

- 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
 (2) 極域・中緯度域相互作用とオゾン層変動に関する研究
 ① 東シベリア及び日本における地上からの観測によるオゾン層変動の解明

研究代表者

国立環境研究所 大気圏環境部上席研究官
 中根 英昭

環境庁 国立環境研究所

大気圏環境部	上席研究官	中根 英昭
	高層大気研究室	杉本 伸夫、松井 一郎
地球環境研究グループ	オゾン層研究チーム	秋吉 英治
	衛星観測研究チーム	中島 英彰
科学技術庁特別研究員		長浜 智生
(委託先)	東北大学大学院理学研究科	福西 浩、村田 功
	名古屋大学	
	太陽地球環境研究所	小池 真、近藤 豊
	名古屋大学大学院理学研究科	小川 英夫

平成8-10年度合計予算額 186,576千円
 (10年度当初予算額 63,492千円)

[要旨] 北半球冬・春季の極渦内では1995年以降3年間にわたって低温傾向が続き、南極オゾンホールと同様な機構のオゾン層破壊が明瞭に観測された。中緯度のオゾン減少トレンドと極域オゾン層破壊の関連を明らかにするためには、極渦内のオゾン減少の把握、中緯度地域が極渦の影響を受ける頻度と程度、極渦の影響とオゾン及びオゾン破壊関連物質の関係、を明らかにする必要がある。本研究においては、東シベリアのヤクーツクにおけるオゾンゾンデ観測、欧州との共同研究であるオゾンゾンデMatch等によって極渦内のオゾン層破壊を明らかにすると共に、北海道の母子里や陸別におけるオゾンゾンデ観測、地上からの遠隔計測によって極渦が中緯度に南下した際のオゾン及びオゾン層破壊関連物質の挙動を観測した。極渦に関する情報については、欧州中期予報センター(ECMWF)客観解析データ等を用いた解析によって明らかにした。特に、1996年4月中旬-下旬のケースでは、極渦の到来をECMWFの予報データに基づいて予測した上で、母子里のオゾンゾンデ観測と陸別のFTIRによる赤外分光観測を重点的に行った。その結果、北海道上空に極渦が到来した時にはオゾンが最大50%から60%減少していることを明らかにした。この時、HClはHFや(HCl+ClONO₂)と比較して相対的に減少しており、オゾン減少が見られた気塊中は極域成層圏雲(PSC)による不均一反応の影響を受けていることが明らかになった。また、更に観測事実を積み上げるために必要な測器(ミリ波オゾン分光計、気温観測用レーザーレーダー、シベリア配

備用FTIR)の整備を行った。

[キーワード] 北極域オゾン層破壊、極渦、PSC、不均一反応、渦位解析、FTIR、可視分光計、ミリ波分光計、レーザーレーダー、オゾンゾンデ

1. 序

1990年代に入って、北半球の極渦が強くなり、極渦内の気温の低下が著しくなった。このような極渦内のオゾン層破壊が中緯度にどのような影響を与えているのかを解明することが本サブテーマの目的である。このためには、

- (1) 極渦内のオゾン減少の把握、
- (2) 中緯度地域が極渦の影響を受ける頻度と程度、
- (3) 極渦の影響とオゾン及びオゾン破壊関連物質の関係、

を明らかにする必要がある。本研究では、本研究によって得られたデータ及び別途得られたデータに基づき上記の点について解明すると共に、より詳細に、より長期間にわたって必要な情報を得るための観測システムの開発を行った。以下、第2節では研究期間を含む最近の北半球極渦の変動及び中緯度地域が極渦の影響を受ける頻度と程度について、第3節ではヤクーツク及び北海道のオゾンゾンデ観測に現れた極域オゾン層破壊について、第4節では北海道における赤外分光観測及び可視分光観測によるオゾン及びオゾン層破壊関連物質の変動について、第5節ではつくばにおけるミリ波オゾン分光観測データに基づくオゾン変動及び広帯域化システムの開発について、第6節では陸別におけるレーザーレーダーによる気温観測について、第7節では仙台における赤外ヘテロダイン観測結果について、第8節ではシベリア配備用赤外分光計の整備について述べる。

2. 最近の北半球極渦の変動

- (1) 極渦及び極渦変動の可視化

①渦位の水平分布図による極渦の可視化

冬季から春季にかけて、極域成層圏には極夜ジェットと呼ばれる強い西風が吹く。そして、極夜ジェットで特徴づけられる低気圧性の渦を極渦と呼ぶ。極夜ジェットは極渦の縁に位置する。極域の空気と中緯度域の空気の混合は、極夜ジェットによって妨げられているので、極渦内部と極渦外部に分けることがある。この場合極夜ジェットは極渦内部と外部の境界領域に位置し、「南北輸送の壁」のような役割を果たす。オゾンホール型のオゾン破壊、すなわちPSCによる不均一反応を伴うオゾン破壊は主に極渦内部で進行する。しかし、「南北輸送の壁」が完全ではなく、極渦の位置、形、強さ、大きさも一定ではないことから、その変動を捉える必要が生ずる。その手段として、等温位面上の渦位分布が有用である。温位 θ 及び渦位 (potential vorticity; PV) Π は、

$$\theta = T (p_0 / p)^{0.2859}$$
$$\Pi = (\zeta_z + f) \delta \theta / \delta p$$

で定義される。ここで、 T は気温、 p は気圧、 p_0 は基準とする気圧（通常1000hPa）、 ω_z は相対渦度の鉛直成分、 f はコリオリ力である。

断熱的な運動は等温位面上で行われる。また、 f は緯度と共に緩やかに増加するが、極夜ジェットの南側では ω_z が負であり、北側では ω_z が正である。このことから、極渦の内側の渦位は外側に比べて高く、極夜ジェットの位置、すなわち境界領域で渦位は急な勾配を持っている。また、等温位面上の運動においては渦位は保存される。従って、等温位面上に渦位の等値線を描くことによって、渦位の高い極渦内の空気塊の分布・運動を、高い渦位の塊の分布・運動として可視化できる。図1は1996年2月6日の475Kの等温位面上（高度18-20km、気圧70-50hPaに相当）の渦位分布である。この図は、欧州中期予報センター（ECMWF）の客観解析データを用いて計算して作成した。北緯60度～80度に卵形に等渦位線の混んでいる部分、渦位が25-45渦位単位（PVU； $10^{-6}m^2 kg^{-1}K$ ）がある。これが極渦の境界領域であり、その内側が極域の空気、外側が中緯度の空気で満たされていると考えて良い。この極渦が移動し、大きくなったり小さくなったり、一部がちぎれたり分裂したりする。ここで重要なことは、極渦の中心は必ずしも北極上空にある訳ではないこと、また、極渦の形は通常円形ではないので、極渦を記述するのに緯度は有効ではないことである。

従って、どれだけ極渦の内側にあるか、あるいは外側にあるかという見方で緯度を定義し直すと便利である。これを等価緯度 ϕ_e と呼ぶ。ある渦位等値線に囲まれた面積が幾何学的な緯度内の面積と等しい場合、その等渦位線が等価緯度に対応する。

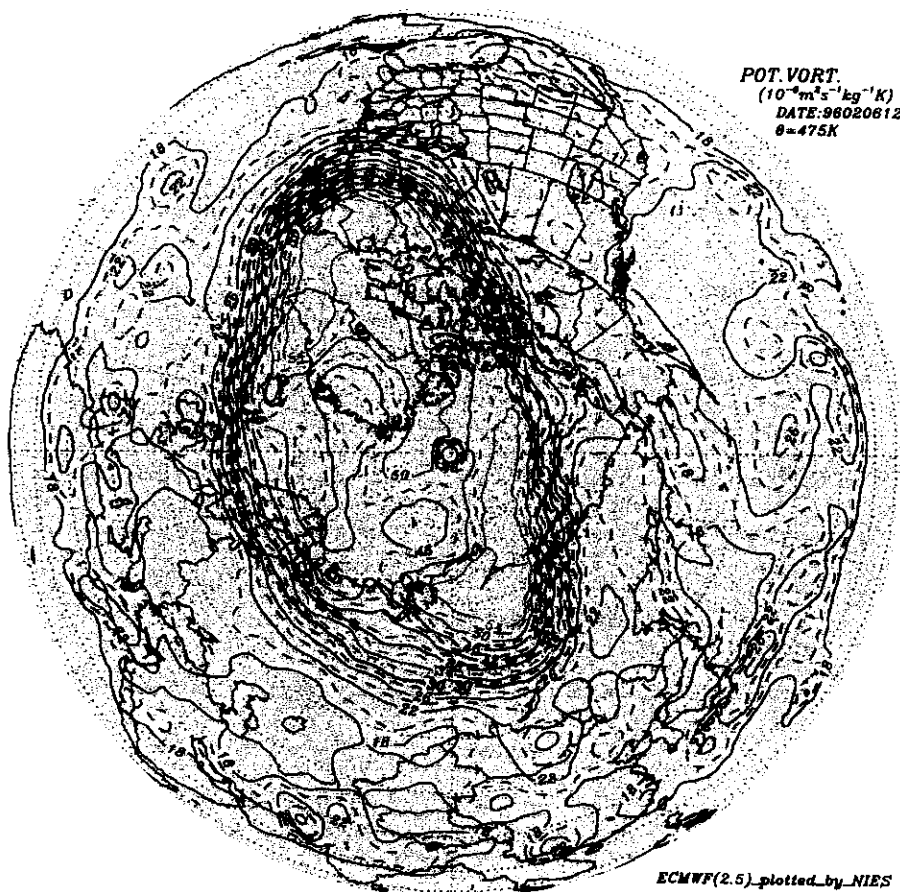


図1 1996年2月6日の475Kの等温位面上（高度18-20km、気圧70-50hPaに相当）の渦位分布。ECMWF客観解析データを用いて計算した。

②等価緯度 ϕ_e による極渦の一次元的表示—極渦内部、極渦外部、境界領域の区分

等価緯度を用いると極渦を一次元化して表示することができる。図2の左上段は等価緯度 ϕ_e に対して渦位をプロットしたもの、左中段はその一次微分 $d\Pi/d\phi_e$ 、左下段は二次微分 $d^2\Pi/d\phi_e^2$ である。右上段は等価緯度線に沿った風速の平均値 V_{ave} 、下段はこれに一次微分をかけたもの $V_{ave} \cdot d\Pi/d\phi_e$ である。等価緯度60度から65度の間で渦位勾配が急になっている。保存量である渦位の勾配が急であるということは、この部分に「極渦内外の輸送の壁」があることを意味する。この「壁」で極渦の内部と外部に分けられるが、「壁」に厚みがあるので、極渦内部と外部の間に「境界領域」を設け、中高緯度の成層圏を、極渦外部、境界領域、極渦内部の三領域に分ける考え方が生まれた。極渦外部と境界領域の境目を「外エッジ」、境界領域と極渦内部の境目を「内エッジ」と呼ぶ。Nash et al., 1996¹⁾は、外エッジと内エッジを求めるために渦位の二次微分をとり、その最大値の位置に外エッジが、最小値の位置に内エッジがあるとした。極渦の形が単純な場合はこれで問題がないが、極渦の歪みが大きい場合には極大値が幾つもできることがある。彼らは、 $V_{ave} \cdot d\Pi/d\phi_e$ のピークの位置を境界領域の中心と定義し、その外側にある最も近い $d^2\Pi/d\phi_e^2$ の極大値の位置に外エッジがあり、内側にある最も近い極小値の位置に内エッジがあるとした。しかしながら、極渦の歪みが大きくなった場合には境界領域は狭くなるよりはむしろ広くなることを考慮するならば、より外側により大きな極大値がある場合や、より小さな極小値がある場合に取って内側の極大値、極小値を採用することは不合理である。そこで我々はより単純に、境界領域の中心から外側25度以内にある渦位の二次微分の最大値によって外エッジを定義し、境界領域の中心から内側25度以内にある渦位の二次微分の最小値に対応する等価緯度によって内エッジを定義した。

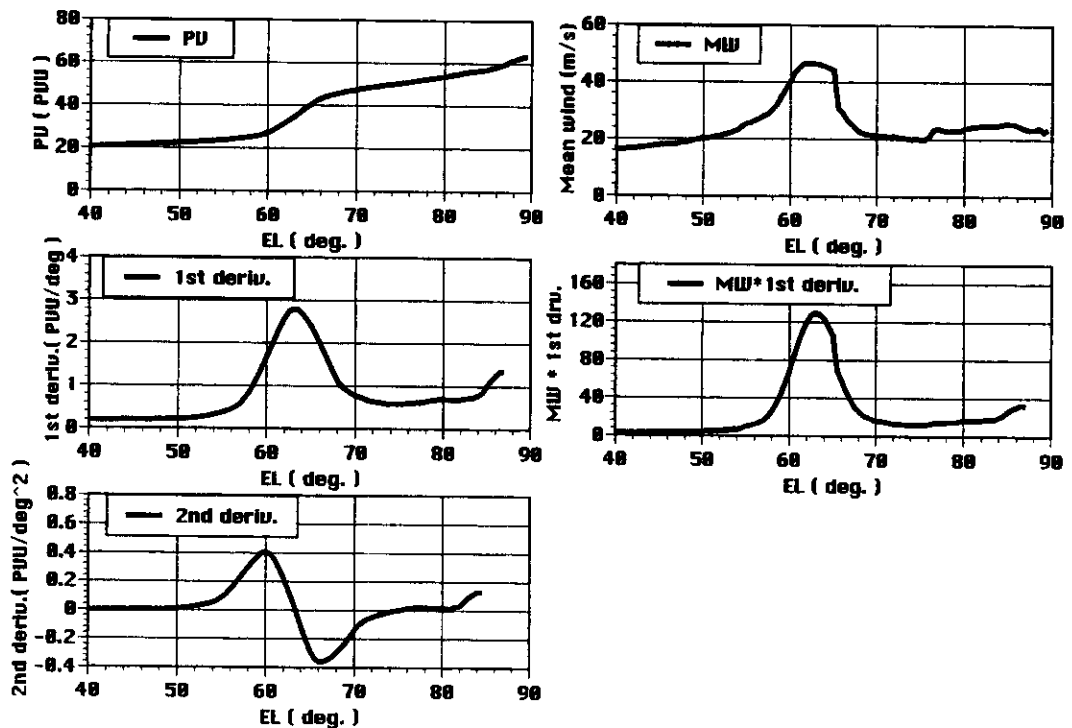


図2 等価緯度による渦位の変化（左上段）、一次微分（左中段）、二次微分（左下段）、水平風速の等価緯度に沿った平均（右上段）、一次微分と風速の平均の積（右下段）。

本課題においては、中高緯度の気塊を極渦内、境界領域、極渦外の三領域の気塊に分けるための内エッジ及び外エッジに対応する等価緯度及び対応する渦位の値はこの定義に基づいて計算され、各サブテーマにおける研究に使用された。また、Bodeker²⁾は、渦位の一次微分 $d\Pi/d\phi$ の日々の変化を時間-等価緯度断面上の疑似カラー表示し、季節内の極渦変動を一枚の図で示す手法を開発した。

