変動は、極渦内の低温の程度、低温域の面積、等の要因を通じて、オゾン層破壊の強さ、オゾン層破壊が起こる地域の位置・広さ、等の変動に大きく影響する。事実、最近数年は、南北両極域において、極渦が強く持続するために、予想される以上のオゾン破壊が観測される頻度が多くなっている。オゾン層の数十年の長期予測に使われている 2 次元予測数値モデルでは表現されていない 3 次元構造を持つ極渦のオゾン破壊に対する役割を明らかにすることは、必要かつ緊急な課題である。

2. 研究目的

オゾン層破壊の化学反応過程に対し極渦が果たしている役割を明らかにすることを研究目的とする；その機構を明らかにすることにより、極渦の変動がオゾン層破壊に及ぼす影響を解明できる。

3. 研究方法

極域におけるさまざまな観測を実施した。観測地点の位置づけは、以下の通りである；キルナ、ニー

オルスンおよびアライバルハイトは、南北両極域での極渦の内部を調査するのに適当な地点であり、一方、フェアバンクスおよび昭和基地は、極渦の縁にあって、極渦の内外を比較するのに適当な地点である。なお、これらの観測は、1996年8月に打ち上げられ1997年6月まで運用されたADEOS衛星(「みどり」)搭載の環境庁の極域オゾン層観測センサーILAS(Improved Limb Atmospheric Spectrometer; 改良型大気周縁赤外分光計)の観測と呼応して行い、ILASデータを有効に生かすこととした。また、ILAS検証気球キャンペーンが、1997年2月から3月にかけてキルナで実施されており(Kanzawa et al., 1997)、そのキャンペーン観測で得られたデータも有効に活用する。ILASのセンサー、データ処理システム、データ処理アルゴリズム、検証、等、ILASプロジェクトの概要は、例えば、Sasano et al. (1999a)にまとめられている。詳細かつ最新の情報はILASプロジェクトホームページ(<http://www-ilas.nies.go.jp/>)に記載されている。以上の観測・解析を行うとともに、人為的に放出されたフロンガスが成層圏で光分解されることによって起こるオゾン破壊反応において一酸化塩素(CIO)が中心的な役割を果たしていることから、気球および航空機搭載用(CIO)測定器の開発を行った。

4. 観測・解析・実験結果および考察

成果について、以下、主なもの5つのテーマについて詳しく述べ、その他の結果について、最後に簡単に触れる。

4.1 オゾンの化学過程による破壊量のILASデータおよびオゾンゾンデデータ解析による推定

概要：1996/1997年北半球冬においては、極渦が非常に安定で長期間持続した(南極域と類似)、すなわち、例年に比べて約1カ月から1カ月半遅くまで(5月初めまで)持続した(Coy et al., 1997)。そのことに関連し、北極の春のオゾン量が異常に低かった(Newman et al., 1997)。ILASは、当該期間継続して、約70°N-62°Nの緯度域について、オゾン、窒素酸化物等をはじめとするオゾン破壊に関連する各種大気微量成分の濃度の極域での鉛直分布の観測を、高高度分解能(～1 km)、高精度、高頻度で行って、極渦内外のデータをもたらしことから、1996/1997年北半球冬のオゾン層破壊の理解にとって貴重な情報を与える。また、スウェーデンのキルナにおいて、ILAS検証気球キャンペーンの一環として、オゾンゾンデ観測が行われた。ここでは、ILASオゾンデータ、さらに、キルナのオゾンゾンデデータを活用し、1996/1997年北半球冬におけるオゾンの化学反応過程による破壊量の推定を試み、下部成層圏の2月-3月の2ヶ月で、最大約50%の化学反応によるオゾン破壊があったことを示した。

(1) 1996/1997年冬季北極域の成層圏オゾンの化学過程による減少のILASデータによる評価

(i) はじめに

成層圏のオゾン変動については、TOMS, UARS等の衛星データに基づき、評価されてきている(e.g., Newman et al., 1997; Manney et al., 1997)。そのオゾン変動のうち、フロンガス等に起源を持つ塩素等の触

媒化学過程によるオゾン破壊量がどの程度であるかの評価には工夫が要る。オゾン変動には、化学過程によるものと力学輸送過程によるものがあるからである。極域成層圏のオゾン破壊量の推定に不可欠な化学過程と力学輸送過程の分離を行うため、von der Gathen et al. (1995), Rex et al. (1997, 1998, 1999) 等は、Match Technique を考案し、冬季北極域でオゾンゾンデ観測キャンペーンを実施して得たデータに適用した。ここで Match Technique とは、あるオゾンゾンデ観測された空気塊が流跡線によって計算された軌跡で移動したと仮定し、数日後の別の観測地点に十分近付いたとき、これらの2つの観測は同一気塊を捕らえた (Match した) と解釈し、このオゾン濃度の差が力学的影響を除去した化学的な変化を与えるという考え方に基づく方法である。この方法により、彼等は日射時間とオゾン破壊の関係や化学的オゾン減少率の時間的変化に関する知見をもたらした。しかし、このオゾンゾンデ観測を利用した解析では、オゾン・温度以外の要素を調べられないこと、観測地点がヨーロッパ周辺に偏っているため普遍的な解析と言えないこと、等の問題点がある。そこで本研究は、オゾンをはじめとする各大気微量成分と、PSC などのエアロゾルを同時観測した ILAS データから、Match Technique と同様の手法を用いて、大規模な北極域でのオゾン減少が報告されている 1996/1997 年冬季を事例にして、化学的オゾン減少率を算出した。さらに、PSC の出現、硝酸濃度の変化と対応づけて考察した。ここではその解析結果 (Sasano et al., 1999b) の概要を述べる。

(ii) 解析データ

オゾンと硝酸の混合比、可視エアロゾル消散係数データには ILAS のデータ処理アルゴリズム Version 3.10 データを用いた。また、流跡線解析等に使う気象要素データには UKMO 全球同化データ ($2.5^{\circ} \times 3.75^{\circ}$, daily; Swinbank and O'Neill, 1994) を用いた。

(iii) 手法

・流跡線解析

UKMO で開発された流跡線解析プログラムを使用。1997 年 2 月 1 日から 3 月 31 日の北半球極域の ILAS 観測地点 から、時間間隔 1 時間で、10 日間先までの流跡線を 9 温位面で計算した。温位面は、350 K (高度約 14 km) ~ 550 K (約 22 km) までの間を、25 K 毎 (高度約 1 km 毎) に区切った。

・Match の条件

観測地点と流跡線との距離の差が 400 km 以内。流跡線に沿った、渦位の最大値と最小値の差の平均に対する割合が 15 % 以内。

・極渦の定義

極渦内の ILAS 観測データのみを用いる。極渦の境界の定義は、Nash et al. (1996) による渦位 (Potential Vorticity) の等価緯度 (equivalent latitude) に対する分布を利用した方法を採用した。

・オゾン減少率の計算

上述の条件を満たす Match に対してオゾン混合比の変化を計算し、これが輸送過程を除去した化学過程によるオゾン変動であると考え。2 月 1 日から 3 月 31 日までの各日に対し、±7 日間に得られた Match から、流跡線上に太陽光があたった時間 (sunlit time) とオゾン変化との単回帰係数を求め、sunlit time に対するオゾン減少率 (ppbv/hour) を求める。これに、流跡線上に太陽光が当たった時間の日平均値を掛けることにより、一日あたりのオゾン減少量 (ppbv/day) を算出した。非断熱冷却による沈降の効果につき、Knudsen et al. (1998) の計算結果を適用して、個々の match における空気塊の沈降を考慮した。

例えば、500 K から出発した空気塊は、じわじわ温位が下がって、match した数日後には数 K 下がっている (例えば 495 K) ことから、ozone loss rate を計算する上で、start point と end point では見ている温位面が違う、ということになる。

(iv) 結果

図 1 (カラー版の口絵 1-1 参照) に、ILAS O₃ データに Match 手法を適用して推定した 1997 年北極極渦内の化学変化によるオゾン破壊量を示す。図左のオゾン減少率 (ppbv/day) の高度-時間断面図から、2 月～3 月の 400～500 K 面でオゾン減少が起こっており、2 月後半の 450 K (高度約 18 km) 面で最大となり -85 ppbv/day に達したことがわかった。これらのオゾン減少域は、ILAS で観測されたエアロゾル消散係数から求めた PSC の存在 (図中の丸) とよく対応している。また、極渦内の空気粒子の非断熱下降曲線 (図の太い黒の滑らかな曲線) に沿って求めた 2 月 1 日～3 月 31 日までのオゾン減少量を積算すると (図右)、2 月 1 日に 457 K 面 (高度約 18.3 km) から出発して 3 月 31 日に 425 K 面 (高度約 17 km) に到達した温位面上での積算オゾンロスは、 1.5 ± 0.2 ppmv (約 0.75 ppmv/month) と最大であり、2 月 1 日の値の約 50 % に相当する。

なお、ILAS 硝酸 (HNO₃) データに Match を適用した予備的解析によると、この期間の極渦内において PSC (極域成層圏雲) による denitrification (脱窒) 効果がオゾン破壊に寄与していることが示唆される。また、ILAS データの N₂O-HNO₃ 相関プロットも、脱窒が生じたことを示唆する。

(2) 1996/1997 年冬季北極域の成層圏オゾンの化学過程による減少のオゾンゾンデデータによる評価

(i) はじめに

キルナのエスレンジ観測所 (Kiruna-ESRANGE; 67.9 N, 21.1 E) において ILAS 検証気球キャンペーンの一環として、1997 年 2 月 1 日 - 3 月 25 日のキャンペーン期間中、55 回の ECC オゾンゾンデ観測がほぼ毎日 1 回実施された (Kanzawa et al., 1997)。ここでは、そのデータを解析した結果 (Kreher et al., 1999) の概要を述べる。

(ii) 結果

まず、オゾン、温度の全ての鉛直プロファイルデータの鉛直-時間断面図とキルナ上空での修正渦位 (Modified Potential Vorticity: MPV) の同断面図を作成した。その結果、極渦の内外に応じて、極渦内では、オゾン濃度が低く、かつ、温度が低いという予想と違わぬ傾向がみられた。次に、極渦の内外にデータを分類して解析を行った。極渦の内外の定義については、Nash et al. (1996) の方法を使った。図 2 に極渦内および極渦境界域のオゾン濃度 (混合比) の時間変化を示す。なお、非断熱冷却による沈降の効果を、Rex et al. (1997) に示されていると同様の方法で極渦内に対し計算されたものを用い (Rex and Chipperfield 私信)、考慮に入れた。極渦内においては、およそ 0.2 - 0.6 ppmv/month、極渦境界域においては、およそ 0.4 - 0.6 ppmv/month のオゾン減少を示す。最も大きな極渦内のオゾン減少は、2 月 1 日 (Day 32) に温位 475 ± 10 K (高度約 19 km) から 3 月 25 日 (Day 84) に温位 460 ± 10 K (高度約 18.4 km) に下降する粒子に沿ってみられ、その値は、18～21 ppbv/day、すなわち、0.54～0.63 ppmv/month である。極渦の孤立性が高く、極渦内と極渦外の粒子交換が弱い場合は、このオゾン減少はオゾンの化学的破壊によると考えられる。この結果は、北極域のキルナを含む多点での同時期のオゾンゾンデ観測データを用いた Knudsen et al. (1998) によるオゾン化学破壊の推定とよく一致している。

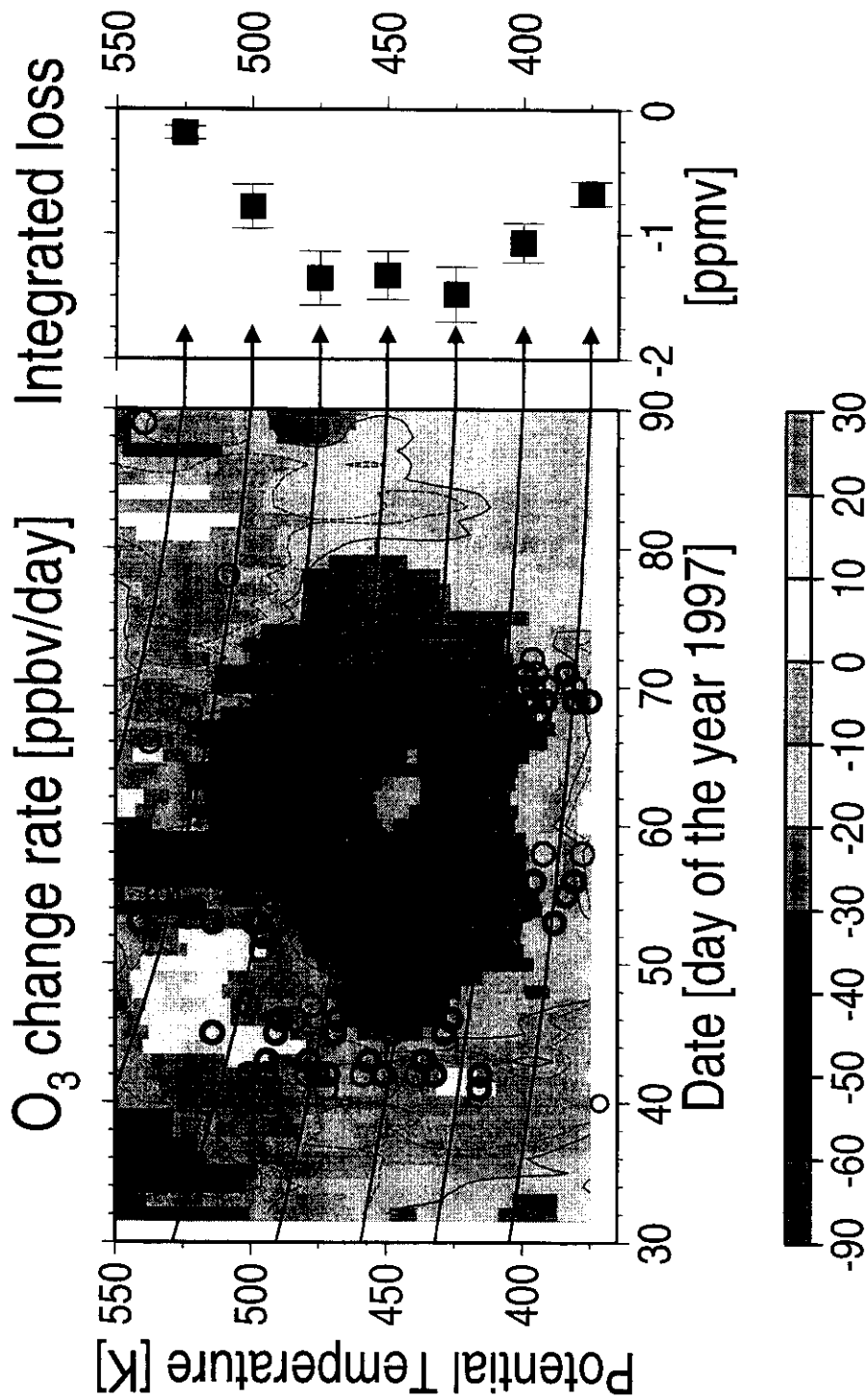


図1 1997年北極極渦内の化学変化によるオゾン破壊量: ILAS O₃ データに Match 手法を適用して推定 (Sasano et al. (1999) より)
 左図) オゾン変化量の温度-時間断面図。濃淡は、一日あたりのオゾン変化量 (ppbv/day) を示す (グレースケールのきざみは、左端のみ 30 で他は 10)。横軸は、1997 年の通算日 (2-3 月)。縦軸は温度で、375 K (高度約 15 km) から 550 K (約 22 km)。鉛直方向には、オゾン変化量に対し 3 次スプライン (cubic spline) 補間を適用。薄い黒の実線、波線は、それぞれ、99%、95% の統計的有意性を示す。赤い丸は、ILAS のエアロゾル消散係数データから推定された PSC の出現を示す。太い黒の滑らかな曲線は、極渦内の空気粒子の温度 (高度) の平均的な時間変化を示す (Knudsen et al. (1998) の計算結果を適用)。
 右図) 左図の太い黒の滑らかな曲線に沿って Day 32 (1 February) から Day 90 (31 March) にかけて積算したオゾン変化 (ppmv)。上の 2 つについては、Day 41 - 90、Day 64 - 90 の間の変化。エラーバーは標準偏差を示す。
 注) この図については、口絵 1-1 のカラー版を参照。