③極渦強度を定量的に表す量の導入

本研究では、Bodekerの手法に改良を加えて極渦の変動をより明瞭に解析する手法を開発した。保存量である渦位をトレーサーと考えた時、一次微分 $d\Pi/d\phi$ は「極渦内外の輸送の困難さ」を表現するのに適当ではない。それは、この量が渦位の大きさに比例しておりトレーサー濃度に依存した量になっているからである。このため、渦位の高い高緯度地域で大きくなるだけでなく、渦位が高度と共に急速に増大することを反映して高度と共に急速に増大してしまう。そこで我々は、一次微分 $d\Pi/d\phi$ を渦位で割った値 b を輸送の障壁を表す量として使用することにした。

$$b = (d\Pi/d\phi) / \Pi$$

b は「barrier」を意味する。図3右上段に示すように、この量は $d\Pi/d\phi$ よりもベースラインがよりなめらかになっており、極渦の境界領域をより明瞭に可視化することができる。 b は極渦内外の気塊の混合の起こりにくさを表す量であるが、これは同時に極渦の強さを表す量でもある。我々は、「極渦強度」を b の最大値 b_{max} によって定義することにした。また b_{max} に対応する等価緯度 ϕ_{max} を用いて極渦半径 r を、

$$r = 90 - \phi_{max}$$

と定義した。境界領域の中心は ϕ_{max} とすべきである。また、外エッジ、内エッジも図3下段に示すように b の微分の最大値、最小値に対応して定義する方が合理的である。しかしながら、これらの位置に大きな違いはない。

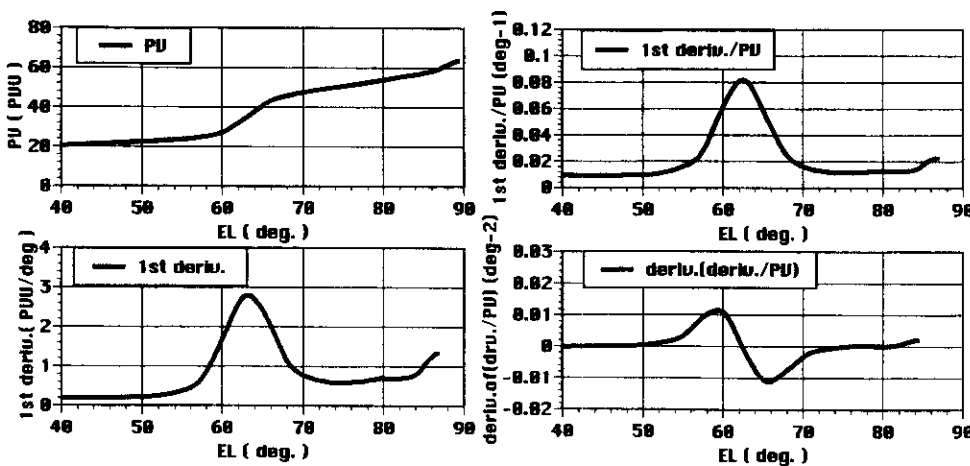


図3 渦位の等価緯度による一次微分を渦位で規格化することの効果（右上段）。

④極渦の生成－消滅過程の可視化

1995年7月から1996年6月の期間の b の時間－等価緯度断面上のマップ（これを「極渦変動マップ」と呼ぶ）を図4に示す。時間軸は1996年1月1日を1日とした。高緯度側と低緯度側が b の高い部分によって分離され始めるのは-60日頃、すなわち11月始め頃であったが、それが明瞭になるのは11月終わりから12月の始め頃であった。これを極渦の生成時期と考えて良いであろう。この時期の極渦半径は22度程度であった。極域成層圏の冷却が進むことによって極渦の半径が増大したが、この時期には b_{max} の値はそれ程大きくなく、極渦はそれ程強くはなかった。この年には1月の終わり頃から2月上旬にかけて b_{max} が大きくなった（極渦が強くなった）。また、極渦半径 r が一定になった（極渦が安定化した）。3月始めには b_{max} が小さくなると共に r が小さくなる過程が繰り返されるが、これは極渦の一部がちぎれて中緯度の空気の中に拡散して行く過程が繰り返されたためである。そして4月中旬には極渦が崩壊した。このように、極渦変動マップによって各年の極渦の強さ、大きさ、存在期間、安定性など極渦変動の様子を把握することができる。

The First Derivative of PV to EL divided by PV

(NCEP reanalysis data, July 1995 - June 1996; pt=475K)

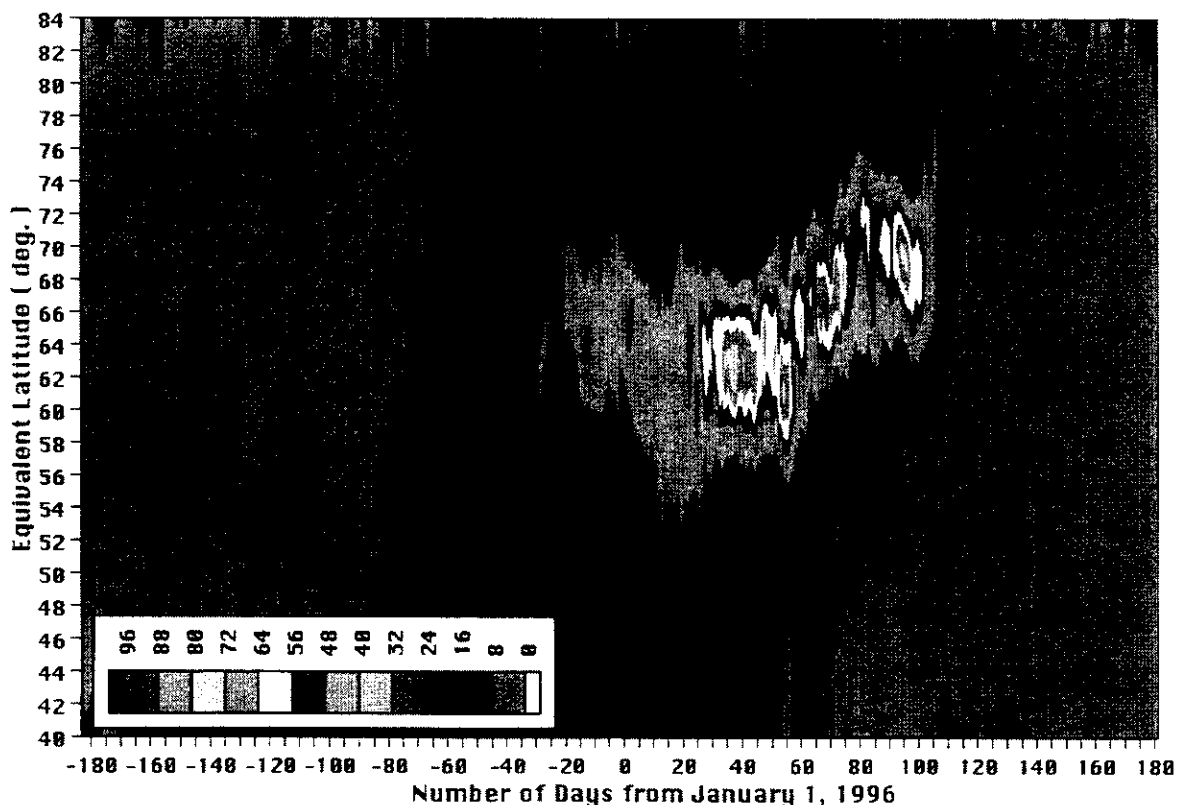


図4 渦位の等価緯度による微分を渦位で規格化した量、 $b = (d\Pi / d\phi_e) / \Pi$ の季節変化。縦軸は等価緯度 ϕ_e 、横軸は1996年1月1日を1日とした日数。 b は極渦の強さ、極渦内外の混合の障壁の強さを示す量である。白い部分の内側が大きな値。

(2) 最近5年間の極渦変動

口絵2-1に1995年から1999年までの最近5年間の極渦変動マップに示す。1995年、1996年、1997年の3年間は極渦が強かったが、極渦変動の様子はそれぞれ異なる。1995年は前年の12月はじめ頃から極渦はしっかりしていたが、2月の始めに極渦の縁が不明瞭になり始め、中旬には極渦の小分裂が見られ、分裂した部分が北海道近くにまで到達した。この時、口絵2-2に示すように気温も上昇しており、小規模な成層圏突然昇温 (minor warming) が起こったと考えられる。3月になると極渦は小さなままで再び安定化した。4月には再び分裂し始め、4月の中旬に極渦は幾つもの小片に分裂した。しかし、極渦の小片の一つは4月下旬まで明瞭に認められた。4月下旬に等価緯度80度付近に見られる大きな部分は極渦の小片が残っていることを表している。口絵2-2を見ると、この冬には12月の中旬から2月上旬まで2カ月にわたって極域成層圏雲 (PSC) の生成が可能な195K以下の気温 (PSC気温) が存在しており、更に3月前半に再びPSC気温が現れた。日照時間の比較的長い3月にPSC気温が現れたため、この期間のオゾン破壊への寄与は大きかった³⁾。

1996年の極渦については先に述べた通りであるが、この年の特徴は、タイプIIのPSC、すなわち氷粒子の生成する気温が多く出現したことである。このため、脱窒 (dinitrification) が起こった。本プロジェクトも参加したオゾン破壊を定量的に把握するためのオゾンゾンデの組織的観測 (Match) の結果によって、脱窒が起こった気塊中ではオゾン破壊が長引き、逆に硝酸粒子が再蒸発して窒素酸化物の増大した気塊中ではオゾン破壊が抑制されたことが明らかになった⁴⁾。しかし、PSC気温は3月上旬に消失した。この年には、極渦崩壊時に極渦の一部が北海道上空を通過した。この時期に国立環境研究所と名古屋大学太陽地球環境研究所は集中観測を行い、日本上空で、極渦内オゾン層破壊の一端を明らかにした。これについては後に述べる。

1997年の極渦の特徴は、極渦の生成が遅く、475Kの等温位面で極渦が明瞭に見られるのが1月以降になったこと、極渦が形成された後は異常に安定した強い極渦になったこと、5月まで極渦が崩壊しなかったことである。PSC気温は1月中旬に出現したが、3月終わりまで続いたため、十分な日照が得られたことと相まって極渦内のオゾン破壊が大きく進み、「北極オゾンホール」の出現が話題になった。

1998年の極渦の特徴は、極渦が早い時期に強くなり、前年の12月中旬には550K (高度約22km) ではタイプII PSC (氷粒子) のできる気温まで現れたことである。しかし、12月下旬に極渦が分裂して気温も上昇した。その後も極渦の強化 (低温)、極渦の不安定化 (昇温) を繰り返した。このため、ある程度のオゾン破壊はあったが、前3年ほどではなかった。

1999年の極渦は1990年代でもっとも弱く、一度もPSC気温が現れなかったという点で1990年代には例を見ないものであった。これは、1998年12月中旬の突然昇温によって極渦の形成が中断したこと、2月までかかって緩やかに再形成された極渦が3月中旬に完全に崩壊したことにもよると思われるがそれ以上に「極渦を強化する力」が弱かったのではないかと考えている。

このように、1990年代に一貫して強くなってきたかに見えた極渦は、1998年、1999年に弱くなり、極渦変動の予測の難しさを改めて示唆した。最近公開されたNCEP再解析データのような数10年にわたる客観解析データの解析とモデリングを合わせた研究が今後必要になると思われる。

3. ヤクーツク及び母子里への極渦の影響とオゾン層破壊

(1) ヤクーツク及び母子里に極渦が影響を及ぼす頻度

本研究では、東シベリアのヤクーツク (62° N, 130° E) と北海道の母子里 (44° N, 142° E)

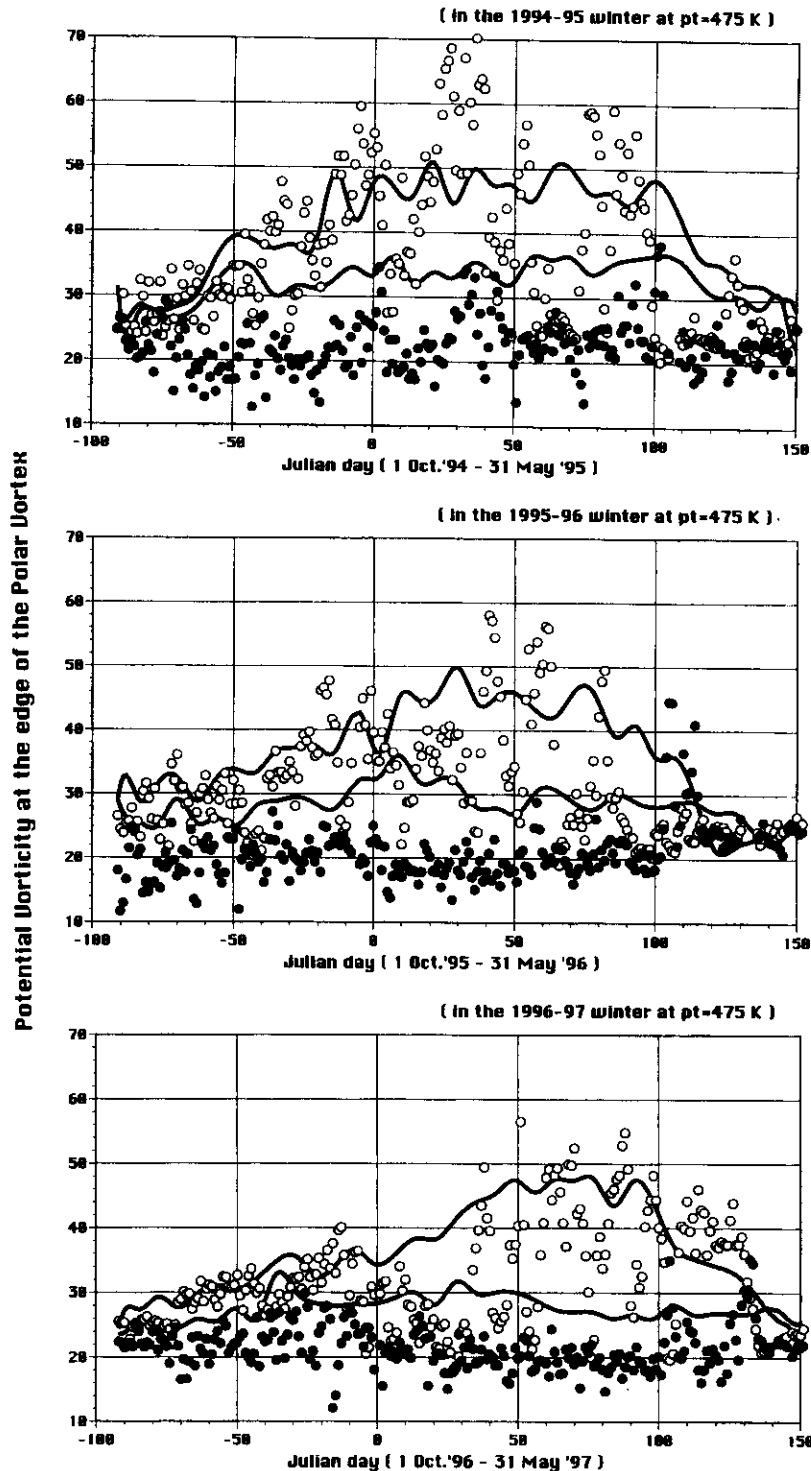


図5 上空475K (約18km) におけるヤクーツク○、母子里●と極渦との位置関係。内エッジ (上の実線) の上では極渦内部、外エッジ (下の実線) の下では極渦外部、実線の間は境界領域。

においてオゾンゾ
ンデの特別観測を
行っている。これ
らの観測点は東ア
ジアのオゾン全量
の高い地域にある
という点で欧州と
好対照をなしてい
る。また、欧州の
中高緯度において
観測された気塊が
数日後に通る場所
として重要であり、
Matchキャンペーン
等を通じて欧州と
の共同研究が行わ
れている。この二
つの観測点は経度
は近いものの、緯
度の違いを反映し
て極渦との関係で
はかなり異なった
状況にある。図5
は、ヤクーツクと
母子里が極渦の内
部、境界領域、外
部のどこに位置し
たかを示したもの
である。一般に、
北半球の極渦は北
極点を中心にする
よりも欧州側に寄
って位置する場合
が多い。これは東
アジア・アラスカ
側にアリューシャ

ン高気圧と呼ばれる成層圏の高気圧があるからである。アリューシャン高気圧が強まり北極方向に移動するような場合に、極渦も東西に移動する、歪みが大きくなる等により東シベリア方面をおおうことがある。このような場合には極渦の一部がフィラメントのように伸びる、または一部が分離して日本の北部に近づくことがある。これらの現象はプラネタリー波の活動が活発になった時に起こる。従って、ヤクーツクが極渦の内部に入ったり、母子里が極渦の境界領域に入るのはそのような時である。母子里がすっぽりと極渦内部に入るのは極渦崩壊時が多い。図5を見ると、ヤクーツクは境界領域に位置することが多く、プラネタリー波の活動が比較的活発だった1995年には極渦内部に位置することが多かったが、3年間を総合すると、おおよそ3領域に3分の1づつ位置した。

母子里が極渦の内部または境界領域に入るのは限られた場合である。1995年では1月の始め、2月中旬、4月中旬であり、1996年では、2月の終わり頃、3月19日付近、4月14日から25日にかけて、1997年では4月中旬、5月12日付近である。しかし、極渦の影響はこれだけに限らないと考えられる。極渦半径が小さくなる場合には必ず極渦内部の気塊が中緯度に流出しているはずであり、この影響は極渦外部の極渦に近い場所で大きいと考えられる。ここでは、ヤクーツクあるいは母子里が極渦内部あるいは境界領域に入った場合について述べる。

(2) ヤクーツクが極渦内部に入った場合のオゾン減少

ここでは3年間の内、極渦内部に入った場合の観測の多い、1997年について述べる。北極域で記録的なオゾン破壊が見られた1997年には、極渦が1月から2月にかけて形成され、ヤクーツク

(62° N, 130° E) は2月中旬から5月初旬にかけてかなりの頻度で極渦におおわれた。このようにヤクーツクが極渦内部に入った場合を選び出し、オゾンゾンデによって観測したオゾン混合比の時系列変化を調べた(図6)。50日頃(2月中頃)から125日頃(5月始め)にかけて、どの温位でもオゾンが時間と共に減少している。この傾きから極渦内部のオゾン破壊速度を求めると、475K(高度約18km)では、21ppb/dayであった。これは、この高度のオゾンが3カ月で半分になる破壊

速度である。この方法では、極渦内部の非断熱的な冷却による下降気流の影響を考慮していないが、下降気流の弱い2月以降のデータを主に利用しているので影響は少ないと思われるが、この効果について補正を行うとオゾン破壊速度が若干大きくなる。

Ozone Mixing Ratio inside Vortex at Yakutsk (1997)

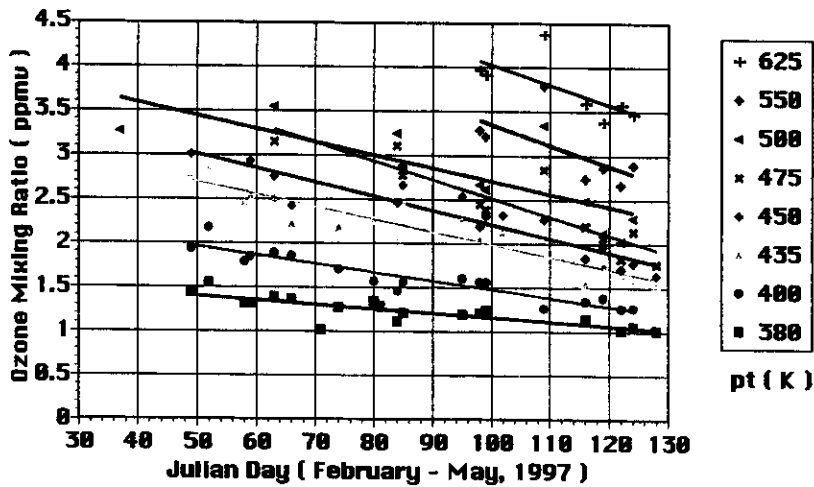


図6 ヤクーツク上空の各温位(高度)におけるオゾン混合比の変化。

(3) オゾンゾンデMatch、ILAS-Matchによるオゾン破壊速度との比較

上の方法では、極渦内部のオゾン減少速度が一定であると仮定した場合の、その時間的平均値が求められるが、オゾンゾンデ観測を同一の気塊について2度観測して、その間のオゾン混合比の差から輸送の効果を取り除いたオゾン破壊速度を求める手法(Match)を用いると、時間的、空間的なオゾン破壊速度の変化を求めることができる。MatchはドイツのAlfred-Wegener極地・海洋研究所を中心に、欧州、ロシア、日本、カナダ等の研究者の共同研究として1995年以降毎冬・春季に行われている。本研究もヤクーツク、母子里の観測によってオゾンゾンデMatchに参加している。その結果によると、1997年は、2月上旬からオゾン破壊速度が増加し始め、3月上旬にオゾン破壊速度が最高(40ppb/日)に達し、3月終わりまで単調に減少した⁵⁾。平均的なオゾン破壊速度はヤクーツク単独のデータから得られた21ppbと良く一致している。この年には、1996年のMatchで見られたような、PSCが存在しなくなってもオゾン破壊速度が大きいままであるという状況は見られず、タイプII PSCの影響は小さかったと思われる。また、積算オゾン減少量についてはサブテーマ(1)で報告されているILAS-Matchとも良く一致している。

(4) 母子里におけるオゾンゾンデに現れた極域オゾン破壊の影響の検出

本研究では、1996年より国立環境研究所と名古屋大学太陽地球環境研究所が共同で北海道の母子里において冬・春季にオゾンゾンデの集中観測を行っている。この観測では、主に極渦が近づいた時に観測し、極渦内におけるオゾン破壊の影響の解明を試みてきた。これまでの検討によって、極渦が近づいてきた時には渦位が高くなること、オゾン破壊の影響が少ないと考えられる場合には渦位の上昇と共にオゾン濃度(混合比)が上昇すること、極渦内部のオゾン破壊の影響が大きい場合には、渦位とオゾン濃度との相関が弱くなり、渦位から期待されるよりはオゾン混合比の上昇が小さい、あるいはオゾン混合比が低下する、ということが定性的に分かった。しかしながら、渦位とオゾン混合比との相関は高度によっても異なり、しかも回帰直線(あるいは回帰曲線)を引いた場合の残差は必ずしも小さくない。従って、「化学的なオゾン破壊の影響を受けていないオゾン鉛直分布」という意味の参照オゾン鉛直分布を渦位から得ることは容易ではなく、オゾン破壊量の定量的な見積もりは困難であった。

本研究では、先に示した極渦のエッジ判定プログラムを、気象庁による札幌のオゾンゾンデ観測日のNCEP再解析データについて走らせ、極渦との関係を整理した。そして、まず春に極渦内部で観測を行ったケースを選び出し、北海道に極渦が到達した1996年4月14日、23日及び1997年5月12日の気温鉛直分布と同様の気温鉛直分布を持つ観測データを選んだところ、1972年4月13日のデータのみが参照データとして適当であると判断するに至った。この日、北海道は深く極渦内部に入っており、気温鉛直分布が極めて1996年4月14日及び4月23日に近い。しかも、オゾン破壊が起こっている高度領域外ではオゾン分圧がほぼ等しい値となっている。また、1972年の極渦の変動マップは1995年、1996年のものとよく似ていた。口絵2-3の左側に、1996年4月14日、23日、1997年5月12日のオゾン分圧及び気温の鉛直分布を示した。また、図中に、1972年4月13日のオゾン及び気温鉛直分布を点線で重ねてプロットした。オゾン分圧はデータに比べ50%~60%減少している。右側には、その日の475K等温位面上の渦位マップを示した。3日とも、母子里観測所が極渦内部に入っていたことが分かる。1996年4月14日のケースでは、極渦が西に傾いていたため、550K(高度約22km)以上の高度では母子里が極渦内部に入っておらず、50hPa(高度約20km)以上でオゾン分

圧が高いことは合理的に説明できる。4月23日は550K以上でも母子里は極渦内部に入っていた。1972年頃の成層圏塩素濃度は現在の1/2以下であった。極域のPSCが関与するオゾン層破壊にはClO + ClO、またはClO+BrOという活性ハロゲンに対して二次の反応が含まれていること、自然起源の塩素・臭素化合物の寄与が当時は1/2程度あったことを考慮すると、1996年4月14日及び23日に観測されたオゾン濃度と1972年4月13日のものとの差は、ほぼ人為的に放出された塩素・臭素化合物によって極渦内で破壊されたオゾンの濃度と言える。すなわち、オゾンが最大50%–60%破壊されたと言われる1996年の春の極渦内の状況が、PSCが消えて1カ月以上後の北海道で、しかも崩壊しつつある極渦の中でそのまま観測されたことになる。475Kでは極渦内外の輸送は相当抑制されていたと考えられる。

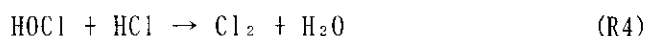
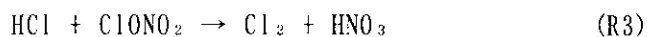
4. 中緯度における塩素酸化物分配比とオゾン変動に対する北極域大気化学過程の影響

(1) はじめに

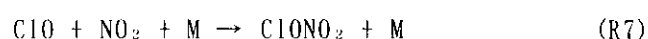
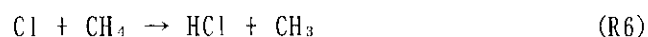
成層圏オゾンはグローバルに長期的な減少を続けている。気柱全量の減少量は北半球中では緯度が高いほど大きく、日本国内では北海道で最も著しい。しかし、現在の最新の化学輸送数値モデルは、北半球中緯度におけるオゾンの長期的減少（10年で4%）のうち半分しか再現することができない。これらの状況は我々のオゾン変動の化学的・物理的なメカニズムの理解が不十分であることを示している。中緯度におけるオゾンの減少は、全球的に分布している硫酸エアロゾル粒子等の表面上での次の様な不均一反応により、塩素酸化物によるオゾン破壊反応が増幅されることが重要と考えられる。



しかし一方において、北海道など高緯度側では、北極における高速のオゾン破壊過程と輸送過程がカップルした効果も大きい可能性がある。北極域の冬期成層圏においては、温度の低下に伴い極成層圏雲（PSCs）が生成し、その表面上での次のような反応により塩素酸化物が活性化される。



また(R5)などの反応は、低温の硫酸エアロゾル上での不均一反応によってもおこる。これらの反応により活性化された塩素酸化物によってオゾンが破壊されると考えられる。一方、活性化された塩素酸化物（ClO_x）は次のような反応により再び不活性化される。



これらの反応のうち、(R6)の反応は(R7)の反応と比較して遅いため、 ClO_x の多くは(R7)の反応によって ClONO_2 になり、その後ゆっくりと CH_4 と反応すると考えられる。従って、北極域においてPSCs等の表面で(R3)～(R5)の反応の影響を受けた大気中では、HClに対して ClONO_2 の比率が高くなっていることが予想される。

本研究では北海道陸別および母子里観測所に設置されているフーリエ変換型の赤外分光器による大気成分同時観測結果を使って、HClに対する ClONO_2 の比率に着目して、極域不均一反応の影響を調べた。このような観測結果を3次元のモデル計算と比較し、極域不均一反応によるオゾン減少の影響が中緯度におよぼしている影響を調べた。

(2) 赤外および可視分光観測

北海道の陸別観測所(43N, 144E)および母子里観測所(44N, 142E)において、Bruker社製の120M(波数分解能 0.0035 cm^{-1})および120HR(同じく 0.0019 cm^{-1})フーリエ変換型赤外分光計観測を行っている。検出器としては液体窒素冷却型のMCTおよびInSb検出器を使用している。測定器に関するより詳しい記述は、Nakajima et al. [1997]を参照のこと⁶⁾。

赤外領域($700\text{--}4400\text{ cm}^{-1}$)の太陽放射中におけるそれぞれの大気成分の吸収を測定することにより、 O_3 、HCl、HF、 ClONO_2 、および HNO_3 の気柱全量を導出した。気柱全量の導出においてはRinsland et al. [1984⁷⁾、1996⁸⁾]の非線形最小二乗スペクトルフィッティングプログラムSFITを使用した。これは仮定した吸収成分の高度分布をひとつの係数でスケールングすることにより、観測スペクトルと吸収スペクトルとの二乗残差を最小にするプログラムである。各吸収線の吸収パラメータはHITRAN 1995 [Rothman et al., 1992]⁹⁾を使用した。Murata et al. [1997]¹⁰⁾で示されたように、SFITによって計算される O_3 の気柱全量は太陽天頂角60以上においては、ある程度仮定した O_3 プロファイルの形に依存する。そこで本研究では人工衛星UARSに搭載されたHALOEによって得られた40N～50NにおけるHClおよびHFの各月の平均分布を用いた。また ClONO_2 はATMOSの高度分布を用いた。

大気中での可視領域(435-487 nm)の太陽放射の散乱成分を観測することにより、その中に含まれている O_3 の吸収スペクトルからその気柱全量を導出することが可能である [Koike et al., 1993¹¹⁾、1999¹²⁾]。赤外分光法では晴天時にしか観測ができないのに対し、可視分光法では晴天以外でも観測が可能であるため、ほぼ毎日のデータが得られる。本研究では母子里観測所において得られた O_3 の観測結果を用いた。