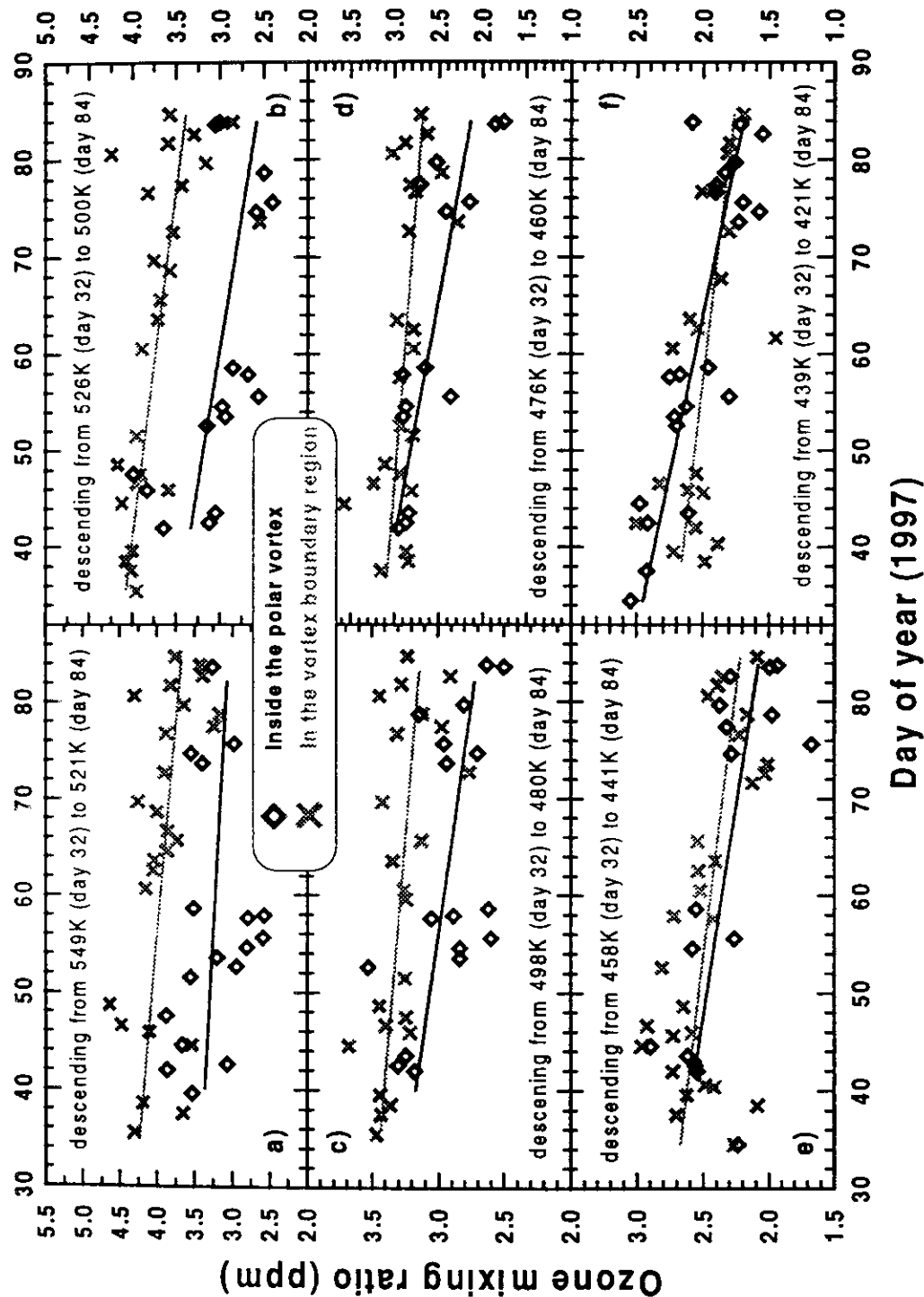


図2 1997年北極極渦内および極渦境界域の化学変化によるオゾン破壊量: Kiruna-ESRANGE (67.9°N, 21.1°E) におけるオゾンゾンデデータから推定 (Kreher et al. (1999) より)

菱形は極渦内、×印は極渦境界域を示す。縦軸はオゾン混合比 (ppmv)。極渦内における非断熱下降流による温度面の平均的時間変化の推定結果 (Rex and Chipperfield 私信) を用いた。例えば、図 a は、Day 32 (1 February) で温度 549 K (高度約 22 km) にあった粒子が温度面を横切り、Day 84 (25 March) には 521 K (約 21 km) へと温度が変化することを示す。

(3) 両者の解析結果のまとめ

上記2つの解析は、1997年2月から3月の北極域下部成層圏という同期間・同領域の解析である。上記(1)節で述べたILAS解析による最大オゾン減少は、上記(2)のオゾンゾンデ解析の最大オゾン減少と、おおまかに一致している。ただし、ILAS解析の結果の方が、高度は約1 km程下で起こり、減少値は約0.1 ppmv/month 強大きい。誤差の範囲の問題なのか、十分なデータがそろっていないためか、オゾンゾンデ解析で輸送の効果が取り除けていない問題のためか、あるいは、ILAS Version 3.10 O3のデータ質、特に、高度決定の問題を少々残しているILAS Version 3.10 アルゴリズムの問題のためか、は現在のところ不明である。まとめると、異なった種類のデータに異なった方法を適用したにもかかわらず、オゾンの最大減少が、ほぼ同高度(下部成層圏17-19 km 近辺)、ほぼ同程度の値(2-3月の2ヶ月間で2月初めのオゾン濃度の約50%)となった。

4.2 気球観測データ解析による北極極渦内における大気の混合過程と脱窒の研究

概要：下部成層圏の総反応性窒素酸化物(NO_y)の80%以上は硝酸である。硝酸は、PSCの原料物質である。また硝酸は紫外光によって分解し NO_x を生成する。この NO_x は活性な塩素、臭素によるオゾン破壊を緩和する。硝酸はPSCと共に落下し、 NO_y が成層圏から失われる(脱窒)ことが南極で観測されている。しかし北極における脱窒の観測は稀であり、詳細な脱窒過程の研究の必要性がある。また、極渦内の力学過程も窒素酸化物やオゾンの分布に大きな影響を持つ。これらの過程を、北極における気球観測データを用いて解析した(Sugita et al., 1998; Kondo et al., 1999)。北極における脱窒の観測：1995年2月11日にスウェーデンのキルナ(68N, 21E)において気球観測を行い、CLD測器によって総反応性窒素酸化物(NO_y)を、grab samplerによって亜酸化窒素(N_2O)を測定した。その約10時間後には、キルナから放球されたもう1つの気球に搭載された赤外分光器によって再度 N_2O が測定された。両観測が行われた温位面380 K(～14 km)から675 K(～26 km)は極渦内であった。1994/1995年冬季において極渦内の475 K(～19 km)の気温は極端に低下しており、特に12月中旬から1月中旬には数回、氷粒子生成温度以下に低下した。 NO_y の高度分布は、15-20 kmで層構造を成しており、 NO_y 混合比は2.7-9.3 ppbvの間で変動した。 N_2O の高度分布は、冬季における非断熱冷却に伴う空気塊の沈降を示した。 NO_y の不可逆的損失(脱窒)の度合いを定量化するために、脱窒が起こる前の NO_y の混合比(NO_y^*)を算出した。 NO_y^* は、ATMOS (Atmospheric Trace MOlecule Spectroscopy) / ATLAS-3ミッションや気球・航空機を用いた観測で得られた NO_y - N_2O の相関を使って、観測された N_2O から経験的に算出した。その結果、高度19 kmで最も規模の大きい脱窒が観測され、 NO_y は NO_y^* よりも10 ppbv小さく、 NO_y の70%が失われていたことが明らかになった。 NO_y と NO_y^* は23-28 kmおよび14 km付近で良く一致していた。23-28 kmの NO_y と N_2O の相関は、秋季北半球の40 kmよりも高高度の相関と一致していた。これは、極渦内で空気塊が下降してきたことに起因している。北極極渦内の混合：1997年2月10, 25日にスウェーデンのキルナ上空の高度29 km以下で総反応性窒素酸化物(NO_y)と亜酸化窒素(N_2O)の同時観測を行った。キルナは、温位475 K(～19 km)と675 K(～26 km)で極渦の内側あるいは境界領域に位

置していた。500 K (～21 km) より低高度では、両日とも N₂O 混合比は 120 ppbv よりも大きかった。そして、北半球中緯度で以前観測された NO_y-N₂O 相関関係を用いて計算された NO_y* と観測された NO_y は非常に良く一致した。異なる点は、2 月 25 日の 445 K (18.4 km) の NO_y 混合比が極端に低下していたことである。流跡線解析から、この層は氷粒子生成温度に近い低温を経験していたことが分かった。このような低温下では脱窒が起りやすい。500 K から 600 K (～24 km) では、N₂O 混合比は 120 ppbv よりも小さく、観測された NO_y 混合比は中緯度 NO_y-N₂O 相関関係 (N+NO の反応による NO_y の減少も含む) を用いて計算された値よりも 4-6 ppbv 小さかった。550 K よりも高高度の気温は、脱窒が起きるには気温が高かった。非断熱冷却による下降運動および準水平方向で起こる極渦空気の混合過程によって、この異常な相関関係が形成したのであろう。1997 年 2 月の北極極渦内の CH₄-N₂O 相関関係によってこの仮説を説明することができた。このような異常な NO_y-N₂O 相関関係は航空機 ER-2 による観測やスペースシャトル ATMOS/ATLAS-2 ミッションによって、1991/1992, 1992/1993 年にそれぞれ観測されている。

(1) 脱窒の研究

(i) 高度分布

1995 年 2 月 11 日に CLD 測器および grab sampler を搭載した気球観測で測定した高度 19-20 km の気温の最低値は -72℃であり、NAT (硝酸三水合物) 粒子生成温度よりも数度高かった。その気球観測データから NO_y-N₂O 相関関係を作った。同日放球の気球に搭載された MIPAS-B2 赤外分光計によって測定された N₂O データも補助的に使った。2 つの観測は 8-9.5 時間の時間差があったにもかかわらず、N₂O の鉛直分布は良く一致していた。この一致は両観測が似たような空気塊を捉えていたことを示す。

気球の上昇・下降時に得られた NO_y 混合比は、18-30 km で良く一致していた。15-20 km で、NO_y は層構造を成しており、混合比は 2.7-9.3 ppbv の間で変動していた。20-22 km では、NO_y 混合比は高度とともに急激に増加し、22 km で 6.8 ppbv の極大値を示した。

1995 年 2 月 11 日に観測した N₂O 混合比を温位に対してプロットし、3 年前の 1992 年 1 月 31 日にキルナにおいて grab sampler によって得られた N₂O 高度分布 (Bauer et al., 1994) と比較した。また、cryogenic sampler における平均高度分布も比較した。この高度分布は、1979-1993 の初冬 (9-11月) に北緯 44 度で行われた 8 つの気球観測の平均分布である。500 K (～20 km) より低高度で、1992 年 1 月 31 日の N₂O 混合比は初冬における参照値と良く一致していた。ここで、1995 年 2 月 11 日の N₂O 混合比はその参照値よりも小さかった。この高度においてキルナは、1992 年 1 月 31 日は極渦の外側、1995 年 2 月 11 日は極渦の内側に位置していた。両日における 550-700 K の N₂O 混合比の減少は、その高度が極渦内であったことから、非断熱冷却による空気の下降運動によることを示している。

同じ N₂O 値における観測された NO_y 値と中緯度の NO_y 値を比較するために、以前得られた NO_y と N₂O の相関関係を用いた。中緯度の NO_y と N₂O は下部成層圏における航空機観測、およびスペースシャトルに搭載された ATMOS 測定器によって観測された。1994 年 10 月における北緯 44 度の高度 15-32 km、および 1992 年 1 月 31 日におけるキルナでの高度 20 km 以下で行われた気球観測結果は、非常に類似した NO_y と N₂O の関係を示した。

(ii) 脱窒の影響を受けていない NO_y 値 (NO_y*) の算出式の導出

脱窒の影響を受けていない NO_y 値 (NO_y*) を算出するために、ATLAS-3 ミッション期間にスペースシャトルに搭載された ATMOS 測定器による北半球のデータを使った。ATLAS-3 ミッションは 1994 年 11 月から 10 日間ごとに行われた。合計 23 プロファイルの NO_y (=NO + NO₂ + HNO₃ + HNO₄ + 2N₂O₅ + ClONO₂) は北緯 39-40 度の温位 525-2450 K (高度約 22-55 km) で得られた。これらのデータは、N₂O が 220 ppbv よりも小さいときの NO_y と N₂O の相関関係を決定するために使われた。ATMOS の NO_y と N₂O の不確かさはそれぞれ ±15%, ±5% である。N₂O 混合比が 2-220 ppbv における best-fit curve は、

$$[\text{NO}_y^*] = 5.71 - 2.28 \chi + 11.8 \chi^2 - 2.14 \chi^3 - 1.04 \chi^4 \quad (1)$$