(3) 観測結果および考察

① 季節変化

陸別および母子里観測所において1995年5月から1997年12月までに観測された、HF、HCl、 ClONO_2 、 HNO_3 、および O_3 の日平均値を図7に示した。全ての成分とも極小値が7～9月に、また極大値が2～4月に現れる明瞭な季節変化を示している。これらの成分は、全て成層圏中で光化学的に生成され、その生成率は赤道で最大である。これらの成分の気柱全量が春先において最大となるのは、冬期のプラネタリー波動による赤道から極向きかつ下向きの子午面循環によるものである。一方冬から春にかけては、その平均的な値が増大するのみならず一般に大きな変動幅をもっている。これは北極から中緯度への大気の輸送に伴う変動と考えられる。本研究では1996年1～4

月の期間における変動について解析した結果を以下に述べる。

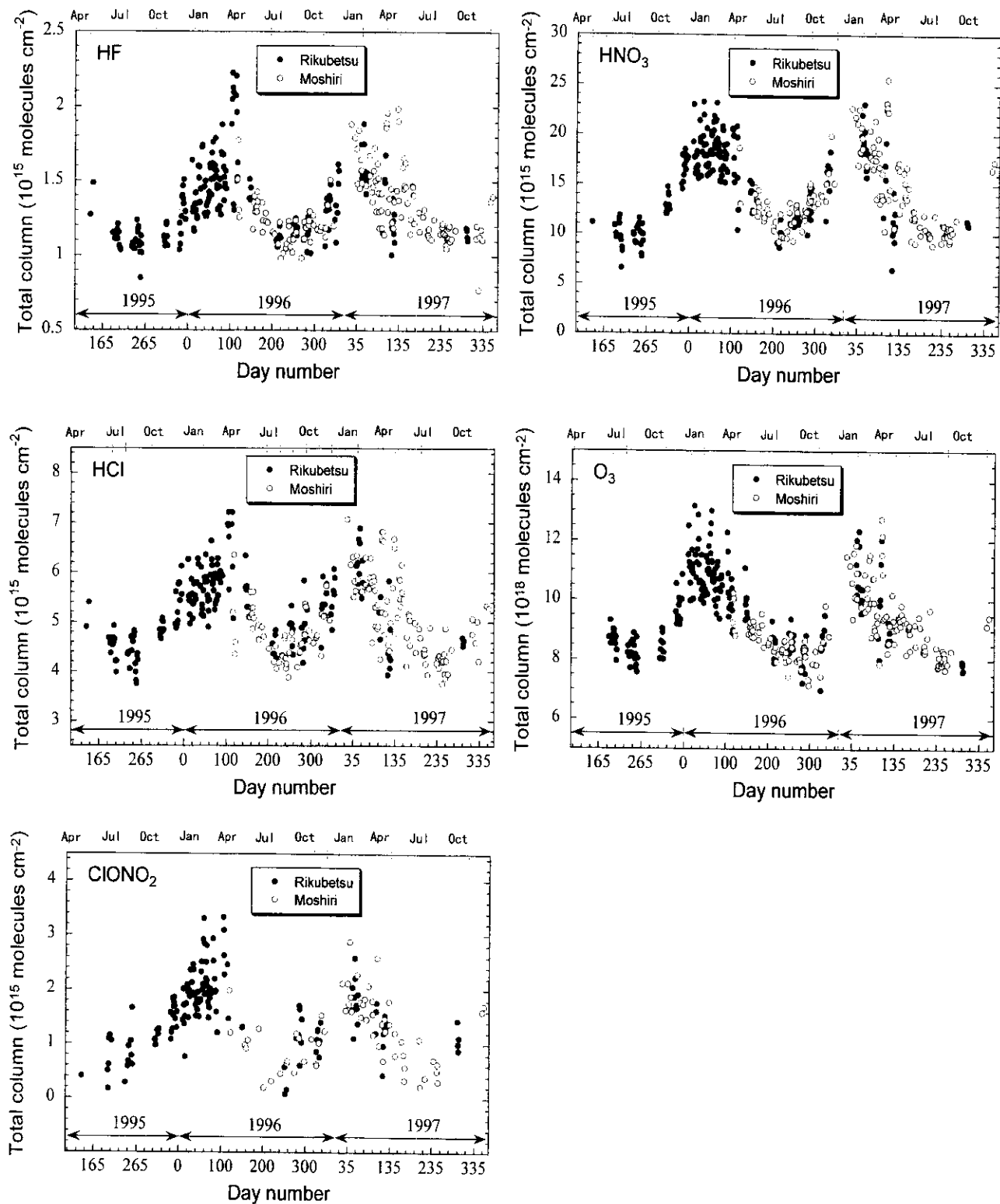


図7 陸別および母子里観測所において1995年5月から1997年12月までに観測された、HF、HCl、ClONO₂、HNO₃、およびO₃の日平均値

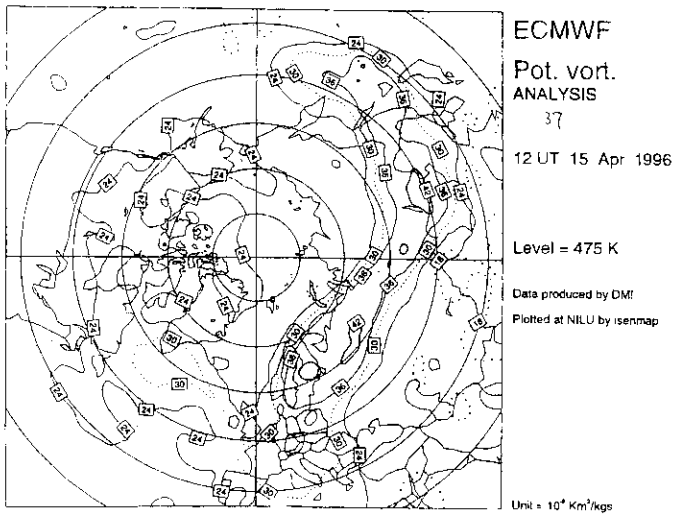
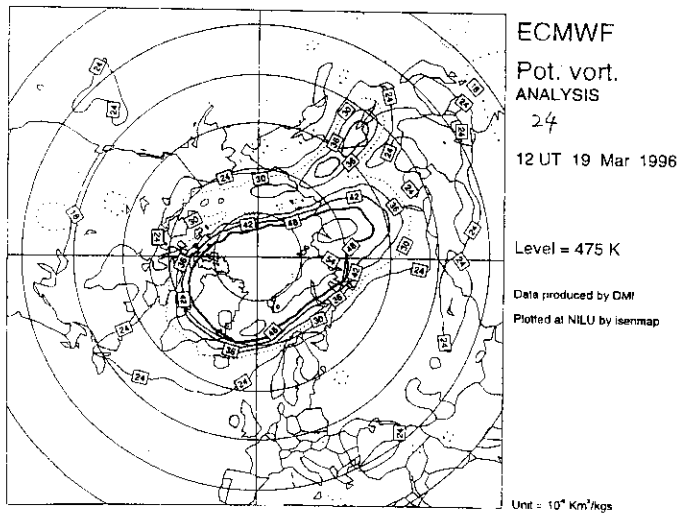
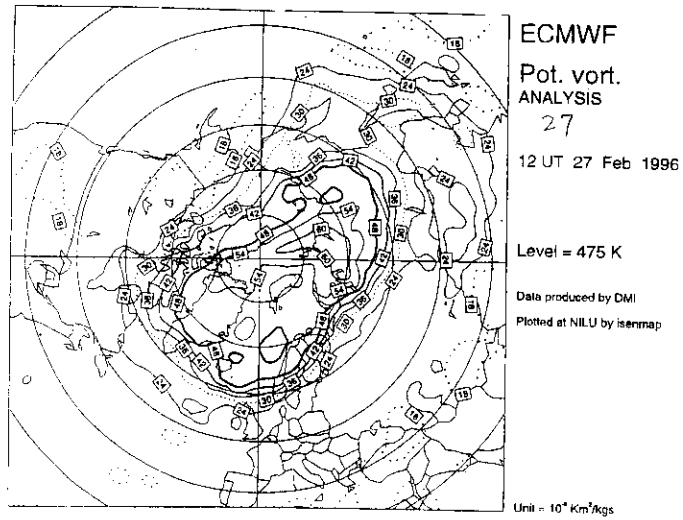


図8 1996年2月27日、3月19日、4月15日の温位高度475 K（高度約18 km）の渦位マップ

②気象状況

1996年1～4月の期間について、350～700 K 温位高度でのポテンシャル渦度 (PV) をECMWF 気象データを使って計算した。図8には、1996年2月27日、3月19日、4月15日の日について、温位高度475 K (高度約18 km) のPVの図を示した。冬期においては、この温位高度の北極極渦の境界は、 40 ± 8 PV単位 ($\text{K m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$) で定義することができる。PVの値は2月から4月にかけて、低緯度のよりPV値の低い空気との混合を通じて減少している。2月27日と3月19日には極渦は大きく変形し、100E～160Eの範囲においてPV値の高い空気塊が中緯度まで張り出している。この結果、北海道上空まで24 PV単位の空気塊が到達している。4月15日には極渦は最終昇温を伴って崩壊し、極渦内にあった空気は0E～180Eの範囲に大きく伸びて存在している。この結果、北海道はこの残存する極渦の内側に入り、PV値は36 PV単位となっている。この時点でのPVの最大値は42 PV単位であった。

③化学輸送モデル

本研究では、観測結果をイギリスのケンブリッジ大学で計算された3次元の化学輸送モデル (CTM, Chemistry and Transport Model)

SLIMCATの結果 [Chipperfield et al., 1995¹³⁾,

1997¹⁴⁾] と比較することにより、その解釈を行った。このCTMでは、大気の輸送は化学モデルとは独立に (off-lineで) 3次元の気象データ・アシミレーション法により計算された。大気成分はこのoff-lineで計算された風と気温の場を使って、CTMにより計算された。CTM中の大気成分は1991年11月15日の時点で初期化されている。このためには、人工衛星UARSのMLSの O_3 観測値、同じくCLAESの N_2O 観測値、そして2次元数値モデルの結果が使用されている。モデルの格子間隔は緯度 $2 \times$ 経度 2.5 、気圧高度は0.63～922 hPaを25層に区切った。計算時間間隔は15分で、34の大気成分を計算した。60N以南においては、エアロゾル表面積は人工衛星SAGE IIの観測結果を用いた。60N以北においてはWMO 1991レポートの値を用いた。

④HClとClONO₂の冬期から春先にかけての変動

図9には、1996年1月から4月に陸別において得られたHCl、ClONO₂及びその和 (HCl + ClONO₂) とHFとの相関図を示した。この図に見られるとおり、3つの量はそれぞれHFと正の相関をもつが、

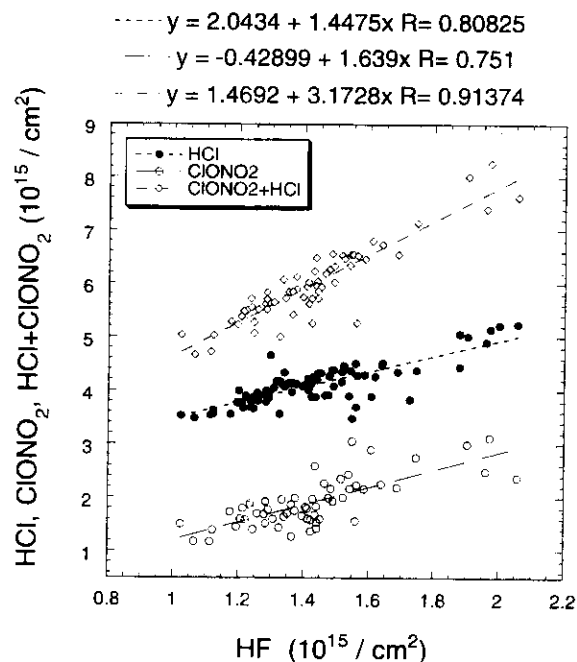


図9 1996年1月から4月に陸別で得られた HCl、ClONO₂及びその和 (HCl + ClONO₂) とHFとの相関図

HClおよびClONO₂のそれぞれよりもHCl + ClONO₂はHFとの相関が良い。無機の塩素及びフッ素はともに成層圏中においてハロカーボンの光解離から生成される。このうちHFは不均一反応を起こさないと考えられており、また無機塩素の総和であるCl_y (= Cl + 2Cl₂ + ClO + 2Cl₂O₂ + HOCl + HCl + ClONO₂)もCl_y成分内での変換反応では増減がなく長い光化学的寿命をもつ。このため、HFおよびCl_yの気柱積分量は赤道から極へ向かって増加する緯度分布をもち [Chipperfield et al., 1997¹⁴⁾], お互いに良い相関をもっていると考えられる。中緯度においてはHClとClONO₂がCl_yの主成分であるため、HFとHCl + ClONO₂の相関も良いと考えられる。このことは、Cl_yの指標としてHFあるいはHCl + ClONO₂が使えることを示唆している。一方、HClやClONO₂はCl_yの中の分配比によって増減するために、輸送過程だけではなく化学反応過程の影響も受けて変動し、HFとの相関もやや悪くなっていると考えられる。

図10には1996年1月から4月の陸別において得られたO₃、HCl、HFの気柱積分量の変化を示した。この図にはまた475 K温位高度のPV値も示した。2月27日、3月19日、4月15日においては、PV値は高くなっており、図8で見たとおり、極域から来た大気が陸別に到達していることが分かる。この期間においてはHF量も増加していることが分かる。またHClは2月27日には減少している一方4月15日においてはその絶対値が増加している。上記のようにHF気柱積分量は赤道から極へ向かって増加する緯度分布をもっていることを考えると、PV値の高い空気塊の輸送に伴ってHFが増加したことは、この空気塊が確かに高緯度での化学成分の性質をもっていることを示している。一方、極域大気の輸送に伴うHClの増減は、輸送過程と共に極域化学反応過程の影響を反映していると考えられる。

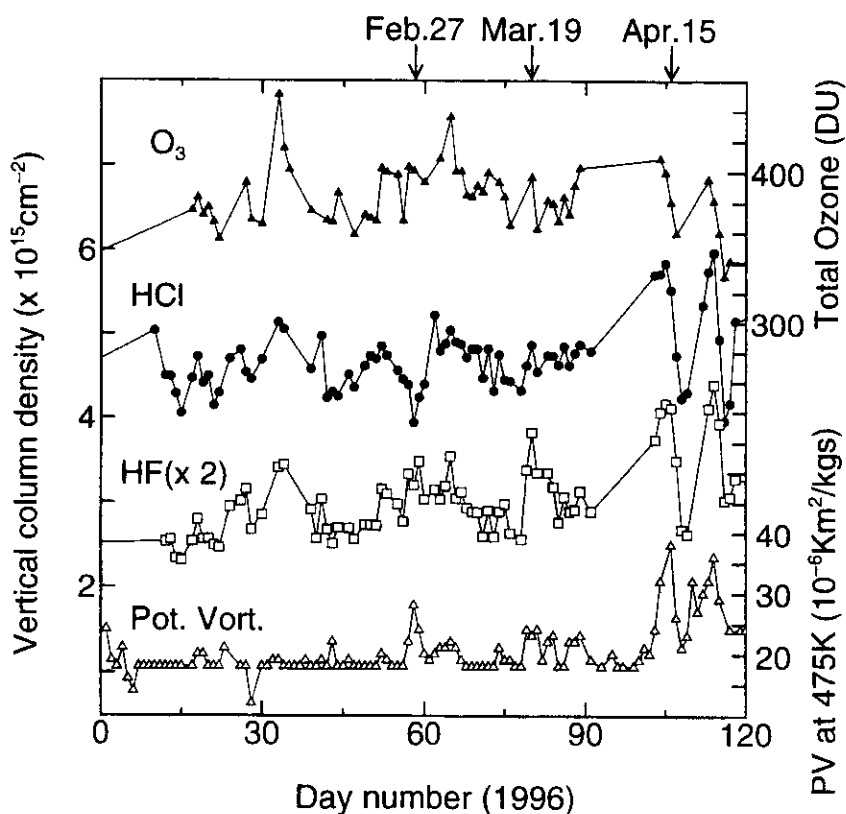


図10 1996年1月から4月の陸別において得られたO₃、HCl、HFの気柱積分量の変化

図11には、HCl/HF値の変化を示した。HCl/HFはPV値の高い極域からきた大気中で小さくなっていることが分かる。上述のように極域でのPSCsの表面上における(R3)～(R5)の不均一反応の影響を受けた大気は、(R6)の反応が(R7)の反応よりも遅いことから、Cl₂内の分配においてよりHClが少なくClONO₂が多い分配比となる。HFはCl₂の指標と考えられるため、この観測事実は極域から来た大気中の塩素分配比において、PSCs上での不均一反応の影響が残っていることを示している。

⑤3次元CTM計算値との比較

図12にはHCl/HFの観測値と比較して、HCl/(HCl + ClONO₂)の3次元CTM計算値の結果を示した。HCl + ClONO₂を用いたのは、モデル計算の中でHFが得られていないためであるが、上記(図9)のとおりHCl + ClONO₂はHFと同様にCl₂の指標として考えることができる。この図から明らかのように、CTM計算値においても、極域からの大気が陸別に輸送された時には、HClが減少していることが分かる。

このHClの減少は(R3)～(R5)の不均一反応と、それに続く(R6)と(R7)の反応によると考えられるが、その点をよりはっきりさせるためにCTMにおいてPSCsおよび低温硫酸エアロゾル表面上での(R3)～(R5)の不均一反応を入れた場合と入れない場合の計算を実施し、観

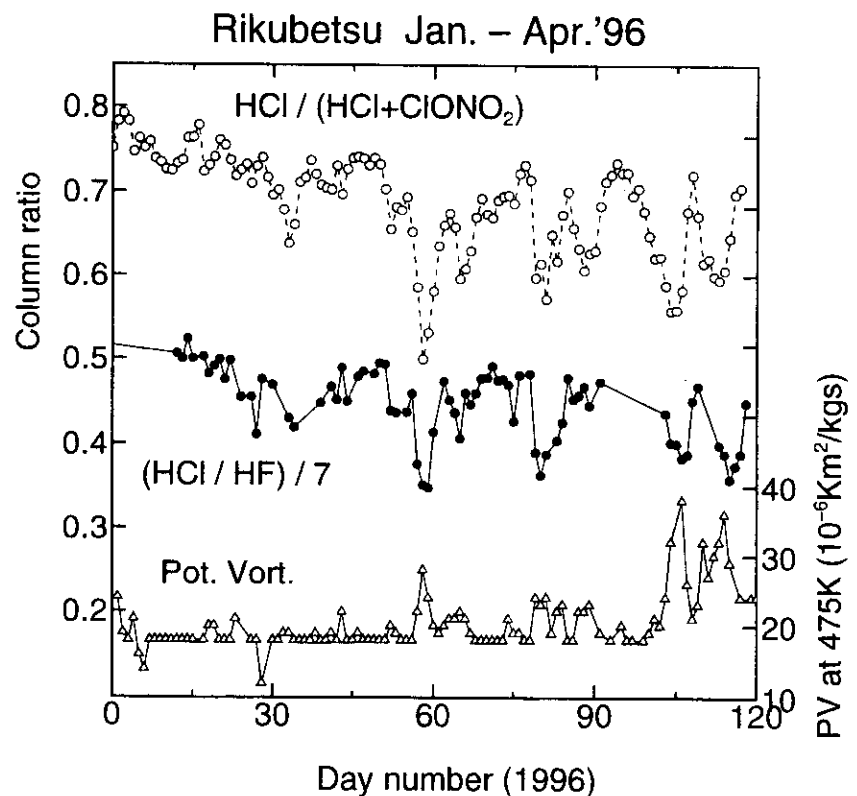
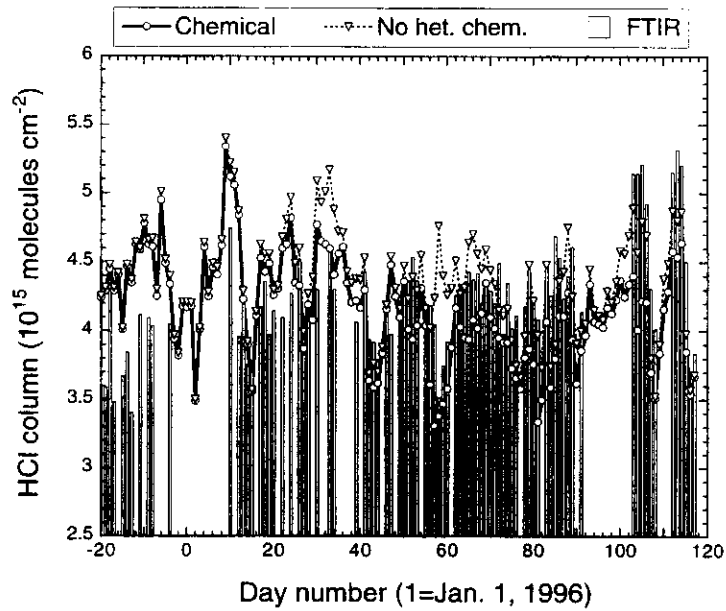


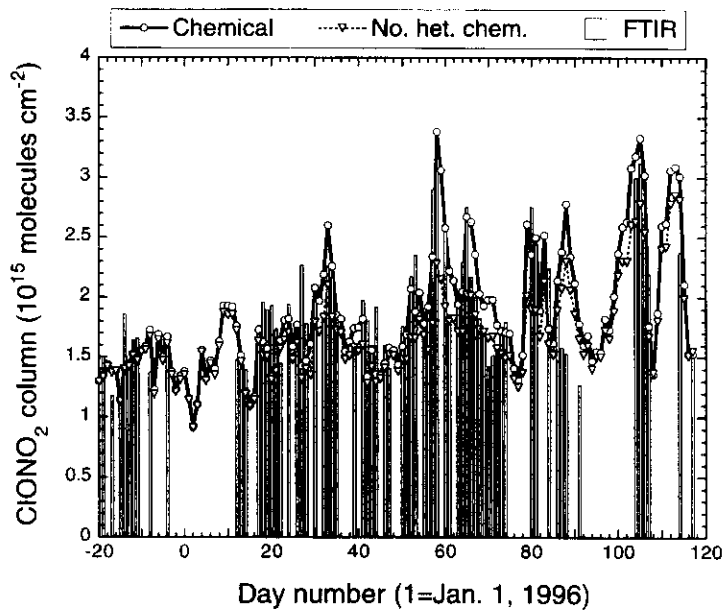
図11 観測されたHCl/HF比とモデル結果

測結果と比較した(図12上および12下)。極域大気が来ていない時期においては、当然の結果としてPSCs等の不均一反応を入れたモデル結果と入れない結果はほぼ等しい。これに対し、極渦大気が輸送されてきた2月27日(第59日)、3月19日(第79日)、4月15日(第106日)においては、不均一反応を入れたモデルは入れないモデルと比較してHClが少なくClONO₂が多い結果となっている。そして観測値は不均一反応を入れたモデルとより良く一致している。これらのことから、観測された極域からの大気中でのHClとClONO₂間の分配比の変化は、極域における不均一反応に

よるものであることが明らかとなった。



April 24, 1997



April 24, 1997

図 1 2 化学輸送モデル (CTM)SLIMCATにおける不均一反応の有無の違いと観測結果の比較。上段はHCl、下段はClONO₂。

⑥オゾンへの影響

図13には、CTM計算において、大気中の O_3 の化学反応を入れた場合と入れずに O_3 の輸送のみを考慮した場合のオゾン量計算値を、可視分光器で得られた結果と比較した。この図に見られるとおり、2つのCTMモデル O_3 計算値は観測値の日々変化を良く再現することに成功している。すなわち O_3 の日々変化は基本的に輸送過程に支配されていることが分かる。しかし O_3 の化学反応を入れたCTM計算値は、入れない場合の計算値と比較して2月から4月にかけて系統的に減少していていることが分かる。 O_3 の観測値はこの化学反応を入れた計算値とより良く一致していることが分かる。

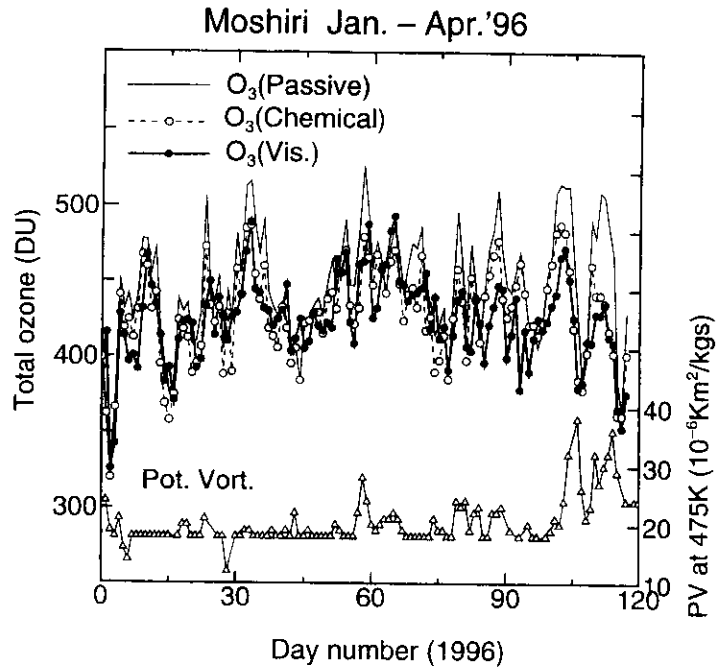


図13 オゾン全量の観測値とSLIMCAT計算結果

図14にはPSCs表面上での不均一反応を入れた場合と入れない場合の2つのCTM O_3 計算結果の比率を示した。 $ClONO_2$ 計算結果についても同様に比率を示した。この結果によると、1月においては北極域での化学反応が中緯度のオゾン量に与える影響は極めて小さい。この時期においては、北極極渦は安定に存在し、極渦の変形に伴って中緯度まで輸送されてくることもない。しかし2~3月には連続的なオゾンの減少が見られ、3月末には2%に達している。これは極渦の縮小に伴う極渦大気の連続的な中緯度への流れだしによるものと考えられる。これらの連続的なオゾンの減少に加え、極域大気の輸送によって第55、78、84日にはオゾンの局所的な減少が見られ、最大6%低くなっている。

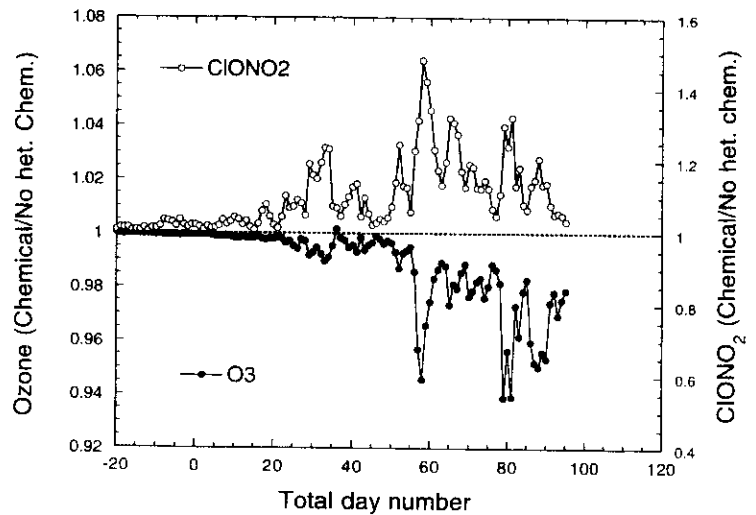


図14のオゾンの減少は $ClONO_2$ の増大と良く対応している。これは $ClONO_2$ の増大は極域における(R3)~(R5)の不

図14 不均一反応の有無による O_3 と $ClONO_2$ 濃度の違い。

均一反応の効果であり、このような大気中ではこの不均一反応により活性化された ClO_x によってオゾンが破壊されているからである。この $ClONO_2$ 計算結果は観測結果と良く一致していることから、この O_3 減少に対する極域大気化学反応の影響の評価も信頼性が高いと考えられる。1995/1996年の冬には北極域できわめて低い気温とオゾン量が観測されているが、今回の結果はその影響が中緯度でも2~6%程度のオゾン減少として現れることを示唆している。

5. つくばにおけるミリ波オゾン分光観測データに基づくオゾン変動の解析及び分光システムの広帯域化

(1) はじめに

先進国におけるフロン全廃などの結果、オゾン層破壊物質の1つである大気中の塩素濃度は2000年ごろピークとなり、その後徐々に減少していくことが予測されている。一方、現実のオゾン層破壊は高度15kmから20kmの下部成層圏と高度40km付近の上部成層圏でもっとも顕著であることがこれまでに報告されている。また近年、北半球冬季のオゾン層破壊が深刻化し、欧州、東シベリアさらには北海道にまで影響が及んでいる。このようなオゾン層破壊は、オゾン層破壊物質の存在や地球温暖化物質の増加、自然変動がからみあって生じている可能性があり、的確な対策を立てるための科学的知見を確立することが緊急の課題となっている。オゾン層の観測については、地上観測ネットワークと衛星観測により国際的に協力しておこなう方向で進められているが、そのなかでミリ波分光法はオゾン鉛直分布を昼夜連続して観測できる優れた観測手法として内外で研究が進められている。本研究の目的はミリ波分光システムによるオゾン観測手法を確立し、成層圏・中間圏オゾンの変動機構をあきらかにすることである。