である。ここで、 $\chi = \log_{10} [\text{N}_2\text{O}]$ であり、[NO_y*] や [N₂O] は NO_y* と N₂O の混合比 (ppbv) を表す。N₂O 混合比が小さい場合、すなわち、高度が高い場合に NO_y の変動が増加する。このように、高高度で NO_y の変動が顕著なのは、上部成層圏で光解離反応によって NO_y が破壊されるためである。ATMOS データを使って見積もられた NO_y* の不確かさは 18-30 % である。これらの不確かさは脱窒の見積もりの正確さを左右する。

N₂O 混合比が 220 ppbv よりも大きいような低高度の場合、NO_y-N₂O 相関が直線性を示すことが、AASE (Airborne Arctic Stratospheric Expedition) および AASE-II の航空機 ER-2 観測から得られている (Loewenstein et al., 1993)。この相関式 (2) を、ATMOS データではカバーされなかった範囲に用いた。

$$[\text{NO}_y^*] = 20.7 - 0.0644 [\text{N}_2\text{O}] \quad (2)$$

ER-2 観測での NO_y と N₂O の不確かさはそれぞれ ±15, ±10 % である。ER-2 観測の NO_y と N₂O および気球観測の不確かさから見積もられた NO_y* の不確かさは 19 % である。(2) 式で得られた値と (1) 式で得られた値を比較した。N₂O が 100-200 ppbv の範囲で、それらの NO_y* は ±3 % 以内で一致した。以上を総合し、N₂O 混合比が 2-220 ppbv の範囲では (1) 式を、220 ppbv よりも大きい範囲では (2) 式を使って NO_y* を算出した。

(iii) 脱窒の定量的推定

1995 年 2 月 11 日に測定された N₂O から見積もられた NO_y* および同時に観測された NO_y を比較した。観測された NO_y 値は気相および粒子内の NO_y の総和である。脱窒の度合いを表すために、 $\Delta \text{NO}_y = \text{NO}_y - \text{NO}_y^*$ を計算した。図 3 に、 ΔNO_y の高度分布を示す。NO_y 値は N₂O が観測された高度の ±0.5 km のデータを平均した。脱窒は高度 15-23 km で起きており、18-21 km ではさらに明瞭である。 ΔNO_y の最大値は 19-20 km で得られ、およそ -10 ppbv であり、NO_y の 70 % の損失に相当する。同様の脱窒は同じ日の MIPAS-B2 観測によって 17-20 km で観測された。

25 km 付近でも、わずかに脱窒されていそうである。1992 年 1 月 31 日以前の 3 回の冬季に得られた NO_y* と NO_y を比較した結果、NO_y と NO_y* は全ての高度で良く一致しており、明瞭な脱窒が起きていないことが分かる。また、1992 年 1 月 31 日の 25 km における NO_y 値は 1995 年 2 月 11 日より明瞭に大きい。なお、NO_y* は両日でほぼ同じである。このことは 1995 年 2 月 11 日の高度 25 km でわずかな NO_y の損失があったことを示唆する。

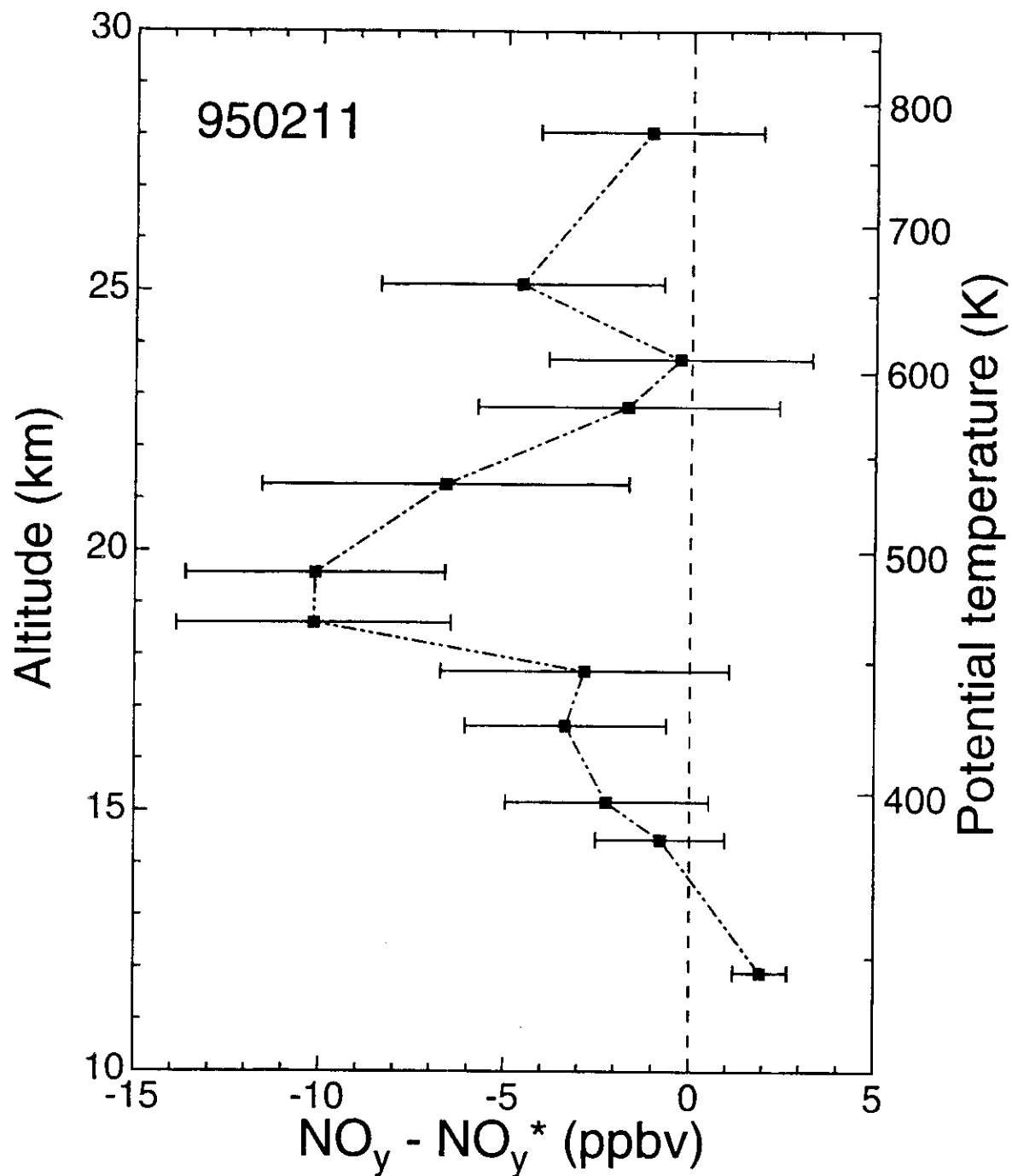


図3 観測された総反応性窒素化合物 (NO_y) と観測された亜酸化窒素 (N_2O) から経験式 (本文参照) で計算される $\text{NO}_y (= \text{NO}_y^*)$ との差 (脱窒の評価の指標) の鉛直分布 (Sugita et al. (1998) より) 1995年2月11日のKiruna-ESRANGE (67.9 N, 21.1 E) における大気球観測による。 NO_y は CLD 測器による。 NO_y^* の計算に用いた N_2O は、CLD 測器と同じ気球ゴンドラでの grab sampler によるデータを用いた。ただし、高度 28 km のみ、同日の別のゴンドラの MIPAS-B2 測器によるデータ。バーは、 NO_y と NO_y^* の両方の不確定度の合計。

1995 年 2 月 11 日に得られた NOy-N2O 相関関係を図 4 に示す。(1)、(2) 式によって表された線も示す。さらに、1992 年 1 月 31 日のキルナでの気球観測および 1994 年 10 月 12 日の北緯 44 度での気球観測で得られたデータも比較のために示す。N2O 混合比が 30-110 ppbv の領域で 1995 年 2 月 11 日の NOy 値は NOy* よりも小さく、脱窒を示唆する。

(iv) 下降運動の効果

1995 年 2 月 11 日の 22-28 km (N2O は 3.9-17 ppbv) では、25 km でわずかな脱窒が起きているけれども、NOy と NOy* は高度とともに減少し、それらは不確かさの範囲で一致した。1992 年 1 月 31 日のこの高度での測定は極渦内で行われ、NOy と NOy* は良く一致した。両観測での NOy と NOy* の一致は図 4 に示されている。Abrams et al. (1996) や我々による ATMOS データ解析から中緯度では 38-40 km より高高度でだけ N2O 混合比は 17 ppbv を下回る。この低 N2O 混合比の領域では、(1) 式から見積もられた NOy* は N2O の値によって大きく変化する(図 4)。しかしながら、N2O が 10 ppbv よりも小さいときの NOy の観測値の 7 ppbv への減少は ATMOS 観測から導出された NOy* の減少と一致する。結果として、極渦内の 23-28 km の NOy-N2O 相関関係と秋季北半球中緯度の 40 km 以上の相関関係は一致した。上部成層圏の空気が中緯度から極側へ輸送され、秋季から冬季にかけて極渦内で下降するという仮説によって、N2O 混合比が 3.9-17 ppbv での 1995 年 2 月 11 日と 1992 年 1 月 31 日に観測された NOy を説明することができる。

(2) 混合過程の研究

(i) 温位 445 K (高度約 18 km) 面でのトラジェクトリー上の温度解析

1996/1997 年冬季北極につき、トラジェクトリー解析を行い、トラジェクトリー上の最低気温 (TMIN) を求めた。NAT 粒子生成温度 (TNAT) と氷粒子生成温度 (TICE) も求めた。TNAT は Hanson and Mauersberger (1988) の式を用いて計算した。TNAT や TICE を算出する際には Sugita et al. (1998) の HNO3 と H2O の濃度値を使用した。1997 年 2 月 25 日の温位 445 K でサンプルされた空気は他の高度よりも低温を経験していた。2 月 10 日から 25 日の間に、435-475 K で TMIN は TICE を下回った。1996/1997 年冬季の残りの期間では TMIN は高かった。低 NOy 濃度の空気塊が経験した温度を調べるために、観測された空気塊の等温位面バックトラジェクトリー上の温度を、温位面 400-650 K 間の 17 高度で計算した。温度 (T) は ECMWF のデータを用いた。気球観測の位置によるトラジェクトリーへの影響評価のために、気球観測を中心とした水平方向に 50 km の隣接した 8 地点からのトラジェクトリーも各温位面で計算した。これら 9 つのトラジェクトリーの中で、最も低温を経験したものをこの後の考察で用いる。温位に対してバックトラジェクトリー中の T - TICE の最小値 ($\Delta TMIN$) をプロットした。ここで、T は空気塊が経験した温度を表す。T - TICE の最小値は 435 K と 460 K で見られ、2 月 12 日から 13 日の間にそのような低温を経験した。さらに、435 K と 460 K の T は TICE に達していた。

ECMWF の気温と 1994-1996 年のラジオゾンデで測られた気温を比較すると、TNAT 付近での ECMWF の気温は 100-30 hPa (高度約 16-23 km) で 0.6-1.6 K 高く、標準偏差は ± 1.5 K から ± 2.3 K である (Knudsen, 1996)。ECMWF 気温データのバイアスを考慮すると、435-460 K のどこかで 48 時間近く T は TICE を下回っていそうである。なお、10 μ m の氷粒子は 48 時間で高度 18 km から 4 km 下に落ちる (Muller and Peter, 1992)。これらの結果は、445 K の NOy の損失が脱窒によるものであることを示唆す

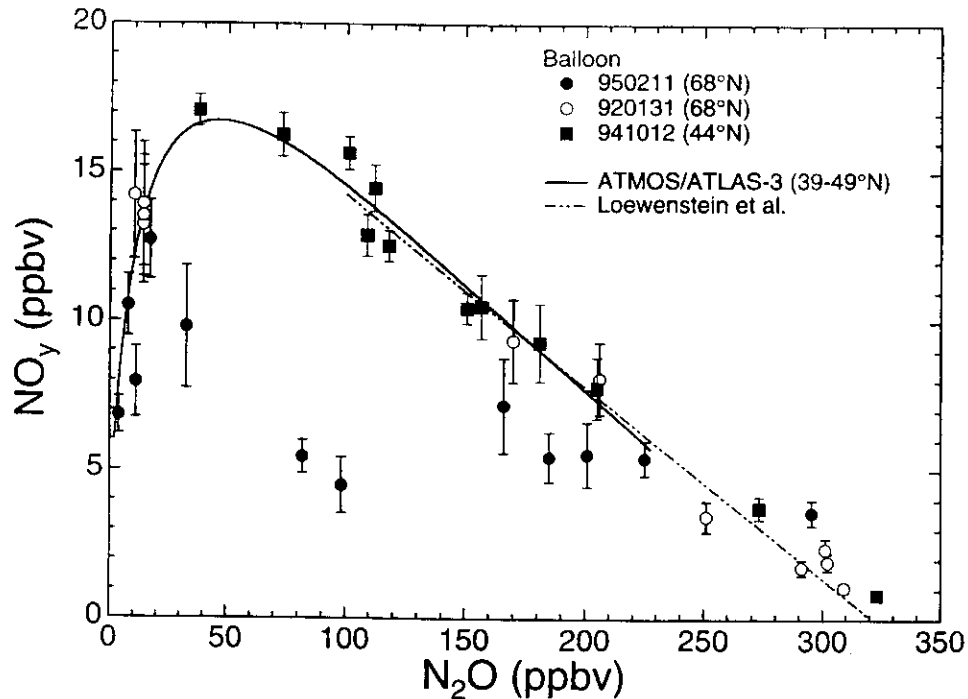


図4 総反応性窒素化合物 (NO_y) と亜酸化窒素 (N_2O) の相関 (Sugita et al. (1998) より)
 1995 年 2 月 11 日 (黒丸) と 1992 年 1 月 31 日 (白丸) は、Kiruna-ESRANGE (67.9 N, 21.1 E) における大気球観測データ。1994 年 10 月 12 日の中緯度 44 N での大気球観測データも参考のため示す (黒四角)。実線と鎖線は、経験式 (本文参照) によるもの。