ミリ波分光法によるオゾン鉛直分布の測定は、主に電波望遠鏡の技術を応用することによって発展してきた。電波天文学では宇宙からの微弱な電波を観測するために、極限的な低雑音受信器や雑音を取り除くスイッチング手法などが開発されてきた。これらの技術は大気中のオゾンからの電波を測定するのにも有効である。日本においても、1995年、国立環境研究所にミリ波オゾン分光観測システムが導入され、高度約40km以上のオゾン鉛直分布が連続的に観測されている。しかし、絶対精度の向上や40km以下の高度領域の観測については、電波分光と大気物理学の境界領域におけるいくつかの問題を解決する必要がある。これらの問題は、海外では雲のない極めて乾燥した大気条件を前提として解決されてきたため、日本のような観測条件においてミリ波分光法の潜在能力を最大限に引き出し、観測データを最大限に生かすようなデータ解析手法は未発達である。本研究ではミリ波オゾン分光計データ解析手法に関する研究及びオゾン変動の解析を行った。具体的には以下の内容で研究を進めた。

- 1) オゾンモニタリングに適したデータ解析プログラムの開発
- 2) ライダーや衛星データ等との比較による絶対精度の確認、解析アルゴリズムの正しさの検証
- 3) 観測で得られたオゾン層の時間変動の解析

(2) データ解析プログラムの開発

国立環境研究所で稼働中のミリ波オゾン分光観測システムの観測データに対応した新たな解析

プログラムの開発を行った。これまで、既存のデータ解析プログラムにより高度38kmから76kmのオゾン鉛直分布が観測されてきたが、用いられている解析アルゴリズムにいくつかの問題がありオゾンのモニタリングとして用いるには解析精度が不十分であった。具体的には①高度分解能がデータのS/N等によって変化するため、その影響で見かけ上オゾンが変動しているように見えること、②インバージョンに標準的でないアルゴリズムを用いていて、精度や誤差の評価が不十分であること、③現実的でないオゾン鉛直分布の初期推定値を解析に使用していること、が問題である。

これらの問題を解決し、オゾンモニタリングに資する解析データを得るために、新たにデータ解析プログラムを開発した。このプログラムの特徴は①解析アルゴリズムとしてミリ波データ解析に標準として用いられているロジャースの最適解 (Rodgers 1976¹³⁾) をもとにして、②高度分解能が一定になるように改良を加えたことである。具体的には、ロジャースの最適解を一般化した重み付きダンプ付き最小二乗解を解析アルゴリズムとして用いた。この方法は、オゾン鉛直分布の初期推定値からフォワードモデルで求めた仮想的な測定値と実際の観測値をそれぞれの分散で加重平均するもので、より確からしい解を得ることができる。また、線形解法であるため、得られる解が安定であること、誤差評価が容易なこと、が利点である。このアルゴリズムで高度分解能を一定にするための改良として、初期推定値と観測スペクトルのそれぞれの分散が一定であるようにした。重み付きダンプ付き最小二乗解による解析では、それぞれの分散が変化すると初期推定値と観測スペクトルとの重み付けが変化し、その結果高度分解能が変化する。そのため高度分解能を一定に保つには、二つの分散を一定にする必要がある。これまで外国においては、観測スペクトルのS/Nが一定になるようにデータの積分時間を調整して、分散を一定を実現していた。しかし日本においては、気象条件の変化が大きいため積分時間の調整で解決することは困難である。そこで、新しい解析アルゴリズムでは、気象条件のもっとも悪い夏の典型的な観測データに対して高度分解能がもっとも高くなるように分散を決め、その値をすべての観測データに対して用いた。アベレージングカーネルから求めた高度分解能は高度38kmから76kmの範囲で14kmである。

新しい解析アルゴリズムでは初期推定値の精度が解析の精度に影響する。特に中間圏オゾンの鉛直分布は日変化が大きいため、それを含んだ初期推定値を用いることが重要である。しかし、中間圏オゾンについての観測データは乏しく、これらから日変化を含んだ現実的な初期推定値を得ることは困難である。そこでより現実的なオゾン鉛直分布の初期推定値を得るために、まず高度25km以下のデータとして館野でのオゾンゾンデの1994年と95年の月別平均値、35km以上のデータとしてキーティングらのモデルで北緯36度における月別値を用い、高度方向に2kmごとかつ1日ごとにスプライン補間して毎日の仮の初期推定値を求めた。次にこれを用いて1997年のミリ波観測データの解析を行い、それから昼夜ごとの月別平均値を求めた。さらにそれを1日ごとにスプライン補間を行って毎日の昼夜ごとの初期推定値を求め、これを本解析に用いた。

このデータ解析プログラムを用いてオゾン鉛直分布を求めた。解析では観測データを1時間ごとに積分した後、リトリバルを行い、高度38kmから76kmまでのオゾン鉛直分布を得た。図15にミリ波スペクトルとオゾン鉛直分布の例を示す。得られたオゾン鉛直分布は初期推定値と異なっていることから、解析結果が基本的には観測データを反映していることが確認できた。また、56km以上でオゾンの顕著な日変化が観測された。この日変化と国立環境研究所で開発された次元モデルと、を比較したところ、両者に大きな矛盾がないこともわかった。

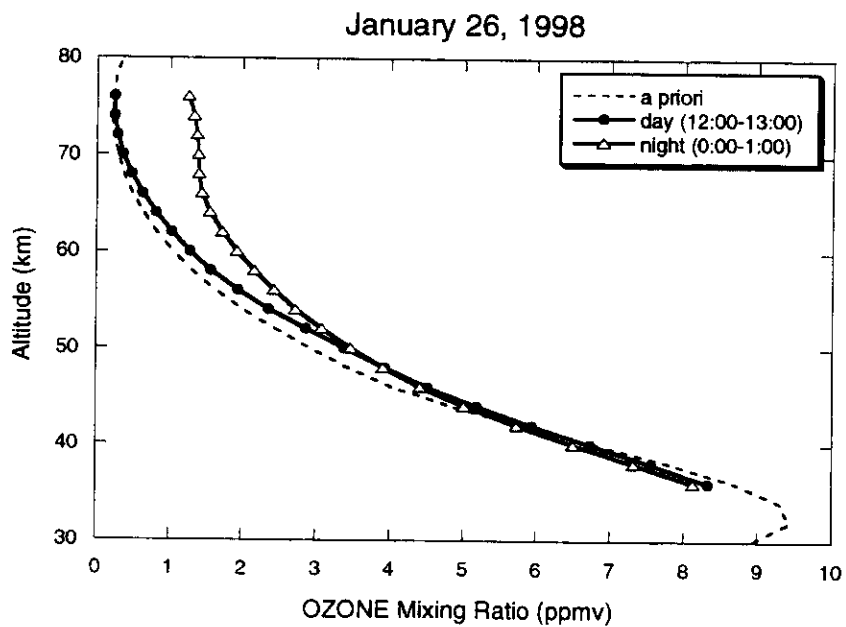
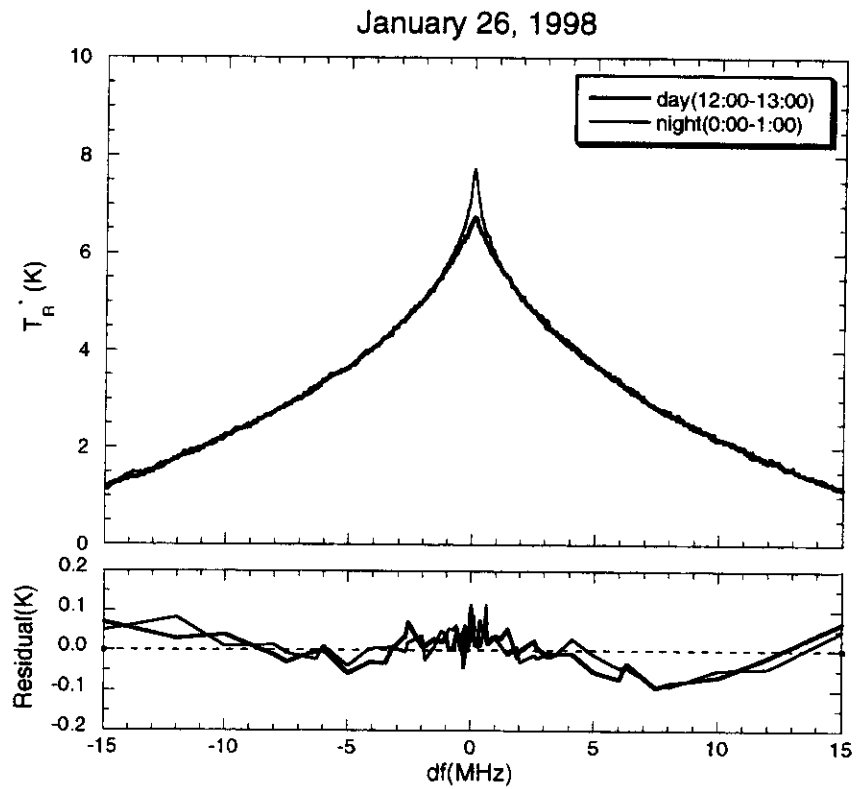


図 1 5 観測されたオゾンのミリ波スペクトルの例（上段）。細線は夜間、太線は昼間のスペクトル。下段は、inversionによって得られたオゾン鉛直分布。

(3) 絶対精度の確認、解析アルゴリズムの正しさの検証

次に新たな解析アルゴリズムを用いた場合のミリ波データの誤差評価を行った。誤差の主要因としては、①電波強度校正法自身によるもの、②受信器のシングルサイドバンド化の不十分さ、③オゾン分子のラインパラメータの不確かさ、④観測スペクトルの雑音、⑤温度やオゾン鉛直分布の初期推定値による誤差がある。オゾン鉛直分布上では前者三つは主に系統誤差、残り二つは主に偶然誤差として影響をあたえる。また、系統誤差のうち①②は他の測定データから補正することが可能であり、最終的には誤差としては残らない。

個々の誤差要因の評価として、まず電波強度校正法による誤差を調べた。国立環境研究所のミリ波分光計は電波強度校正にチョッパーホイール法を用いている。これは常温黒体からの放射と空からの放射の二つを使って強度校正を行う方法である。このとき、空の有効温度は常温に等しいと仮定する。しかし実際の空の有効温度は、それを代表する高度が下部対流圏での吸収量によって変わるため、気象条件により変化する。また一般に空の有効温度は常温より低い。この差が系統誤差となる。つくばの気象データと観測スペクトルから推定される吸収量を用いて系統誤差を評価すると、年間を通して約3%負であることがわかった。

受信器のシングルサイドバンド化が不十分であると、観測されるスペクトル強度は弱くなる。この影響による系統誤差を評価すると、受信器単体の測定によるサイドバンド比が13dBであることから、約5%負である。

オゾン分子のラインパラメータの不確かさによる系統誤差については、Connorらにより最大で7%と見積もられている(Connor *et al.* 1994¹⁴⁾)。この誤差は常に一定であるが、その量については不明で、他のデータとの比較によって明らかとなる。それに対して、前の二つは系統誤差の量が推定できるので補正することができる。したがって、最終的に系統誤差として残るのはラインパラメータの不確かさによるものだけである。

偶然誤差については、オゾン鉛直分布からフォワードモデルで求めた理想的なスペクトルに対して、人工的に雑音を加えたりオゾンや気温の鉛直分布を変えたりして数値実験を行って誤差を評価した。その結果、偶然誤差は典型的には8%であることがわかった。

次にミリ波データを検証するために、国立環境研究所のオゾンレーザーレーダーによる観測データとの比較を行った。比較は両者の観測データを互いの高度分解能関数で加重平均して高度分解能をあわせてから行った。図16に高度38kmでのレーザーレーダーとの比較を示す。図から両者は誤差の範囲内で一致していることがわかる。このことからミリ波分光計が観測に必要な絶対精度をもっていること、およびデータの解析アルゴリズムが正しいことが確認できた。

(4) 観測で得られたオゾン層の時間変動の解析

新たに開発したデータ解析プログラムを用いて、国立環境研究所のミリ波分光観測システムで現在までに得られた成層圏、中間圏オゾンの定常観測データの解析を行った。その結果、オゾン濃度のさまざまな周期の時間変動が見出された。図17に高度76km、50kmでのオゾン濃度の時間変動を示す。観測値は昼夜ごとに6時間平均したものである。各高度でのオゾン濃度の季節変動は、大局的には気候モデルによるもの(たとえばKeating *et al.* 1990¹⁵⁾)と矛盾しない。しかし、ミリ波で観測された変動の振幅は気候モデルよりも大きい。これは、年々変動や短期変動などの影響であると考えられる。

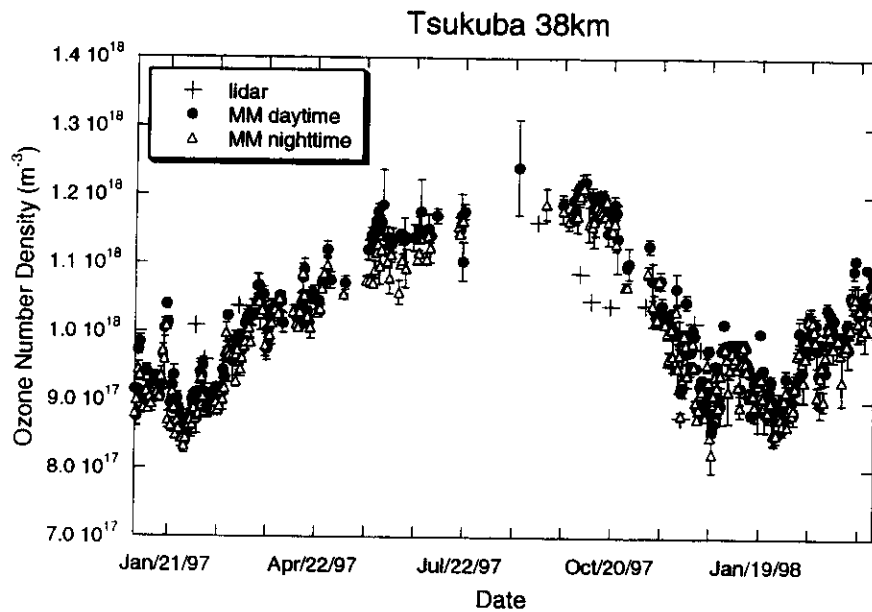


図 1 6 高度38kmでのミリ波分光観測データとレーザーレーダー観測データの比較

高度別のオゾン変動の特徴をみると、もっとも顕著なものは高度76kmの半年周期変動である。観測されたオゾン濃度は春・秋に最大となる。このような変動はSMEの観測結果と似ているが、振幅に違いがある。SMEのデータによると、春のピークは秋のそれより1.7倍程度大きいのにに対し、ミリ波の観測によると両者はほぼ同じである。モデルによると、重力波砕波による鉛直渦拡散の半年周期変動によりH₂Oの輸送が変動することで、HO_x反応を介して上部中間圏オゾンが半年周期変動すると考えられている (Garcia & Solomon 1985¹⁶⁾)。重力波の活動については、MUレーダーによる観測から夏・冬に活動性が大きくなることが知られている (Murayama *et al.* 1994¹⁷⁾)。しかし、H₂Oの観測にはオゾンのような顕著な半年周期変動は見られない (Nedoluha *et al.* 1995¹⁸⁾)。このことから、オゾン半年周期変動を解明するためにはさらなる観測とモデルの構築が必要であると考えられる。

高度50kmにおけるオゾン濃度変動の特徴は、11月ごろにあらわれるオゾン濃度の急増である。1997年の場合、11月中旬の数日間にオゾン濃度が25%増加している。国立環境研究所のレーザーレーダーによる気温観測によると、このとき気温が25K低下している。中間圏オゾンの季節変動は主に気温の変動によることが知られているが、ここで季節変動から求められた経験的なオゾン濃度と気温の関係をを用いると、高度50kmでの25Kの気温低下はオゾン濃度を23%増加させる。これは観測値とよく一致しており、短期間のオゾン変動においても気温変動が大きな役割をはたしていることを示している。

高度38kmでは年変動に加えて冬に何度かオゾン濃度の減少が観測されている。上部成層圏のオゾン変動は太陽高度角の変化によって引き起こされるが、このような減少は期間が約2週間と短いので、おもに物質輸送によるものであると考えられる。

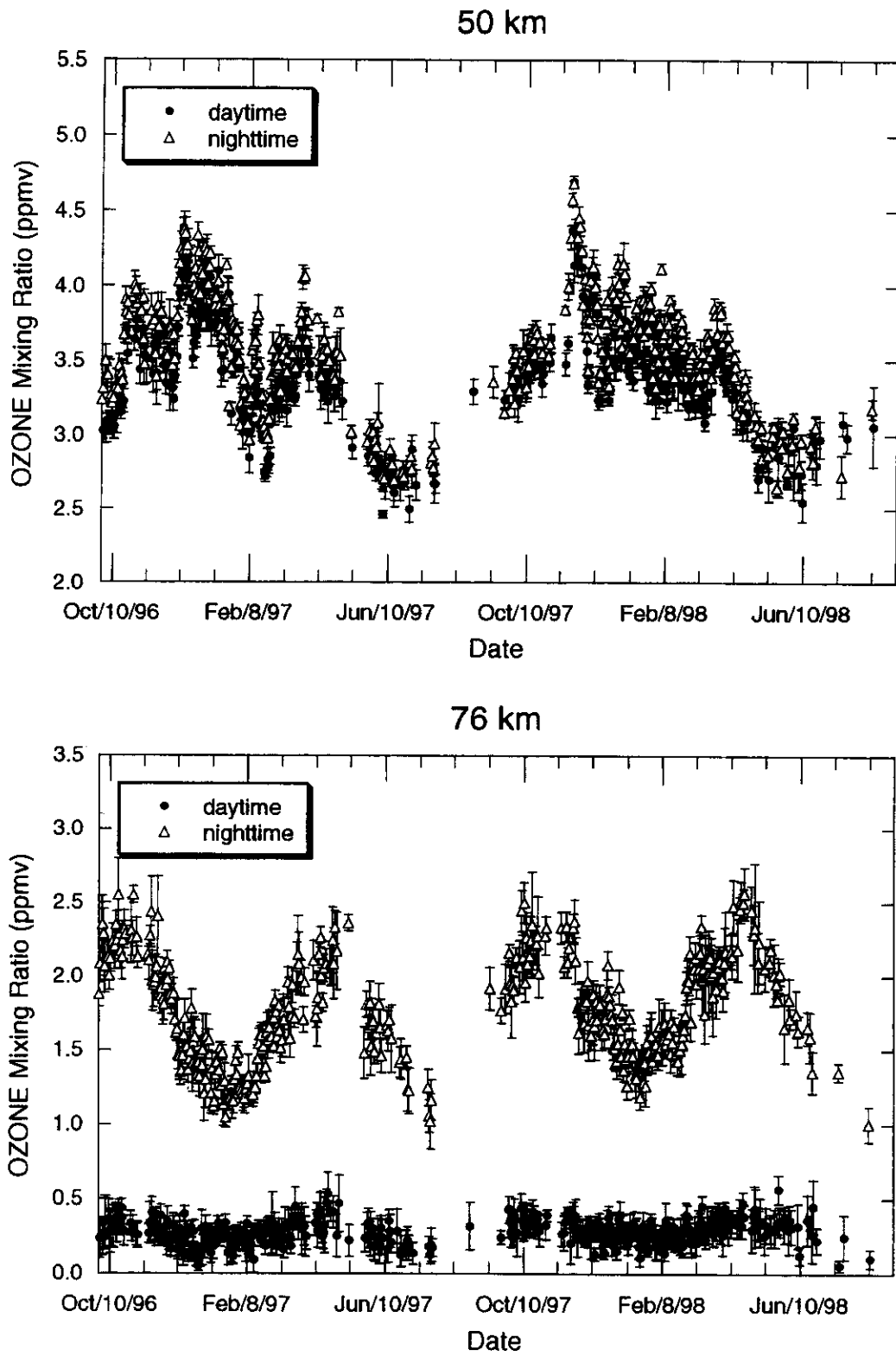


図 1 7 高度76km、50kmでのオゾン濃度の時間変動。観測値は昼夜ごとに6時間平均した¹⁹⁾

(5) 広帯域ミリ波オゾン分光システムの開発と陸別成層圏総合観測室への配備

上記の研究は、つくばに配備された帯域30MHzのオゾン分光システムによって得られた。つくばでは、オゾンレーザーレーダーによって中部・下部成層圏のオゾン鉛直分布が得られるので、38 kmより高高度の観測に重点を置いたシステムを用いている¹⁹⁾。しかし、オゾンレーザーレーダーが配備されていない北海道陸別町においてミリ波オゾン分光測定を行うためには、15km-20kmを測定下限として高度60km程度まで観測できることが必要になる。そのためには、500MHzから1GHzの帯域が必要になる。本研究では、110GHz帯において500GHzの帯域で観測する場合の問題点を解明し、システムの設計及び個々の構成装置からのシステム化を行った。

図18にシステムのブロック図を示す。ブロック図には示されていないが、陸別では窓材としてつくばで用いているテフロン

ではなく、厚さ5mmの発泡スチロールを用いている。これによって冬の結露を避けること、風による窓材の振動を抑えることができた。つくばの帯域30MHzのシステムでは、SIS Mixer直前の1個のミラーが300KのHot Referenceと空（オゾン）のスペクトルを切り替えて観測するだけの簡単なフロントエンドであったのに対して、陸別の帯域500MHzのシステムでは、Cold ReferenceとHot Referenceと空（オゾン）のスペクトルを切り替えて観測するようになっている。この一連の観測は約30秒のサイ

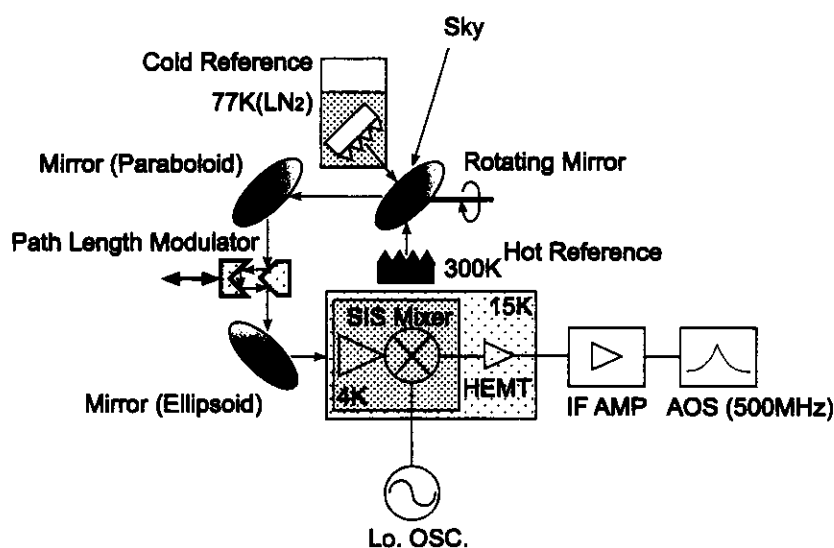


図18 陸別に設置した広帯域ミリ波分光計のブロック図

クルで行う。これは、音響光学分光計（AOS）に用いているHeNeレーザーの出力の安定性の時定数がこの程度であるため、これ以上の時間間隔で較正を行った場合には積算による雑音の低減が期待できなくなるからである（アラン分散）。本システムでは、発泡スチロールの容器に連続供給される液体窒素に浸した黒体を容器の底を通して観測してCold Referenceを得る手法を開発して用いた。この手法の利点は、液体窒素と空気との界面によるミリ波の反射を避けることができることである。更に、装置の構成要素の間の反射による定在波がスペクトルのバックグラウンドのうねりを作ることを避けるために、Path Length Modulatorを導入した。これは90度ミラーを高速で動かすことによって光路長を変化させ定在波を平均化する装置である。

このような装置の工夫によって図18上段のような良好なバックグラウンドのデータが得られた。ベースラインが傾いているのは酸素分子の回転スペクトルの裾にオゾンの回転スペクトルがあるためである。このスペクトルからRogerseのregularization法を改良したinversion法を用いて得た高度20kmから60kmまでのオゾン混合比の鉛直分布を下段に示す。

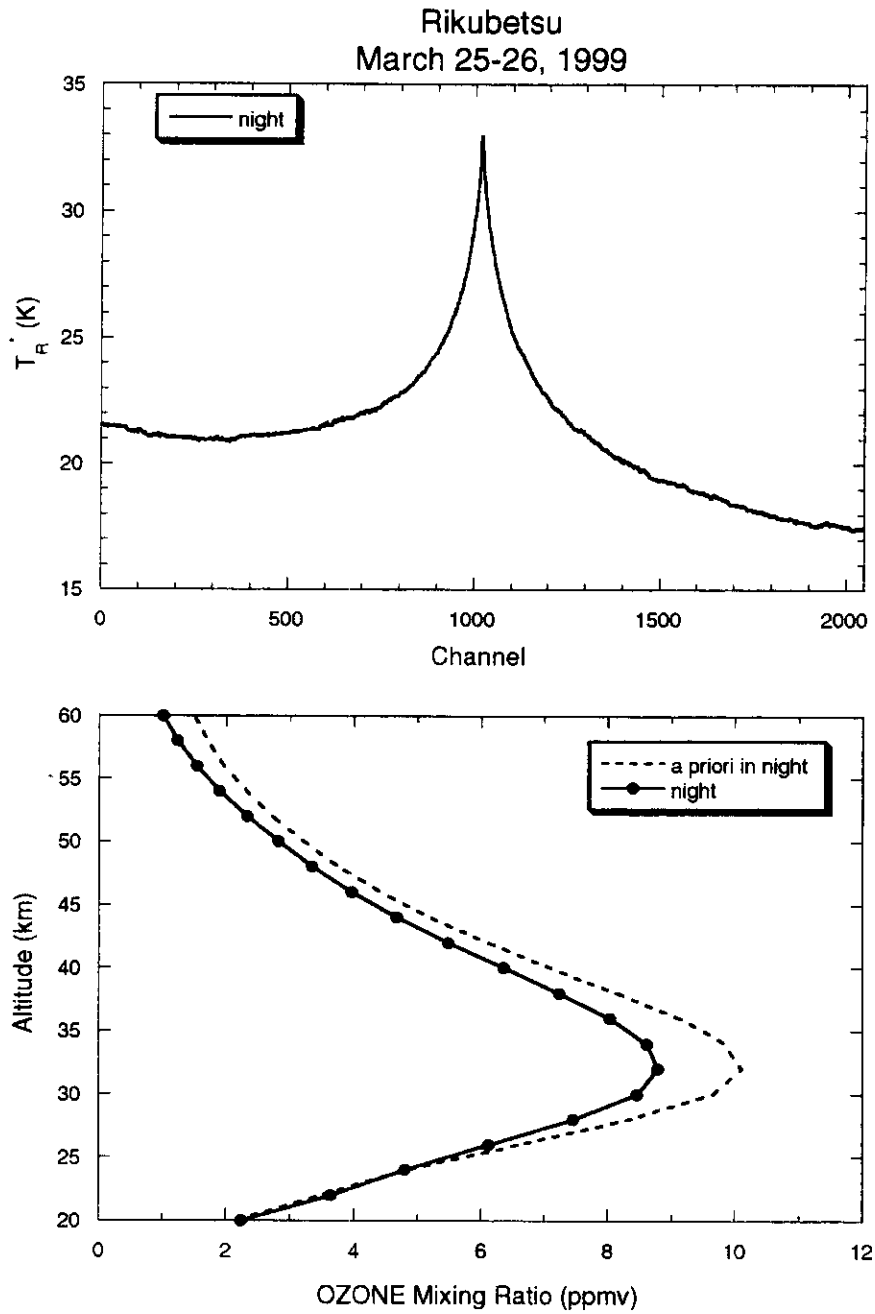


図 1 9 広帯域ミリ波オゾン分光計によって得られたスペクトルとinversionで得られたオゾン混合比の鉛直分布

(6) まとめ

ミリ波オゾン分光計データ解析手法に関する研究、オゾン変動の解析及び広帯域ミリ波分光システムの開発を行い、以下の成果を得た。

- 1) オゾンモニタリングに適した新たなデータ解析プログラムを開発した。解析アルゴリズムとしてミリ波データ解析に標準として用いられているRogersの最適解をもとに、高度分解能が一定になるように改良を加えたものを用いた。また、より現実的なオゾン鉛直分布の初期推定値を求めた。
- 2) 新たな解析アルゴリズムを用いた場合のミリ波データの誤差評価を行った。その結果、得られたオゾン鉛直分布に補正を加えた後で系統誤差は最大で7%、偶然誤差は典型的には8%であることがわかった。
- 3) 国立環境研究所のオゾンレーザーレーダーによる観測との比較から、解析したミリ波データの絶対精度及び解析アルゴリズムの正しさの検証を行った。その結果、両者は誤差の範囲で一致していることがわかり、データの絶対精度と解析アルゴリズムの正しさが確認できた。
- 4) 新たなデータ解析プログラムを用いて国立環境研究所のミリ波分光計による成層圏・中間圏オゾンの定常観測データの解析を行った。解析の結果、高度ごとで季節変動を含むさまざまな周期のオゾン濃度の時間変動が見出された。そのなかで、高度76kmにみられる半年周期変動がもっとも顕著である。また高度50kmでは短期の気温の低下に伴うオゾン濃度の急増が観測された。
- 5) 広帯域ミリ波オゾン分光システムを開発し、陸別成層圏総合観測室に配備し良好なオゾン鉛直分布を得た。広帯域化に際して、較正用Cold ReferenceとPath Length Modulatorをフロントエンドに導入した。