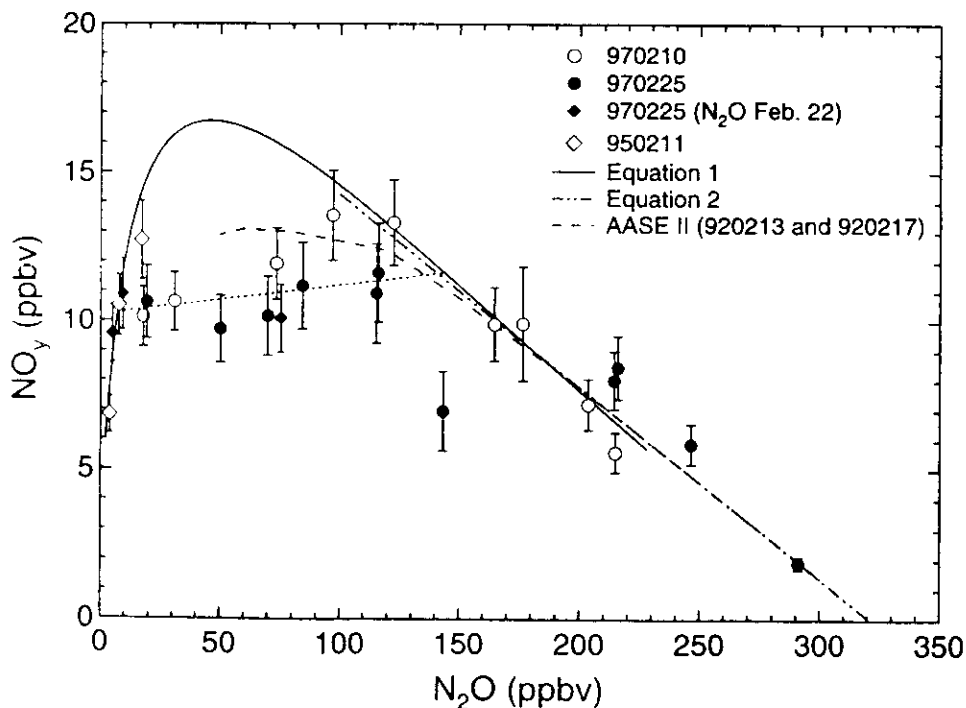


図5 総反応性窒素化合物 (NO_y) と亜酸化窒素 (N_2O) の相関 (Kondo et al. (1999) より)
 1997 年 2 月 10 日 (白丸) と 1997 年 2 月 25 日 (黒丸)。1997 年 2 月 25 日の NO_y と 1997 年 2 月 22 日の N_2O データのプロットも示す (黒菱形)。1995 年 2 月 11 日のデータも参考のため示す (白菱形)。いずれも Kiruna-ESRANGE (67.9 N, 21.1 E) における大気球観測データ。AASE (Airborne Arctic Stratospheric Expedition) 期間の 1992 年 2 月 13 日と 2 月 17 日の平均的相関データも示す (長破線)。実線と鎖線は、経験式 (本文参照) によるもの。混合過程を示唆する線も示す (短破線)。

る。

(ii) NO_y-N₂O 相関解析

(a) 温位 500 K (高度約 20 km) より高高度の領域

ここでは、500 K 以上の高高度での気球観測によって得られた NO_y-N₂O の相関関係に焦点を合わせる。この高度では N₂O 混合比は 120 ppbv よりも小さい。図 5 に、1997 年 2 月の観測による NO_y-N₂O 相関を示す。比較のために、(1), (2) 式から求めた NO_y*-N₂O の相関関係も示す。1995 年 2 月 11 日に極渦内の N₂O 混合比が 4-17 ppbv (570-700 K (22.5-28 km)) の領域で行われ、かつ、脱窒の影響を受けていない気球観測の NO_y-N₂O 相関関係も示す (Sugita et al., 1998)。

1997 年 2 月 10 日と 25 日では、500-600 K (N₂O は 20-120 ppbv) の NO_y は NO_y* よりも 4-6 ppbv 小さかった。もし脱窒が大きな氷粒子の沈降によって起こるのであれば、この高度の気温は脱窒が起きるには高すぎるので、この 4-6 ppbv の NO_y の損失は脱窒によるものではなさそうである。1996/1997 年冬季の 500 K よりも高高度では、1 月に TMIN は TNAT 以下に落ちたが、決して TICE には達しなかった。正確な脱窒機構は明らかにされていないが、北極における 1989 年 2 月の脱水を伴わない脱窒の観測 (Fahey et al., 1990a, b) を考慮すると、TICE より高温で脱窒が起こる可能性は完全に除外できない。しかしながら、1996 年 2 月の北極極渦内の 18-19 km における 50 % の脱窒は 10 % の脱水を伴っていたことが、総水素量インデックス (H₂O + 2CH₄) の測定からわかる。また、脱窒あるいは脱水された空気塊は TICE を経験した。一方、脱窒過程ではなく力学輸送過程によって、NO_y の損失を引き起こしうる。N₂O 混合比が 50 ppbv よりも小さいところでは、(1) 式で得られた NO_y-N₂O 相関は、N₂O が高いところから外挿した直線から大きくずれている (図 5 の実線参照)。もし低 N₂O 混合比の空気塊とそれよりも高い空気塊との混合が起これば、混合された空気の NO_y-N₂O 相関関係は (1) 式で求められたものとは異なりうる (Waugh et al., 1997)。一方で、N₂O 混合比が 50 ppbv よりも高いところで混合が起こった混合は NO_y-N₂O 相関の形を変化させない。なぜなら、混合が起こる前の相関関係は (1) 式の直線で表されているからである。

極渦内外の N₂O 混合比の鉛直・水平方向の分布は、観測された NO_y-N₂O 相関関係を説明するために有効である。冬季北極の AASE-II 観測で得られた N₂O の等価緯度 (equivalent latitude) - 温位断面図が、GFDL の SKIHI general circulation model によって再現された。再現された N₂O の断面図は 400-500 K の温位面での N₂O の傾斜が、極渦の境界域から極渦の内側 3-5 度にかけて sharp であった。極渦境界をまたいだ N₂O 混合比の傾斜は、極渦内の非断熱下降運動と中緯度空気との quasi-horizontal mixing (準水平混合) のバランスによって決まっている。1992 年の AASE-II の ER-2 や EASOE 気球観測のデータは、500 K から 550 K の極渦内における N₂O 混合比は 50 ppbv よりも小さく、極渦境界域では 150 ppbv であった (Strahan and Mahlman, 1994; Bauer et al., 1994)。1997 年 2 月 10 日と 25 日の NO_y と N₂O データによって見られた mixing line (図 5 の短破線) を考えると、1997 年 2 月 10 日と 25 日の NO_y-N₂O 相関関係は、NO_y と N₂O の混合比が 10 ppbv よりも低い空気と極渦境界域の空気の混合によってのみ起こり得る。

NO_y と N₂O が低い空気塊は温位面でいうと 600 K から 775 K の間で観測された。1997 年 2 月 22 日の 600-675 K で N₂O 混合比は 5-9 ppbv であった。この N₂O 混合比を用いて算出された NO_y* と NO_y とが良く一致したことは、下降中の NO_y-N₂O 相関関係は下降前から明瞭に変化しなかったことを示唆す

る。1995 年 2 月 11 日の極渦内での N₂O 混合比もまた 570-600, 780 K で 4-17 ppbv と小さかった (Sugita et al., 1998)。この高度で NO_y 混合比は 6-12 ppbv であり NO_y-N₂O 相関関係は (1) 式と良く一致した。Abrams et al. (1996) や Sugita et al. (1998) による ATMOS/ATLAS-3 の解析は、11 月の北極中緯度の 38-48 km では N₂O 混合比が 6-12 ppbv 内であったことを示した。これらの結果は、極渦内で上部成層圏の空気が 570-780 K まで下降し、1994/1995 や 1996/1997 の冬に NO_y-N₂O 相関関係を変化させたことを示す。

輸送過程の計算から、quasi-horizontal mixing の強さは極渦の状態によって知られている。Waugh et al. (1994) は contour advection technique を ECMWF 等の気象グリッドデータに適用することによって、温位 450 K 面においては、北極極渦内での混合は極渦外の混合よりもゆっくりと起こり、大規模波動活動が起きている時に極渦外よりも速く起こることを示した。下部成層圏においては、極渦外よりも極渦内の混合が大規模波動活動の影響を強く受けることは Dahlberg and Bowman (1994) や Manney et al. (1994) によっても示されている。さらに、Manney et al. (1994) は極渦内の混合の活発化は冬季の終わりの成層圏昇温時に起こることを示した。南極極渦内の混合は極渦外よりも遅いことが示されている (Bowman, 1993; Manney et al., 1994)。これに対して、Chen et al. (1994) による解析は南極極渦内のトレーサは、400-600 K の高度では、極渦外と同程度活発であることを示した。

1996 年 11 月と 12 月に北極の TMIN は Canadian warming によって気候値よりも高くなっていた (Coy et al., 1997; Naujokat and Pawson, 1998)。これと整合的に、北極極渦境界域での渦位 (PV) の傾きは気候値よりも小さかった。この期間に極渦境界域と極渦内の混合が十分に起きていたと考えられる。1997 年 1 月と 2 月の気温の低下に伴い、北極極渦は非常に安定化した。この期間には極渦内の混合が強くなったとは思えない。NO_y-N₂O 相関関係に具現している 11-12 月と 1-2 月の混合の重要性を明らかにするためには詳しい解析が必要である。

1997 年 2 月 10 日の気球観測は、675 K より低高度では極渦境界付近であったことに注意しなくてはならない。2 月 25 日の観測は極渦内で行われたが、これもまた 550 K より低高度では極渦境界域に近かった。極渦境界域では等温位面での N₂O の傾きが存在する。混合の強さは、N₂O の傾きが弱い極渦中心付近でのものより効果的に、NO_y-N₂O 相関のような空気塊の性質を変化させうる。

(b) 温位 500 K (高度約 20 km) より低高度の領域

500 K より低高度では 2 月 10 日と 25 日での N₂O 混合比は 120 ppbv よりも高く、NO_y は 2 月 25 日の 445 K を除いては NO_y* と良く一致した。現在までの気球観測では 500 K 以下の極渦内において N₂O が 120 ppbv よりも低いときの NO_y-N₂O 相関関係の情報はない。520 K (22 km) より低高度の 1992 年 1 月 31 日のキルナでの気球観測は、極渦外または極渦境界域で行われ (Kondo et al., 1994)、N₂O 混合比は 170 ppbv よりも高かった。極渦内の 475 K (20 km) において AASE-II での 1992 年 2 月 13 日と 17 日の観測から N₂O 混合比が 50 ppbv 以下の NO_y-N₂O 相関関係が得られた (図 5 参照)。NO_y-N₂O 相関関係を変化させる非断熱下降運動と混合が高高度よりも弱かったためである可能性がある。

(iii) まとめ

1991/1992, 1992/1993 と 1996/1997 年の冬季北極において、N₂O 混合比が 20-120 ppbv の範囲の領域で、脱窒が起きていない場合において、NO_y-N₂O 相関関係の (1) 式からのずれは、冬季の極渦内における力学的要因による可能性がある。

4.3 ライダー等による極成層圏雲 (PSC) の観測

概要：本研究は、成層圏エアロゾル、特に、PSC (Polar Stratospheric Clouds; 極成層圏雲) の濃度分布、層構造、偏光特性などを観測することを目的として、実施された。研究の実施にあたっては、ライダー装置をアメリカのアラスカ州 (Poker Flat; 65N, 148W) およびノルウェーのスヴァールバル諸島 (Ny Alesund, Spitsbergen; 79N, 12E) に設置し、冬の期間に担当要員が現地へ出向いてライダーを運用し上記目的にかなう観測を行なった。また、ライダー観測にあわせて、現地でドイツのアルフレッドウエゲナー極地海洋研究所と共同でパーティクルカウンターを搭載した気球観測を行った。ライダー観測によって、PSC には光学的にみて性質の異なるいくつもの種類があることが示唆された。また、このように種類の異なる粒子がまったくランダムに混在するのではなく特徴的な構造、すなわち、サンドイッチ構造をもって出現することを見いだした (Shibata et al., 1997)。これらの種類の違いが何によるのか、あるいは特徴ある構造がどのような機構で形成したある程度の時間維持されるのかについて、最終的な結論を得ることは現時点では難しいが、いわゆるバックグランドエアロゾルと呼ばれている硫酸液滴粒子に硝酸ガスが取り込まれるプロセスが本質的に重要であろうと考えられている (Carslaw et al., 1997)。

(1) はじめに

光学的に見た PSC の違い (種類) と、微物理学的に見た違い (種類) がどのように対応するのか、タイプの異なった PSC の混在状態を規定する大気物理的な条件は何か、種類の異なる PSC の相互の関係はあるのか、あるとすればどのようなものか、など以前から問題とされてきた課題はあいかわらずこの方面の主要な問題として残されている。

PSC 粒子の種類の違いが地球放射にあたえる影響を正確に評価しなければ、衛星で観測されたスペクトラムを正しく評価することができず、さらには衛星観測で目標としている大気中の各組成の濃度推定に対しても重大な影響を及ぼす。さらに研究が必要な所以である。

(2) 観測結果

1990 年代の初めごろには、PSC に対する研究者の見解はきわめて簡単なものであり、PSC とは結晶化した氷ないし硝酸 3 水和物を主成分とするものと見なされていた。しかし、ライダー観測できわめて偏光解消度のひくい粒子 (完全球形に近い粒子の存在を示唆する) がしばしば見つかるに及んで、PSC に対する従来の考え方に大きな修正を与えざるをえなくなった (Dye et al., 1992; Carslaw et al., 1994; Anthony et al., 1995)。

PSC の形状や相は、PSC 表面での反応を理解する上で基本的な情報であり、極域成層圏のオゾン消失モデルを構想する上でもきわめて重要である (Portman, et al., 1996)。そして、現実の成層圏では一度生成した PSC 粒子が永久に初期の状態を保持するとは限らない。個々の粒子の一生の間に性質を変えると考えるのが自然である。また、粒子の集団としても一生のうちに性質を変えると考えることもまったく当然である。従来の研究は、理想化した PSC 粒子とはどんなものかのみ集中していた。

このような背景のもと、ライダーによる PSC の濃度のみならず相やサイズの長期観測が計画された。

観測は、PSC の発生時から消滅時までのすべての時間にわたって行なわれ、個々の粒子の性質およびその時間変化、あるいは粒子集団としての PSC の発生から消滅までのすべての時間にわたって実施された。このことによって、①どのようなタイプの PSC 粒子が（個々の粒子として）あるか、②異なるタイプの粒子がそれぞれ（粒子の集団として）どのように分布しているか、③タイプの異なる PSC 粒子間の微物理学的関係はどのようなものか、④異なるタイプの粒子の混在の仕方とはどのようなものであるか、等について検討に必要な情報を得るように企画した。ライダー観測にあわせてエアロゾル気球観測を実施し、粒子のサイズや濃度に対する情報を得るようにした。

ライダー観測、エアロゾル気球観測、および航空機観測ともに順調に推移し、以下のような結果を得た。

① PSC 発生期間中に液滴のしかも比較的サイズの大きい PSC 粒子が存在する。

②ここで見られた液滴状 PSC 粒子は、PSC の雲全体に均等に発生するのではなく、雲の一部に層状に存在した。

③液滴状 PSC の層の上下に比較的結晶の度合いが進んだ層が隣接する独特の層構造をとる（サンドイッチ構造と命名された）。

④サンドイッチ構造の寿命は比較的長く数日以上寿命を持つものが多い。

⑤ PSC の出現やサンドイッチ構造の出現は年々異なり、少なくとも北半球のかなり広い範囲にわたった大気の状態（温度、流れ、波動、など）によると想像される。

⑥液滴 PSC がライダーで観測されている領域をエアロゾルパーティクルカウンターによって気球観測すると、たしかに粒子サイズの大きいものの濃度が高くかつきわめて特徴ある数濃度－サイズ分布を示している（急速な巨大粒子の成長）。

図 6 に、PSC のサンドイッチ構造の観測例として、Ny-Alesund, Spitsbergen (79 N, 12 E) におけるライダー観測結果を示す。太実線の R (Scattering ratio) は、R-I がエアロゾル粒子の質量混合比におよそ比例することから、エアロゾルの濃度の指標である。薄太実線の δ (depolarization ratio) は、エアロゾル粒子の球形度の指標であり、 δ が 0.5 % より小さい場合はエアロゾル粒子が球形（すなわち液滴）、大きい場合にはエアロゾル粒子が非球形（すなわち固体）であることを示す。細実線の α (Angstrom exponent) はミー散乱粒子の粒径分布の指標である。エアロゾル粒子の 1064 nm と 532 nm の後方散乱係数の比に依存し、 α の値が大きい程小さい粒径の粒子が多いことを示す。図 6 は、高濃度の球形（すなわち液滴）のエアロゾル粒子の鉛直に 5 km 程の厚さの層が、非球形（すなわち固体）のエアロゾル粒子の鉛直に 1 km 弱程の厚さの層に挟まれるサンドイッチ構造を示している。

1998 年 3 月には、ノルウェーでのライダー観測は、航空機によるエアロゾル観測と同期して実施された（なお、この航空機観測は国立極地研究所が企画したものである）。この観測からは、極渦内外のエアロゾル粒子の濃度やサイズの非一様性に関する情報を得ている。現在、詳細な解析を実施中である。

（3）考察

これらの成果は、PSC の生成や PSC 粒子上での種々の分子の取込や反応を考える上で大変有用な情報を与えた (Portman et al., 1996) が、一方では液滴 PSC の存在とサンドイッチ構造の存在が必然的なつながりがあるのかないのか、そもそもそのような存在が時として雲の主要な成分あるいは主要な構造と

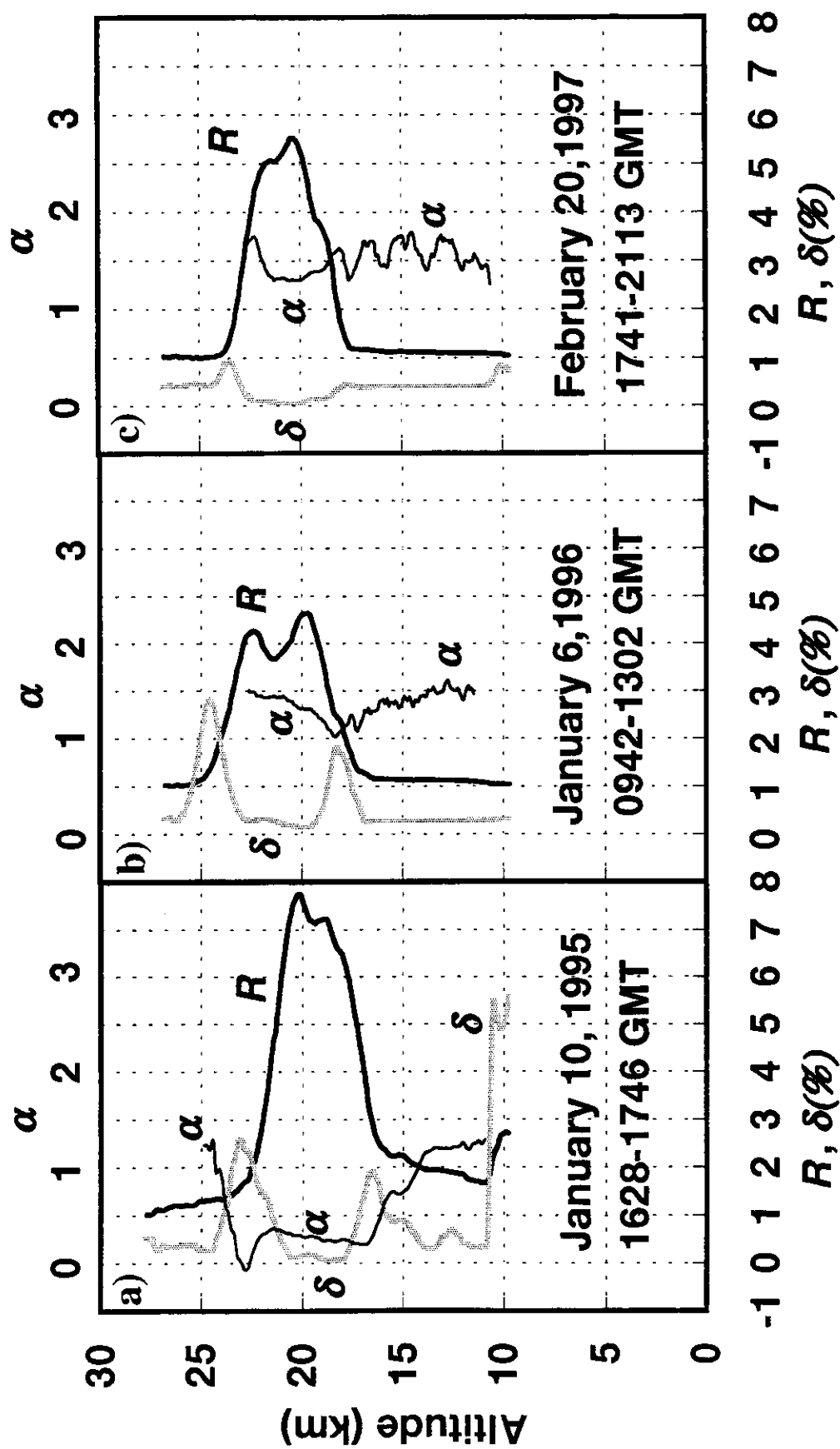


図6 ライダー観測によるPSCの特徴的なサンドイッチ構造
Ny-Alesund, Spitsbergen (79 N, 12 E) における 1995 年 1 月 10 日 (a), 1996 年 1 月 6 日 (b), 1997 年 2 月 20 日 (c) の観測。太実線は R (Scattering ratio)、
薄太実線は δ (depolarization ratio)、細実線は α (Angstrom exponent) を示す。

して観測されるのはどのように考えれば良いのかなどについて、エアロゾルの微物理あるいはエアロゾル層の物理としてきわめて興味深い問題を新たに提起している。これらの課題に対しては、従来の手法に加えて実験的な手法を導入しその場観測を積極的に行なう（個々の粒子の性状に関する研究）ことや、航空機（あるいはそれに代わる手段）を援用して雲全体の中の空間構造（およびその変化）を知るなどの研究方向が望まれる。幸い、非接触の表面分析技術の最近の進歩や、無人航空機あるいは飛行船などの実用化へ向けての進歩は著しく、極域成層圏のエアロゾルをめぐる科学が大きく発展する素地が出来つつあるように見える。

4.4 レーザーヘテロダイン分光計を用いた O₃, N₂O 観測

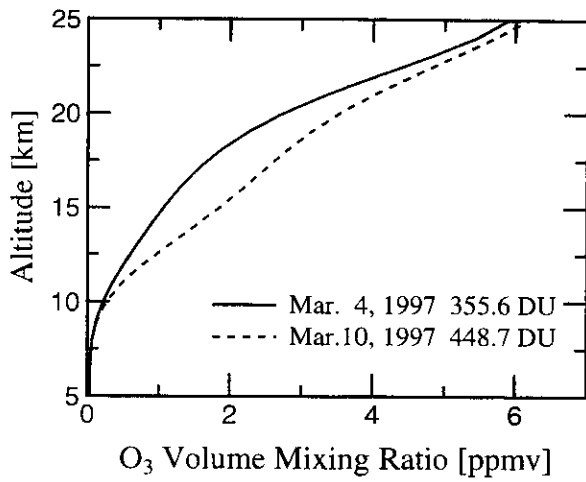
概要：1997 年 2 月 から 5 月 にアラスカにおいてレーザーヘテロダイン分光計を用いた O₃, N₂O 高度分布の観測を行い、極渦内でのオゾン破壊の様子を調べた (Murata et al., 1999)。

（1）レーザーヘテロダイン分光計によるアラスカでの観測概況

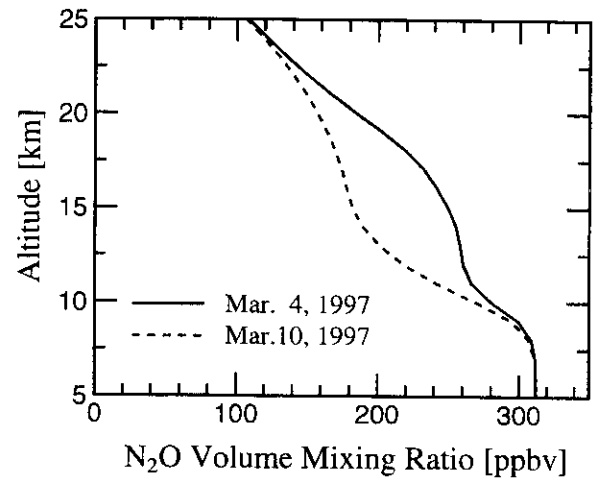
レーザーヘテロダイン分光計 (TDLHS) は、太陽光と半導体レーザーから発振する赤外光とを重ね合わせて、「うなり」の成分をとることで、非常に高分解能、高感度のスペクトルを得ることができるのが特徴である。我々東北大学グループの開発した分光計の波数分解能は 0.0013 cm^{-1} であり、これにより地上から観測した太陽赤外吸収スペクトルの輪郭から O₃ 等の高度分布を求めることが出来る。今回の観測ではこの分光計をアラスカ大学フェアバンクス校地球物理研究所ポーカーフラット観測所 (65.1N, 147.5W) に設置し、1997 年 2 月 16 日 - 3 月 13 日および 3 月 31 日 - 5 月 12 日に観測を行った。観測は太陽光を必要とするため晴天時に限られるが、3 月に 7 日間、4 - 5 月に 25 日間、計 32 日間分のスペクトルを得た。O₃, N₂O の高度分布の導出にはインバージョン法を用いており、高度分解能は約 5 km である。

（2）観測結果とその解釈

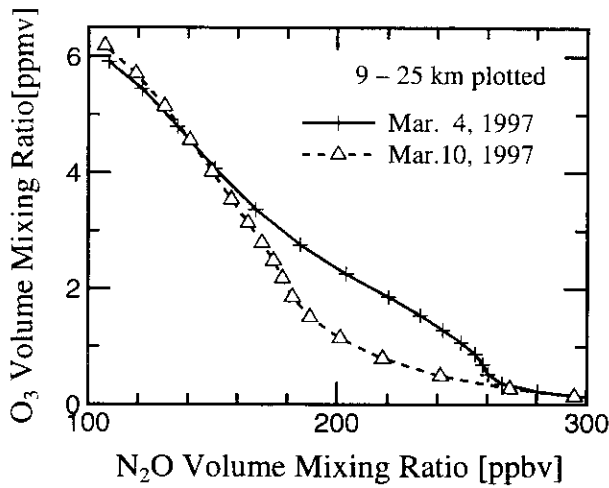
観測期間中、3 月 10 日と 4 月 17 日にアラスカ上空が極渦内部に入った状況を観測した。図 7 a, 7 b は、それぞれ O₃, N₂O の観測された高度分布を示す。3 月 10 日のデータを 3 月 4 日のデータとともに示している。O₃, N₂O とも 10 日は下部成層圏で 4 日の高度分布に対して下方に沈み込んだ高度分布となっている。ECMWF のデータから求めた渦位 (PV) の map によると、ポーカーフラット上空は 4 日は極渦の外側、10 日はおよそ 17 km より下の下部成層圏で極渦の内側に位置しており、O₃, N₂O の観測結果は極渦の内側で下降流により大気が沈み込んでいることとよく対応する。また、流跡線解析の結果も 4 日は低緯度側から、10 日は高緯度側から気塊が来たことを示した。ただし、以上の結果を見ただけでは、極渦の内部では大気の沈み込みにより O₃ は全量でみると増加しており、化学的なオゾン破壊が起こっていたかどうかはわからない。そこで、O₃ と N₂O との相関を取ることでオゾン破壊の影響を調べる。一般に O₃, N₂O 共に下部成層圏では光化学的寿命が長くその変化は主に力学的輸送によって



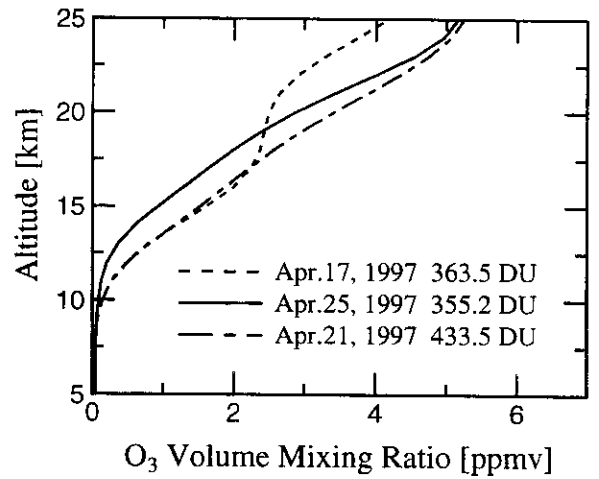
a オゾン鉛直分布



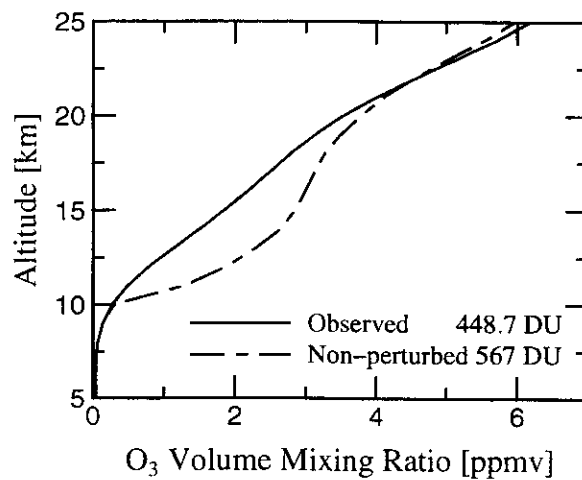
b 亜酸化窒素鉛直分布



c オゾンと亜酸化窒素の相関



d オゾン鉛直分布



e オゾン鉛直分布の比較：
観測値と化学的破壊なし
の場合の想定値
(1997年3月10日)

図7 オゾン (O₃) と亜酸化窒素 (N₂O) の観測結果 (Murata et al. (1999) より)
1997年3月から4月にかけての Poker Flat Research Range (65.1N, 147.5W) におけるレーザーヘテロダイ
ン分光計観測データ。オゾン鉛直分布の図については、オゾン全量値 (DU: Dobson Unit) も示す。

起こるため、O₃ と N₂O との相関を取るとほぼ一定の関係を示す。しかし、化学的オゾン破壊が起こるとその関係からずれることになる。図 7c に、3 月 4 日と 10 日の観測結果から得られた O₃ と N₂O との相関を示す。これを見ると極渦内部の領域を観測した 10 日は極渦外部を観測した 4 日に比べ N₂O 量に対する O₃ 量が少ない。これは極渦内部で化学的なオゾン破壊が起こったことを示している。

もう一例、アラスカ上空が極渦内部に入った 4 月 17 日のオゾンの高度分布を 4 月 21, 25 日の高度分布とともに図 7d に示す。PV map によると 4 月後半のアラスカ上空は 17 日以外は極渦の外側に位置しており、21 日のようにオゾン全量は通常 400 DU 以上であった。17 日と 25 日に観測されたオゾン全量はともに少なく 360 DU 程度であったが、その高度分布は大きく異なっている。17 日は 21 日に比べ 18 km 以上でのみオゾン混合比が小さいのに対し、25 日は全高度領域で 21 日よりオゾン混合比が小さい。PV で見ると 17 日は 17 km 以上で極渦の内側に入っているのに対し、25 日は低緯度側からの大気がポーカーフラット上空に達している。オゾンの変動が力学的な原因のみならば 17 日の 18 km 以上のオゾン混合比は 21 日のものより大きくなるはずである。残念ながら N₂O については 17 日に観測が出来なかったため、O₃ と N₂O の相関を取ることは出来なかったが、観測された高度分布は極渦内部でオゾンが減少していることを示唆している。

(3) オゾン破壊量の見積もりの試み

オゾン破壊量を見積もるための試みの一例として、3 月の観測結果から 10 日の N₂O 高度分布と 4 日の O₃ - N₂O 相関を用いて化学的なオゾン破壊がなかった場合の 10 日のオゾン高度分布を計算してみると、図 7e のようになり、これより 10 日に観測した極渦内部では 120 DU 程度のオゾン化学破壊が起こっていたと推定された。

4.5 気球および航空機搭載用一酸化塩素 (ClO) 測定器の開発

概要：成層圏の ClO 濃度を測定する装置の開発を行い、その原理実証試験を行った。測定原理は ClO を含んだ観測気体に NO ガスを添加し、塩素原子に変換して塩素ランプ (118.9 nm) を照射し共鳴蛍光を検出するものである。実験室で ClO を生成して測定試験を行った。製作した装置の感度係数として 10^{-6} (count s⁻¹) / (atom cm⁻³) を得ることができた。これは ClO 濃度 1×10^6 atom cm⁻³ のとき 1 秒あたり 1 カウントの信号に相当する。実際の測定では 1 回の測定に数 10 秒間積算したデータを使用する。そのため ClO の塩素原子への変換効率やランプ強度の不安定さやバックグラウンドのノイズを考慮しても ClO 濃度 10^6 molecules cm⁻³ 程度までが測定可能である。成層圏での実測にこの装置は十分使用可能であることを実証した。さらに気球搭載のプロトタイプモデルを設計・製作し、その運転試験を行い十分な性能で動作することを確認した。

(1) 序

極渦内での活性な塩素や臭素によるオゾン破壊の機構については定性的には良く理解されるようにな

ってきたが、モデルによるオゾン破壊の推定が観測値を下回るなど定量的な理解は不十分である。極渦の変動とそれに伴うオゾン破壊の化学過程の定量的な解明は非常に重要な課題である。

(2) 研究目的

本研究の目的は反応性の塩素がオゾン層の破壊に及ぼす影響を観測するため、共鳴蛍光方式の一酸化塩素 ClO 測定器を開発し、さらにその測定器を気球に搭載して一酸化塩素の高度分布の観測を可能にすることである。成層圏オゾン破壊の過程において一酸化塩素 (ClO) の寄与は重要である。人為的に放出されたフロンガスが成層圏で光分解されることによって始まるオゾン破壊反応において ClO は中心的な役割を果たしている。したがって、ClO の計測は、オゾン破壊の化学反応の進行状況を定量的に捉える上で不可欠である。とくに、極渦内の温度や成層圏雲の形成、極渦の面積などの極渦の変動とオゾン破壊の化学過程の関連を解明するために ClO の計測が必要である。

しかしながら、オゾン破壊が進行している状態でも大気中の ClO 濃度は 10^7 - 10^9 molecules cm^{-3} 程度と極めて希薄なので、精度良く測定するには高度な技術が必要とする。また、極域成層圏雲での不均一反応の解明を行うには局所的な ClO 濃度の情報が必要である。そこで本研究では、塩素の共鳴蛍光を利用する高感度高精度でかつ時間分解能の高い ClO の計測装置を開発する。この装置は小型軽量で航空機や気球に搭載できるので、局所的な ClO 濃度の測定が可能となる。

(3) 研究方法

研究目的を達成するために、一酸化塩素 ClO 測定器を開発を行う。測定原理は以下の通りである。まず、採取した空気に一酸化窒素を注入し、反応 (1) により ClO を塩素原子に変換する。この反応の反応速度定数は大きく、効率的に進む。



次に生成した塩素原子に塩素ランプからの 118.9 nm の塩素の共鳴線をあて励起する。



電子励起した塩素原子からの蛍光 ($h\nu'$) を光電子増倍管で観測する。



この共鳴蛍光の強度は塩素濃度に比例するので、実験室であらかじめ較正係数を求めておき、ClO の絶対濃度を求める。使用する塩素ランプの 118.9 nm の光は真空紫外域にもかかわらず、ちょうど酸素の吸収波長の窓に当たっている。そのため大気測定の際も大気中の酸素の影響が少なく測定に使用できる。数秒の計測時間で、ClO の下限濃度 10^5 - 10^6 molecules cm^{-3} が測定できる装置を目標とする。装置全体を小型・軽量とし、気球や航空機に搭載可能であることが必要である。このため、下記の項目の開発が必要である。

- ・共鳴蛍光励起用の真空紫外塩素ランプを開発する。118.9 nm の共鳴線を出す塩素ランプは極めて特殊であり市販されていないので、信頼性の高い塩素ランプを製作する。寿命が長くて共鳴線の強度が強く、また蛍光検出の妨害となる光が弱い塩素ランプを製作する。
- ・共鳴蛍光の検出装置を開発する。真空紫外領域の発光を高感度で検知する光電子増倍管を用いた光子

計数システムを製作する。

- ・塩素ガス (Cl₂) を熱分解して塩素原子を発生させて、吸収と発光を同時に観測することにより、製作した共鳴蛍光測定システムの感度の校正を行う。
- ・NOを添加することにより ClO を Cl に変換するガス混合システムを製作する。その変換効率を高めるため、ミキシングの方法や混合圧力条件などの検討を行う。
- ・実際に気球で使用する一酸化塩素 ClO 測定装置のプロトタイプ的设计および製作を行い、さらにそれを用いた動作試験を行う。

(4) 実験結果

塩素原子の励起源に用いた 118.9 nm を出す塩素ランプは市販されていないので開発、自作した。これは封じ切り型のランプで、放電維持用ガスにヘリウムガスを 4 Torr 封入し、145 MHz のラジオ波によって励起している。ランプの本体はガラス管でできており、長さ 150 mm 程度のものである。ランプの枝管には塩化白金を封入し、ヒーターでそこを加熱することによりランプの塩素源とした。また、別の枝管にはバックグラウンド信号の原因となる不純物を除去するためのゲッターとしてバリウムを封入した。ランプの窓には真空紫外域の光を透過する MgF₂ の窓を接着剤で張り付けて使用した。実験中ランプを点灯する際はプラズマが窓に接するようにしてランプ内の塩素原子による 118.9 nm の自己吸収をできるだけ抑えた。このランプの寿命はだいたい一週間程度で、バルーンや航空機測定の期間中には充分強度を維持できる。ランプからの散乱光を抑えるためにアパーチャーやライトトラップを設置している。光学窓にはすべて真空紫外光を透過するよう MgF₂ 窓を用いている。ランプの強度は塩化白金部の温度にかなり依存する。ランプの後方で塩素の励起状態間の発光による赤外光 (839 nm) の強度をモニターした。その強度は 118.9 nm の強度にほぼ比例するので、塩化白金部のヒーターの温度にフィードバックをかけランプ強度の調節、安定化を図った。

実験室内での較正実験では ClO を生成する化学反応系の装置を使用した。ClO は反応活性種で保存できないので、以下のような方法で実験系の中でその場で生成させることにより装置の感度の較正実験を行った。装置内の流速と低圧条件を確保するために反応管をポンプで引きながら実験した。今回の実験ではキャリアーガスとして 1-2 Torr の Ar ガスを使用した。また、流速は約 30 m/s で実験した。まず、塩素分子 (Cl₂) を流してタングステンフィラメントにより熱分解し、塩素原子を発生させる。



そこへオゾンを追加して反応 (5) により ClO を生成させる。



このように生成させた ClO に一酸化窒素を注入し反応 (1) を起こし、塩素原子を生成する。そして測定チャンバー部分でランプからの 118.9 nm の光をあて、ランプの垂直方向に設置されている光電子増倍管によって塩素の共鳴蛍光を観測した。同時にランプの正面方向に設置されているもう一つの光電子増倍管で観測領域の透過光をモノクロメーターを通して観測し、118.9 nm の塩素原子による吸収を測定した。118.9 nm の波長での塩素原子の吸光断面積はわかっているので、吸収割合から塩素原子の絶対濃度が求められた。それを蛍光強度と比較することで ClO 濃度を求める際の較正係数が得られた。NO を添加して ClO を Cl に変換するシステムの最適化を行った。加える NO の濃度や流れの中での注入場所に

ついて検討を行った。さらに反応管の壁で塩素原子が消失することを防ぐために、流速やミキシングの方法を検討した。また、正確な ClO 濃度を計測するためには一酸化窒素添加後の塩素原子への変換効率を知る必要がある。生成した塩素原子は途中の経路で他の物質や壁などと反応したりして損失していることが考えられる。そこで一酸化窒素注入点の位置を変えて反応時間を変えたり、反応管内の反応物質の濃度を変えてみて実験し、計算シミュレーションの値と比べて検討した。

原理実証試験に成功したので、気球搭載用の ClO 測定装置のプロトタイプ的设计および製作を行った。塩素ランプおよびその励起 RF 電源は压力容器の中に収まるようにした。成層圏で外気が低圧になっても压力容器の内部は 1 気圧に保たれる。RF 電源付近で不要な放電が起らないようにするとともにランプの放熱のためである。蛍光検出の光電子増倍管およびその高圧電源も 1 気圧に保持する压力容器に収まるようにした。压力容器を小さくするために、ランプ関係および蛍光検出関係の装置のコンパクト化を行った。製作したプロトタイプ装置を用いて動作試験を行った。その結果、プロトタイプ装置が十分な性能で動作することがわかった。

(5) 考察

塩素原子の蛍光強度の毎秒あたりの光子数を縦軸にとり、吸収から求めたそのときの塩素原子濃度を横軸にとったグラフの傾きより、開発した ClO 測定装置の感度係数は $1 \times 10^{-6} \text{ (count s}^{-1}) / (\text{atom cm}^{-3})$ という値が得られた。ただし、塩素原子の吸収割合から濃度を求めるには 1 % 以上の吸収がないと難しいので、この較正では実際の成層圏での測定条件より 100 倍以上の濃度のところで較正を行っている。蛍光セル内壁での散乱光などによるバックグラウンドのカウント数は 10~100 count/s 程度である。得られた感度は塩素原子濃度 $1 \times 10^6 \text{ atom cm}^{-3}$ のとき 1 秒あたり 1 カウントの信号に相当する。実際の測定では一回の測定に数十秒間積算したデータを使用する。そのため ClO の塩素原子への変換効率やランプ強度の不安定さやバックグラウンドのノイズを考慮しても ClO 濃度 $10^6 \text{ molecules cm}^{-3}$ 程度までが測定可能である。すなわち成層圏での実測にこの装置は十分使用可能であることを実証した。

反応 (1) で ClO に NO を添加して Cl に変換すると、反応管内で比較的早く Cl が消失することが観測された。Cl の濃度とこの消失速度の関係から、Cl 濃度の一次に比例することがわかった。これは、反応管内で塩素原子の再結合が起こっているのではなく、塩素原子が反応管の表面に衝突すると消失することを意味する。この塩素原子の消失は結果的に ClO の検出感度を下げることにつながるので、塩素原子の消失を押さえる必要がある。そのためには、NO ガス注入点をできるだけ蛍光観測地点に近づけるか、反応管内の流速を上げる必要がある。また同時に注入した NO ガスが十分に混合して ClO と反応する必要がある。NO の注入場所や NO 注入装置の形状をいろいろ試験し、さらに流速の最適化を行った。その結果、ClO から Cl に変換して検出する効率を 70 % 以上にすることができた。

共鳴蛍光の励起源である塩素ランプに寿命がある。ランプに封じ込めてある塩化白金からの塩素の供給量が寿命を決定しているのではなく、光を取り出す MgF₂ 窓の内面が汚れて真空紫外光を透過しなくなるためと思われる。この汚れの原因として、1) RF プラズマが窓の接着剤に触れて不純物を生成し、それが窓内面に付着すること、2) RF プラズマにより生成した塩素原子がパイレックスガラスの内面をエッチングしその生成物が窓内面に付着すること、が考えられる。数十個のランプをテストした結果、

1) と 2) の原因の両方が関与していると推測された。

4.6 その他

スウェーデン・キルナ (Kiruna; 68N, 21E) でのスウェーデン宇宙物理研究所 (IRF) において、1996 年 3 月からフーリエ変換型赤外分光計 (FTS: Fourier Transform Infrared Spectrometer; FTIRともいう)、1995 年 12 月から可視分光観計を用いた観測を行っている。両観測器による観測データは滞りなく順調に集積された。キルナにおける FTS 観測データの予備的な解析を行い、データの処理解析上の問題点およびそれらの解決に向けての検討を行った。共同研究者である IRF およびドイツの IMK のグループとの間で、キルナにおける赤外吸収スペクトルから気柱全量を導出するためのアルゴリズムの違いを検討した。それぞれの方法で、同じ太陽赤外スペクトルを解析したところ、O₃, HCl, HF, HNO₃ の各成分の気柱全量は 2 % 以内で一致した。また、対流圏水蒸気に影響を受けやすい HF, ClONO₂ 等は、実測の水蒸気観測データを用いる必要があることがわかった。ハロゲンの収支、輸送を調べるときに役に立つ成分である COF₂ について新たに気柱全量を導いた。さらに、赤外吸収スペクトルから高度分布を導くアルゴリズムを開発し、その方法をシアン化水素 (HCN) に適用した。また、この FTS の HNO₃ データは、ILAS HNO₃ の検証としても有用なデータとなった。

昭和基地 (Syowa; 69S, 40E) で行われてきているオゾンゾンデの定常観測に加えて、オゾンゾンデ観測を行い、オゾンホール消滅期間、夏季の静かな期間、極渦が発達する期間のオゾンの鉛直プロファイルのデータを得た。さらに、キルナでのオゾンゾンデ観測とともに、ILAS O₃ データの検証にも非常に有用なデータを得た (Sasano et al., 1999c)。

アライバルハイト (Arrival Heights; 78S, 167E)、昭和基地での可視分光計を用いた O₃ および NO₂ の観測が継続され、経年変化の基礎データを得た。また、ILAS NO₂ の検証としても有用なデータとなった。アライバルハイトでは、FTS の継続観測も行われた。

5. 本研究により得られた成果・まとめ

(1) ILAS およびオゾンゾンデデータの解析から、1996/1997 年北半球冬の極渦内における化学過程によるオゾン破壊量を推定した。また、PSC による脱窒過程が生じ、それに対応して、極渦内の O₃ 破壊が起こったことも示唆された。

(2) 北極域での 1996/1997 年冬および他の冬の気球による総反応性窒素酸化物 (NO_y) と亜酸化窒素 (N₂O) の観測データの解析から脱窒および混合過程の考察を行った。

(3) 北極域冬季のライダー観測から PSC の特徴的な鉛直構造、サンドイッチ構造を見だし、その成因に関する考察を行った。

(4) 北極域冬季から春季のレーザーヘテロダイン分光計を用いたオゾン (O₃)、亜酸化窒素 (N₂O) の観測から、オゾン破壊量の見積もりを試みた。

(5) 気球および航空機搭載用一酸化塩素 (ClO) 測定器の開発を行い、プロトタイプモデルの制作を行った。

(6) その他、ILAS を中心として、ILAS に呼応した南北領域でのさまざまな観測が行われ、貴重なデータを得た。

(7) ILAS データ処理アルゴリズムも現在改訂中であり、改良された ILAS データと他のデータを組み合わせた解析が期待される。特に、ILAS が観測した 1996 年南極オゾンホール崩壊過程の詳細な研究が望まれる。

6. 参考文献

- Abrams, M.C., et al., Trace gas transport in the Arctic vortex inferred from ATMOS ATLAS-2 observations during April 1993, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2341-2344, 1996.
- Anthony, S. E., R. T. Tisdale, R. S. Disselkamp, M. A. Tolbert, and J. C. Wilson, FTIR studies of low temperature sulfuric acid aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1105-1108, 1995.
- Bauer, R., A. Engel, H. Franken, E. Klein, G. Kulesa, C. Schiller, U. Schmidt, R. Borchers, and J. Lee, Monitoring the vertical structure of the Arctic polar vortex over northern Scandinavia during EASOE: Regular N₂O profile observations, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1211-1214, 1994.
- Bowman, K.P., Large-scale isentropic mixing properties of the Antarctic polar vortex from analyzed winds, *J. Geophys. Res.*, 98, 23013-23027, 1993.
- Carlsaw, K. S., B. S. Luo, S. L. Clegg, Th. Peter, P. Brimblecombe, and P. J. Crutzen, Stratospheric aerosol growth and HNO₃ gas phase depletion from coupled HNO₃ and water uptake by liquid particles, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2479-2482, 1994.
- Carlsaw, K. S., T. Peter, and S. L. Clegg, Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols, *Rev. Geophys.*, 35, 125-154, 1997.
- Chen, P., J.R. Holton, A. O'Neill, and R. Swinbank, Quasi-horizontal transport and mixing in the Antarctic stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 99, 16851-16866, 1994.
- Coy, L., E.R. Nash, and P.A. Newman, Meteorology of the polar vortex: Spring 1997, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2693-2696, 1997.
- Dahlberg, S.P., and K.P. Bowman, Climatology of large-scale isentropic mixing in the Arctic winter stratosphere from analyzed winds, *J. Geophys. Res.*, 99, 20585-20599, 1994.
- Dye, J. E., D. Baumgardner, B. W. Gandrud, S. R. Kawa, K. K. Kelly, M. Loewenstein, G. V. Ferry, and B. L. Gray, Particle size distributions in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation, *J. Geophys. Res.*, 97, 8015-8034, 1992.
- Fahey, D. W., K. K. Kelly, S. R. Kawa, A. F. Tuck, M. Loewenstein, K. R. Chan, and L. E. Heidt, Observations of denitrification and dehydration in the winter polar stratospheres, *Nature*, 344, 321-324, 1990a.
- Fahey, D. W., S. Solomon, S. R. Kawa, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan, and K. R. Chan, A diagnostic for denitrification in the winter polar stratospheres, *Nature*, 345, 698-702, 1990b.
- Hanson, D., and K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-858, 1988.
- Kanzawa, H., C. Camy-Peyret, Y. Kondo and N. Papineau, Implementation and first scientific results of the ILAS Validation Balloon Campaign at Kiruna-Esrange in February - March 1997, *Proc. 13th ESA Symp. European Rocket and Balloon Programmes and Related Research*, ESA SP-397, 211-215, 1997.
- Knudsen, B.M., Accuracy of arctic stratospheric temperature analyses and the implications for the prediction of polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 3747-3750, 1996.
- Knudsen, B. M., N. Larsen, I. S. Mikkelsen, J. J. Morcrette, G. O. Braathen, E. Kyro, H. Fast, H. Gernandt, H. Kanzawa, H. Nakane, V. Dorokhov, V. Yushkov, G. Hansen, M. Gil and R. J. Shearman, Ozone depletion in

- and below the Arctic vortex for 1997, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 627-630, 1998.
- Kondo, Y., U. Schmidt, T. Sugita, P. Amedieu, M. Koike, H. Ziereis, and Y. Iwasaka, Total reactive nitrogen, N₂O, and ozone in the winter Arctic stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1247-1250, 1994.
- Kondo, Y., Koike, M., Engel, A., Schmidt, U., Mueller, M., Sugita, T., Kanzawa, H., Nakazawa, T., Aoki, S., Irie, H., Toriyama, N., Suzuki, T., and Sasano, Y., NO_y-N₂O correlation observed inside the Arctic vortex in February 1997: Dynamical and chemical effects, *J. Geophys. Res.*, 104, 8215-8224, 1999.
- Kreher, K., G. E. Bodeker, H. Kanzawa, H. Nakane, and Y. Sasano, Ozone and temperature profiles measured above Kiruna inside, at the edge of, and outside the Arctic polar vortex in February and March 1997, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 715-718, 1999.
- Loewenstein, M., Podolske, J.R., Fahey, D.W., Woodbridge, E.L., Tin, P., Weaver, A., Newman, P.A., Strahan, S.E., Kawa, S.R., Schoeberl, M.R., and Lait, L.R., New observations of the NO_y/N₂O correlation in the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 2531-2534, 1993.
- Manney, G.L., Zurek, R.W., O'Neill, A., and Swinbank, R., On the motion of air through the stratospheric polar vortex, *J. Atmos. Sci.*, 51, No. 20, 2973-2994, 1994.
- Manney, G. L., L. Froidevaux, M. L. Santee, R. W. Zurek and J. W. Eaters, MLS observations of Arctic ozone loss in 1996-97, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2697-2700, 1997.
- Muller, R. and T. Peter, The numerical modeling of the sedimentation of polar stratospheric cloud particles, *Ber. Bunsen. Ges. Phys. Chem.*, 96, 353-361, 1992.
- Murata, I., N. Fukuma, Y. Ohtaki, H. Fukunishi, H. Kanzawa, H. Nakane, and K. Shibasaki, Measurements of O₃ and N₂O in Alaska with a tunable diode laser heterodyne spectrometer, *Adv. Space Res.*, in press, 1999.
- Nash, E. R., P. A. Newman, J. E. Rosenfeld and M. R. Schoeberl, An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *J. Geophys. Res.*, 101, 9471-9478, 1996.
- Naujokat, B., and S. Pawson, The unusually cold, persistent vortex in spring 1997, *Polar Stratospheric Ozone 1997*, *Air Pollut. Res. Rep.* 66, pp. 50-53, *Eur. Comm.*, Brussels, 1998.
- Newman, P. A., J. F. Gleason, R. D. McPeters and R. S. Stolarski, Anomalous low ozone over the Arctic, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2689-2692, 1997.
- Portman, R. W., S. Solomon, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole, and M. P. McCormick, Role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion in the polar regions, *J. Geophys. Res.*, 101, 22991-23006, 1996.
- Rex, M., N. R. P. Harris, P. von der Gathen, R. Lehmann, G. O. Braathen, E. Reimer, A. Beck, M. P. Chipperfeld, R. Aler, M. Allaart, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, M. Gil, E. Kyro, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. G. Molyneux, H. Nakane, J. Notholt, M. Rummukainen, P. Viatte and J. Wenger, Prolonged stratospheric ozone loss in the 1995-96 Arctic winter, *Nature*, 389, 835-838, 1997.
- Rex, M., P. von der Gathen, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, S. J. Reid, H. De Backer, H. Claude, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyro, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, H. G. Smit, J. Sttachelin, C. Varotsos and I. Zaitcev, In-situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/92: A Lagrangian approach, *J. Geophys. Res.*, 103, 5843-5853, 1998.
- Rex, M., P. von der Gathen, G. O. Braathen, N. R. P. Harris, E. Reimer, A. Beck, M. Chipperfield, R. Aler, R. Kruger-Carstensen, H. De Backer, D. Balis, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, A. Gamma, M. Gil, E. Kyro, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. Molyneux, G. Murphy, S. J. Reid, M. Rummukainen and C. Zerefos, Chemical ozone loss in the Arctic winter 1994/95 as determined by the Match technique, *J. Atmos. Chem.*, in press, 1999.
- Sasano, Y., M. Suzuki, T. Yokota and H. Kanzawa, Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) for stratospheric ozone layer measurements by solar occultation technique, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 197-200, 1999a.
- Sasano, Y., Y. Terao, H. L. Tanaka, T. Yasunari, H. Kanzawa, H. Nakajima, T. Yokota, H. Nakane, S. Hayashida, and N. Saitoh, ILAS observations of chemical ozone loss in the Arctic stratospheric vortex during early spring 1997, *Geophys. Res. Lett.*, submitted, 1999b.
- Sasano, Y., H. Nakajima, H. Kanzawa, M. Suzuki, T. Yokota, H. Nakane, H. Gernandt, V. Yushkov, V. Dorokhov, T. Deshler, Validation of ILAS Version 3.10 ozone with ozonesonde measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 831-834, 1999c.

- Schoeberl, M.R., L.R. Lait, P.A. Newman, and J.E. Rosenfield, The structure of the polar vortex, *J. Geophys. Res.*, 97, 7859-7882, 1992.
- Shibata, T., Y. Iwasaka, M. Fujiwara, M. Hayashi, M. Nagatani, K. Shiraishi, H. Adachi, T. Sakai, K. Susumu, and Y. Nakura, Polar stratospheric clouds observed by lidar over Spitsbergen in the winter of 1994/1995: Liquid particles and vertical "sandwich" structure, *J. Geophys. Res.*, 102, 10829-10840, 1997.
- Strahan, S.E., and J.D. Mahlman, Evaluation of the SKYHI general circulation model using aircraft N₂O measurements 1. Polar winter stratospheric meteorology and tracer morphology, *J. Geophys. Res.*, 99, 10305-10318, 1994.
- Sugita, T., Y. Kondo, H. Nakajima, U. Schmidt, A. Engel, H. Oelhaf, G. Wetzell, and P.A. Newman, Denitrification observed inside the Arctic vortex in February 1995, *J. Geophys. Res.*, 103, 16221-16233, 1998.
- Swinbank, R. and A. O'Neill, A stratosphere-troposphere data assimilation system, *Mon. Weather Rev.*, 122, 1560-1570, 1994.
- von der Gathen, P., M. Rex, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, H. De Backer, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyro, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, J. Stahelin and C. Varotsos, Observational evidence for chemical ozone depletion over the Arctic in the winter 1991-92. *Nature*, 375, 131-134, 1995.
- Waugh, D.W., Plumb, R.A., Atkinson, R.J., Schoeberl, M.R., Lait, L.R., Newman, P.A., Loewenstein, M., Toohey, D.W., Avallone, L.M., Webster, C.R., and May, R.D., Transport out of the lower stratospheric Arctic vortex by Rossby wave breaking, *J. Geophys. Res.*, 99, 1071-1088, 1994.
- Waugh, D.W. et al., Mixing of polar vortex air into middle latitudes as revealed by tracer-tracer scatterplots, *J. Geophys. Res.*, 102, 13119-13134, 1997.

[国際共同研究等の状況]

WCRPプログラムのひとつである成層圏・気候影響研究計画 (SPARC; Stratospheric Processes and their Role in Climate) への日本からの貢献のうちの大きな部分を、本研究は占めている。また、本研究の一部の観測は、成層圏変動観測網 (NDSC; Network for the Detection of Stratospheric Change) プログラムの一環として行われている。なお、本研究観測は、北極域および南極域で実施されているが、それぞれの観測は、現地での観測担当機関あるいは研究者（スウェーデンの宇宙公社エスレンジ観測所、宇宙科学研究所、フランス国立宇宙研究センター、アラスカ大学地球物理研究所、アルフレッドウェーゲナー極地海洋研究所、等）との共同研究によって実施されている。また、CIO 計測装置の開発にあたっては、米国カリフォルニア大学アーバイン校、米国商務省大気海洋局大気研究所の研究者と連絡をとりながら装置の開発および大気中の CIO に関連する化学反応とくに不均一反応の解析を行っている。

[研究成果の発表状況]

(1) 口頭発表 (約 70 件; 主なもの 11 件を以下に記載)

岩坂泰信・柴田隆・権成顔・足立宏・酒井哲・藤原玄夫・R. Neuber・H. Gernandt (1997): 北極エアロゾルのタイプ分類とタイプ間の関係. 日本気象学会1997年秋季大会, 札幌.

- 櫃田佳波・松見豊・近藤豊 (1998): 成層圏CIO計測装置の開発: 原理実証及び感度試験. 地球電磁気・地球惑星圏学会第104回総会・講演会, 水戸.
- Hitsuda, K., N. Toriyama, Y. Matsumi, Y. Kondo (1999): Development of a balloon-borne in-situ CIO measurement system. International Workshop on Submillimeter-wave Observation of Earth's Atmosphere from Space. Tokyo.
- Kanzawa, H., Sasano, Y., Suzuki, M., and Yokota, T. (1997): Dynamics and chemistry of the polar ozone layer observed by ADEOS/ILAS: Initial results. 10th Conference on the Middle Atmosphere, Tacoma, U. S. A.
- 近藤豊・小池真 (1997): 成層圏対流圏大気化学. 日本気象学会 1997 年春季大会, つくば.
- Murata, I., Fukuma, N., Ohtaki, Y., Fukunishi, H., Kanzawa, H., and Shibasaki, K. (1998): Measurements of O₃, N₂O, and CH₄ in Alaska with a tunable diode laser heterodyne spectrometer. 32nd COSPAR Scientific Assembly, Nagoya, Japan.
- 中島英彰・近藤豊・趙永浄・笹野泰弘・神沢博・横田達也・鈴木睦・Meier, A.・Blumenstock, T. (1997): キルナにおけるFTIR観測による成層圏O₃鉛直分布とILAS観測との比較. 日本気象学会1997 年秋大会, 札幌.
- 中島英彰・笹野泰弘・中根英昭・神沢博・二宮真理子 (1999): ILASで観測された1996/97冬～春期極渦内外でのオゾンの減少について. 日本気象学会 1999 年春季大会, 東京.
- 柴田隆・足立宏・岩坂泰信・藤原玄夫・白石浩一 (1997): 液滴核成層圏雲の生成と温度変化の関係. 第14回エアロゾル科学・技術研究討論会.
- 寺尾有希夫・田中博・安成哲三・笹野泰弘 (1999): ILASデータによる1996/1997年冬期北極域の成層圏オゾン減少の評価. 日本気象学会 1998 年春季大会, 東京.
- 渡辺征春・柴田隆・足立宏・岩坂泰信・林政彦・土屋正義 (1999): ピナツボ火山噴火以後の成層圏エアロゾル層: 北極OPC観測と1次元モデルとの比較. 日本気象学会 1998 年春季大会, 東京.

(2) 論文発表 (35件; ○印は査読誌20件)

- Bodeker, G.E., Nakajima, H., Koike, M., Kondo, Y., Kreher, K., Suzuki, M., Yokota, T., Kanzawa, H., and Sasano, Y. (1998): Nitric acid profile measurements by ILAS during the Arctic winter of 1996/97. Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997 (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997), Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 415-418.
- Hauchecorne, A., Fierli, F., and Kanzawa, H. (1998): Validation of ILAS data on polar stratospheric clouds using RMR ALOMAR lidar. Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997 (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997), Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 665-668.
- Hayashi, M., Y. Iwasaka, M. Watanabe, T. Shibata, M. Fujiwara, H. Adachi, T. Sakai, M. Nagatani, H. Gernandt, R. Neuber, and M. Tuchiya (1998): Size and number concentration of liquid PSCs: Balloon-borne measurements at Ny-Alesund, Norway in winter of 1994/95, J. Meteorol. Soc. Japan, 76, 549-560.
- Iwasaka, Y., T. Shibata, H. Adachi, T. Ojio, M. Fujiwara, K. Shiraishi, K. Miyagawa-Kondoh, and H. Nakane (1996): Polar vortex meandering and stratospheric aerosol distribution: Lidar measurements at Fairbanks, Alaska, J. Geomag. Geoelectr., 48, 1157-1167.
- Iwasaka, Y., T. Shibata, S.-A. Kwon, and H. Adachi (1998): Types of polar stratospheric cloud particles measured with lidar at Ny-Alesund, Norway in winter of 1994/1995: Discriminant analysis of lidar returns, J. Aerosol Sci., 29, s663-s664.
- Kanzawa, H. (1999): Validation experiment activities in ILAS and ILAS-II. Proc. International Workshop on Submillimeter-wave Observation of Earth's Atmosphere from Space. (Tokyo, 27-29 January 1999), 199-205.
- Kanzawa, H., Camy-Peyret, C., Kondo, Y., and Papineau, N. (1997): Implementation and first scientific results of the ILAS Validation Balloon Campaign at Kiruna-Esrange in February - March 1997. Proc. 13th ESA Symp. European Rocket and Balloon Programmes and Related Research (Oland, Sweden, 26-29 May 1997), ESA SP-397 (September 1997), 211-215.
- Kanzawa, H., Shiotani, M., Suzuki, M., Yokota, T., and Sasano, Y. (1997): Structure of the polar vortex of the

- Northern Hemisphere winter of 1996/1997 as observed from long-lived tracer data of ILAS. *Proc. Tsukuba International Workshop on Stratospheric Change and Its Role in Climate and on the ATMOS-C1 Satellite Mission* (Tsukuba, 20-22 October 1997), 158-162.
- Kanzawa, H., Suzuki, M., Yokota, T., and Sasano, Y. (1998): Behavior of the polar vortex of the northern hemisphere winter of 1996/1997 as observed from ILAS. *Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997* (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997), Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 459-462.
- 神沢博 (1998): 衛星センサーILASによる北極成層圏の観測 (日本気象学会1997年度秋季大会シンポジウム「北極圏の大気循環と物質循環」の報告4). *天気*, 45, No.10, 770-772.
- 神沢博 (1998): オゾンホール. *流体力学ハンドブック* (1294 pp.), 項目 27-7-1, 日本流体力学会編, 丸善, 1161-1162.
- 神沢博 (1999): オゾンホールの力学. *ながれ* (日本流体力学会誌), 18, No.3, 147-155.
- Knudsen, B.M., Larsen, N., Mikkelsen, I.S., Morcrette, J.-J., Braathen, G.O., Kyro, E., Fast, H., Gernandt, H., Kanzawa, H., Nakane, H., Dorokhov, V., Yushkov, V., Hansen, G., Gil, M., and Shearman, R.J. (1998): Ozone depletion in and below the Arctic vortex for 1997. *Geophys. Res. Lett.*, 25, No.5, 627-630.
- Knudsen, B.M., Larsen, N., Mikkelsen, I.S., Morcrette, J.-J., Braathen, G.O., Kyro, E., Fast, H., Gernandt, H., Kanzawa, H., Nakane, H., Dorokhov, V., Yushkov, V., Hansen, G., Gil, M., and Shearman, R.J. (1998): Ozone depletion in and below the Arctic vortex in 1997. *Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997* (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997), Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 289-292.
- Koike, M., Kondo, Y., Irie, H., Murcray, F. J., Williams, J., Fogal, P., Blatherwick, R., Camy-Payret, C., Payan, S., Oelhaf, H., Wetzol, G., Traub, W., Johnson, D., Jucks, K., Toon, C. G., Sen, B., Blavier, J.-F., Schlager, H., Ziereis, H., Toriyama, N., Danilin, M. Y., Rodriguez, J. M., Kanzawa, H., and Sasano, Y. (1999): A comparison of Arctic HNO₃ profiles measured by ILAS and balloon-borne sensors. *J. Geophys. Res.*, submitted.
- Kondo, Y., Koike, M., Engel, A., Schmidt, U., Mueller, M., Sugita, T., Kanzawa, H., Nakazawa, T., Aoki, S., Irie, H., Toriyama, N., Suzuki, T., and Sasano, Y., (1999): NO_y-N₂O correlation observed inside the Arctic vortex in February 1997: Dynamical and chemical effects. *J. Geophys. Res.*, 104, No. D7, 8215-8224.
- Kreher, K., Bodeker, G.E., Kanzawa, H., Nakane, H., and Sasano, Y. (1999): Ozone and temperature profiles measured above Kiruna inside, at the edge of, and outside the Arctic polar vortex in February and March 1997. *Geophys. Res. Lett.*, 26, No. 6, 715-718.
- Kreher, K., Kanzawa, H., Nakane, H., Suzuki, M., Yokota, T., Sasano, Y., and Bodeker, G.E. (1998): Arctic ozone depletion from February to April 1997 as seen by ozonesondes and ILAS above Kiruna. *Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997* (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997), Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 293-296.
- Murata, I., N. Fukuma, Y. Ohtaki, H. Fukunishi, H. Kanzawa, H. Nakane, and K. Shibasaki (1999): Measurements of O₃ and N₂O in Alaska with a tunable diode laser heterodyne spectrometer. *Adv. Space Res.*, in press.
- Nakajima, H., X. Liu, I. Murata, Y. Kondo, F. J. Murcray, M. Koike, Y. Zhao, and H. Nakane (1997): Retrieval of vertical profiles of ozone from high-resolution infrared solar spectra at Rikubetsu, Japan. *J. Geophys. Res.*, 102, 29981-29990.
- Oelhaf, H., Wetzol, G., Stowasser, M., Friedl-Vallon, F., Kleinert, A., Kouker, W., Maucher, G., Seefeldner, M., Trieschmann, O., Fischer, H., Suzuki, M., Yokota, T., Kanzawa, H., and Sasano, Y. (1998): Intercomparison of ILAS target species with vertical profiles obtained by MIPAS-B in late March 1997 near the northern polar circle. *Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997* (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997), Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 716-719.
- Payan, S., Camy-Peyret, C., Jeseck, P., Hawat, T., Pirre, M., Renard, J.-B., Robert, C., Lefevre, F., Kanzawa,

- H., and Sasano, Y. (1999): Diurnal and nocturnal distribution of stratospheric NO₂ from solar and stellar occultation measurements in the Arctic vortex : comparison with models and ILAS satellite measurements. *J. Geophys. Res.*, accepted for publication.
- Sasano, Y., Kanzawa, H., Suzuki, M., and Yokota, T. (1997): Preliminary results of ILAS (Improved Limb Atmospheric Spectrometer) measurements for stratospheric ozone layer. *Proc. First SPARC General Assembly (Melbourne, Australia, 2-6 December 1996)*, Vol. 1, WMO/TD-NO. 814, 255-258.
- Sasano, Y., Kanzawa, H., Yokota, T., and Suzuki, M. (1998): Overview of ILAS measurements for the northern high latitude stratosphere in 1996/1997 winter. *Air Pollution Report 66: Polar Stratospheric Ozone 1997 (Proc. Fourth European Symp., Schliersee, Bavaria, Germany, 22-26 September 1997)*, Harris, N.R.P., Kilbane-Dawe, I., Amanatidis, G.T., Eds., Luxembourg (Office for Official Publications of the European Communities), 486-488.
- Sasano, Y., Nakajima, H., Kanzawa, H., Suzuki, M., Yokota, T., Nakane, H., Gernandt, H., Schmidt, A., Herber, A., Yushkov, V., Dorokhov, V., and Deshler, T. (1999): Validation of ILAS Version 3.10 ozone with ozonesonde measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 26, No. 7, 831-834.
- Sasano, Y., Suzuki, M., Yokota, T., and Kanzawa, H. (1997): Early results from Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) measurements. *Geocarto International*, Vol. 12, No. 4 (December 1997), 61-68.
- Sasano, Y., Suzuki, M., Yokota, T., and Kanzawa, H. (1999): Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) for stratospheric ozone layer measurements by solar occultation technique. *Geophys. Res. Lett.*, 26, No.2, 197-200.
- Sasano, Y., Suzuki, M., Yokota, T., and Kanzawa, H. (1999): ILAS for stratospheric ozone layer monitoring: Outline of data processing (Version 3.00 and 3.10) and validation experiments. *IEEE Transactions Geoscience Remote Sensing*, Vol 37, No. 3, 1508-1516.
- Sasano, Y., Suzuki, M., Yokota, T., Kanzawa, H., Nakajima, H., Nakane, H., Shiotani, M., Kondo, Y., and Hayashida, S. (1998): Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS): Validation and preliminary scientific results. *Proc. SPIE Vol. 3501, 61-71. Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds*, Beijing, China, 15-17 September 1998.
- Sasano, Y., Y. Terao, H. L. Tanaka, T. Yasunari, H. Kanzawa, H. Nakajima, T. Yokota, H. Nakane, S. Hayashida, and N. Saitoh (1999): ILAS observations of chemical ozone loss in the Arctic stratospheric vortex during early spring 1997. *Geophys. Res. Lett.*, submitted.
- 笹野泰弘・鈴木睦・横田達也・神沢博 (1997): 改良型大気周縁赤外分光計(ILAS)による成層圏オゾン層観測「初期解析結果」. *日本リモートセンシング学会誌*, Vol. 17, No. 5, 101-107.
- Shibata, T., Y. Iwasaka, M. Fujiwara, M. Hayashi, K. Shiraishi, H. Adachi, T. Sakai, K. Susumu, Y. Nakura, and M. Watanabe (1996): Lidar observed polar stratospheric clouds over Svalbard in mid-December, 1994, *Mem. Natl Inst. Polar Res., Spec. Issue*, 51, 217-223.
- Shibata, T., Y. Iwasaka, M. Fujiwara, M. Hayashi, M. Nagatani, K. Shiraishi, H. Adachi, T. Sakai, K. Susumu, and Y. Nakura (1997): Polar stratospheric clouds observed by lidar over Spitsbergen in the winter of 1994/1995: Liquid particles and vertical "sandwich" structure, *J. Geophys. Res.*, 102, 10829-10840.
- Sugita, T., Y. Kondo, H. Nakajima, U. Schmidt, A. Engel, H. Oelhaf, G. Wetzol, and P.A. Newman (1998): Denitrification observed inside the Arctic vortex in February 1995, *J. Geophys. Res.*, 103, 16221-16233.
- Watanabe, M., Y. Iwasaka, M. Hayashi, M. Nagatani, H. Nakada, H. Adachi, M. Fujiwara, H. Gernandt, and R. Neuber (1997): Distribution of particulate sulfur in the winter Arctic stratosphere: Balloon-borne measurements of particle number concentration, *Proc. NIPR Symp. Polar Meteorol. Glaciol.*, 11, 138-149.

(3) 出願特許、受賞等

神沢博：日本気象学会 1997 年度堀内基金奨励賞受賞 (地球環境観測衛星「みどり」の ILAS (改良型大気周縁赤外分光計) ミッションにおける検証評価実験の推進), 1997 (平成 9) 年 10 月.