6. 陸別における気温鉛直分布のレーザーレーダー観測

大気中の波動などの力学的要因による気温の変動は、オゾンの力学的な変動や光化学反応係数の変化によるオゾンの変動をもたらす。また、ある高度でオゾンの減少傾向があるならば紫外線吸収量の減少により気温が低下する。更に、二酸化炭素の増加は、成層圏と中間圏気温の低下をもたらす。また、ミリ波分光観測データの解析には正しい気温鉛直分布が必要である。このように、気温鉛直分布の観測は、成層圏総合観測の中で重要な位置を占めている。

高度30km付近までの気温鉛直分布は気象庁によるラジオゾンデ観測データから得ることができるが、高度30km以上になると衛星観測かレーラー散乱を用いた地上からのレーザーレーダー観測が主な気温観測の手段となる。衛星観測は地球規模での観測が可能であるが、鉛直分解能が低い。これに対して、地上からのレーザーレーダー観測の高度分解能、精度ははるかに高い²⁰⁾。

陸別成層圏総合観測室に設置した気温観測用レーザーレーダーシステムの仕様を、表1に示す。光源には、単一縦モードのYAGレーザー第三高調波を用いた。光は5倍に拡大した後に、部屋と外気を遮断する無反射コーティングした二重窓から外に出て、45°に傾けた反射鏡によって成層圏に打ち出される。成層圏からのレーラー散乱光、ラマン散乱光は45°反射鏡によって水平方向に反射された後、直径60cmの無反射コーティングをした二重窓を通して、部屋の中に横置きした望遠鏡に入る。望遠鏡は直径50cmのカセグレン望遠鏡である。このようにして、望遠鏡を室内の空

調された環境に置きつつ、窓の結露を回避している。成層圏下層のエアロゾルの影響を少なくするために窒素ラマン散乱光を用いて気温鉛直分布の観測を行えるようにした。検出系には光電子増倍管と光子カウンターを用いている。

表1 国立環境研究所陸別成層圏総合観測室の気温観測用レーザーレーダーシステムの仕様

レーザー；	355nm : Nd:YAGレーザー第三高調波 (コヒーレント社Infinity40-100)
	出力 100mJ
	繰り返し 1-100Hz (通常50Hzで使用)
送信光学系；	5倍拡大
受信望遠鏡；	ニュートン型 口径 50cm 横置き
分光系	
355nm	干渉フィルター (355nmのレーリー散乱)
386nm	干渉フィルター (355nmの窒素ラマン散乱)
検出系	
	光電子増倍管 (浜松ホトニクスR2059SK ; 口径5cm) 2本
	ディスクリミネーター フォトンカウンター 2チャンネル

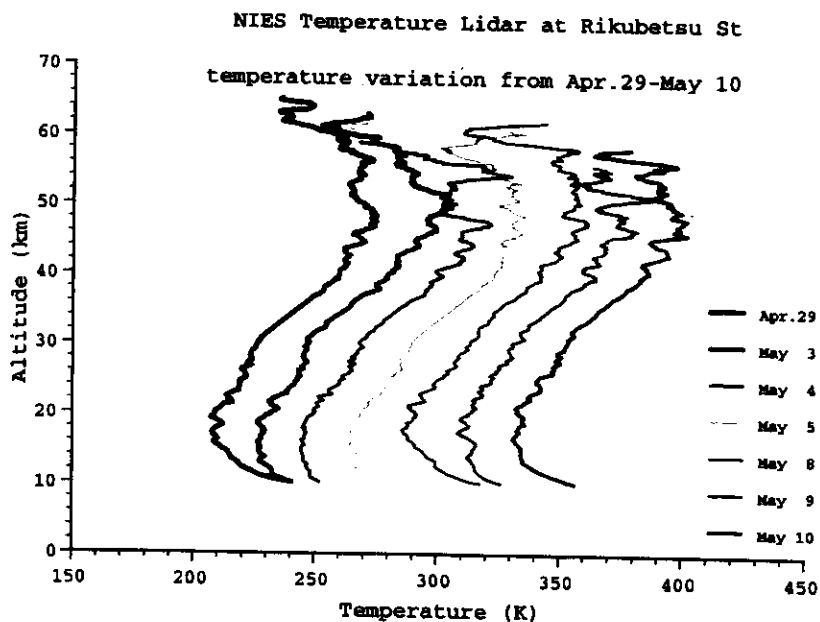


図20 レーザーレーダーで観測した気温鉛直分布観測例。1998年4月29日から5月10日の間の7回の観測結果を20Kずつずらせてプロットした。

図20に気温鉛直分布観測例を示す。1998年4月29日から5月10日の間の7回の観測結果を20Kずつずらしてプロットした。高度15km付近から60km以上まで良好なデータが得られている。高度15km以下ではエアロゾルの影響や光電パルス信号の多重計数による誤差があると思われるが、この領域より下層ではラマン散乱が有利になる。気温鉛直分布には重力波の構造が見られる。

7. 仙台における赤外ヘテロダイン観測結果

	オゾン全量 (DU)	PV の値 (475K)	PV の値 (550K)
1月18日	332.5	18	36
2月3日	464.8	19	39
3月23日	502.0	24	54

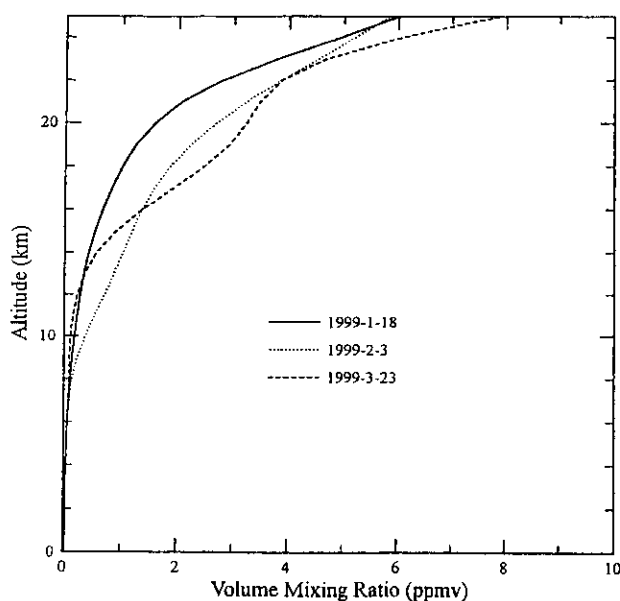


図 2 1 仙台で観測されたオゾン鉛直分布の例

1999年4月まで仙台（東北大学青葉山キャンパス内）でオゾン鉛直分布の観測を行った。図 2 1 は観測されたオゾン全量とオゾン混合比鉛直分布である。観測は晴天時に限られるため一ヶ月に数日程度の観測であったが、観測されたオゾン全量は330DUから460DU程度の範囲で変化しており、日毎の変動はかなり大きい。オゾン混合比鉛直分布にもかなりの変動が見られた。渦位(PV)との相関を見ると、仙台上空の渦位が高い時に下部成層圏のオゾン混合比が増加し全量も大きくなる傾向が見られた。これは極渦の外側境界付近では下降流によりオゾン高度分布が下方へシフトしオゾン全量も多いために、極渦が変形して中緯度側に張り出したときに、その極渦外側境界付近の気塊が仙台上空に到達したものを捉えたと考えられる。

東北大学では、10 μ m 付近の赤外領域において地球大気中の O_3 , N_2O , CH_4 等による吸収スペクトルを高分解能で観測することのできるレーザーヘテロダイン分光計を開発してきた。この分光計は半導体レーザーを内部光源として必要とするが、このレーザーからの光と大気中を通過してきた太陽光とを波面結合してうなりの成分を取り出すことにより、非常に高分解能で分光することが出来るのが特徴である。また、高出力のレーザーを用いることで信号強度を大きく出来るため、高いS/N比を得られるのも特徴の一つである。我々の開発した分光計の分解能は0.0013 cm^{-1} 、S/N比は500 - 1000程度であり、これにより観測した吸収線の線形からその成分の高度分布をインバージョン法を用いて求めることが出来る。

このレーザーヘテロダイン分光計を用い、冬期北極極渦内でのオゾン破壊の影響が中緯度にも見られるかどうかを調べることを目的として、第3回欧州オゾン集中観測THESEOに合わせて1998年12月から

8. シベリアにおけるFTIR観測のための予備観測

フーリエ変換型赤外分光計 (FTIR) は、シベリアでの観測を想定して1997年度中につくばの環境研究所内にコンテナを置き、その中に設置されている。平成10年度はコンテナ屋上への太陽追尾装置の設置・調整を行い、その後自動観測化への改良を進めるとともに、観測装置のチェックも兼ねて1998年12月よりつくばでの観測を一ヶ月に数日程度行った。

設置された太陽追尾装置とFTIRを用いて、太陽を光源とした大気中の赤外吸収スペクトルの観測を開始した。しかし、1日のうちに光軸が微妙に変動するという問題を見つけ、調査の結果屋上に取り付けた太陽追尾装置用のベースが太陽光によって熱ひずみを受けることが原因と判明した。なお、電源については、現在コンテナで使用しているFTIR、太陽追尾装置、乾燥空気製造機、空調の他、現在は研究室に設置している液体窒素製造機も含めると40A以上の容量が必要となる。観測予定地ではしばしば停電が起こるため無停電電源が必要だが、これらすべてを無停電電源に接続するには大容量の無停電電源が必要で現実的ではないため、一部の装置のみを無停電電源に接続する等の工夫が必要である。

太陽追尾装置を設置したことにより有人観測は可能となったため、1998年12月よりTHESEOにあわせた観測を何度か行った。得られた観測スペクトルには、一部ゼロレベルにずれが見られるなどの問題がありこれについては現在調査中であるが、おおむね良好なデータが得られている。観測されたスペクトルの一例を図22に示す。オゾン他、フロンが分解して生成するHCl、HF、ClO、NO₂、オゾン層破壊にとって重要なHNO₃、トレーサーとして重要N₂O、CH₄、その他COやC₂H₆の吸収スペクトルが得られた。

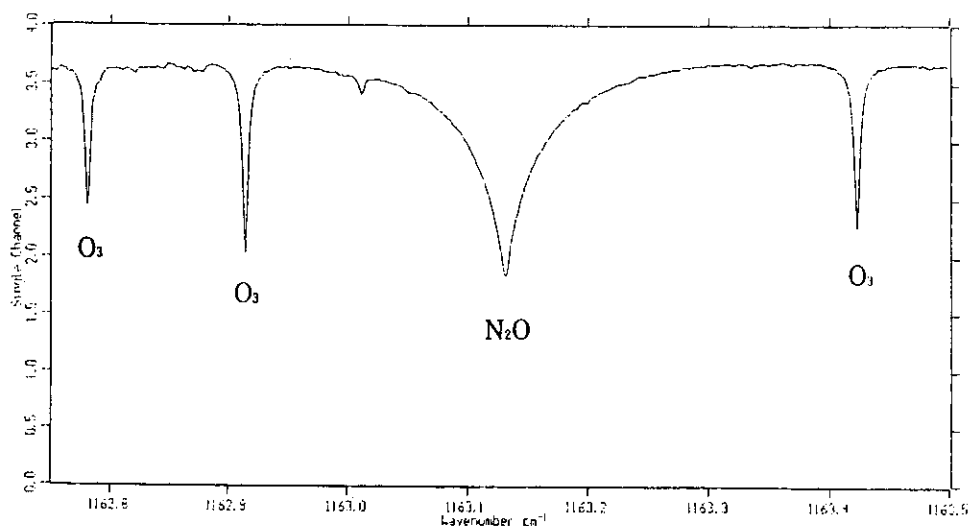


図 2 2 FTIRによって観測された、太陽光を光源とした赤外吸収スペクトルの一例。

9. まとめ

極域・中緯度域相互作用とオゾン層変動の関連について解明するために重要なポイントとしてはじめに、

- (1) 極渦内のオゾン減少の把握、
- (2) 中緯度地域が極渦の影響を受ける頻度と程度、
- (3) 極渦の影響とオゾン及びオゾン破壊関連物質の関係、

をあげた。(1)については、ヤクーツクオゾンゾンデ観測、欧州との共同研究であるオゾンゾンデMatchによって明らかにしたが、1997年の北極域オゾン破壊についてはILAS-Matchによっても裏付けられている。(2)については、ECMWF客観解析データを用いて十分に把握することができた。また、この解析を通じて、極渦の年々変動についても明らかにすることができた。(3)については、極渦が中緯度の観測点の上空に到来したという、現象が明瞭なケースについて明らかにすることができた。1996年4月中旬-下旬のケースでは、極渦の到来をECMWFの予報データに基づいて予測した上で、母子里のオゾンゾンデ観測と陸別のFTIRによる赤外分光観測を重点的に行った。事後のデータ解析についても、三次元気象データであるECMWF客観解析データによる渦位解析やトラジェクトリー解析を活用した他、三次元化学輸送モデルを利用した。いずれも我が国で最初の試みであった。このようなデータ解析技術の蓄積がILASデータの解析にも生かされた。また、NCEP再解析データによる渦位解析を1972年までさかのぼることによって、北海道への極渦到来時の参照データを得ることができ、1996年までの人為的な塩素・臭素化合物の蓄積により、北海道上空に極渦が到来した時にはオゾンが最大50%から60%減少していることを明らかにした。

今後の課題としては、観測点が極渦内部に入ったというような明瞭で且つ希なケースだけではなく、頻度が高い極域・中緯度相互作用について解明する必要がある。これはおそらく高度15km付近の下部成層圏で見られるのではないかと考えている。さらに、数10年規模で極渦の変動と中緯度への影響の特徴を明らかにし、将来予測に示唆するものを捉えて行く必要がある。

10. 引用文献

- 1) Nash, E. P., P. A. Newman, J. E. Rosenfield and M. Schoeberl, An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *J. Geophys. Res.*, 101, 9471-9478(1996).
- 2) Bodeker, G., Private communication.
- 3) Rex, M., P. von der Garthen, G. O. Braathen, N. R. P. Harris, E. Reimer, A. Beck, M. Chipperfield, R. Aler, R. Kruker-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 1994/1995 as determined by the Match technique, *J. Atmos. Chem.*, in press, 1999.
- 4) Rex, M., N. R. P. Harris, P. von der Garthen, R. Lehmann, G. O. Braathen, E. Reimer, A. Beck, M. P. Chipperfield, 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 1995-1996 Arctic winter, *Nature*, 389, 835-838, 1997.
- 5) Schulz, A., J. Steger, M. Rex, N. R. P. Harris, G. O. Braathen, E. Reimer, R. Alfier, A. Beck, M. Alpers, J. Cisneros, H. Claude, H. De. Backer, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, S. Godin, G. Hansen, Y. Kondo, E. Kosmidis, E. Kyro, J. Molyneux, G. Murphy, H. Nakane, C. Parrondo, F. Ravegnani, C. Varotsos, C. Vialle, V. Yushkov, C. Zerefos and P. von der Garthen, Match observations in the Arctic winter 1996/1997: High stratospheric ozone loss rates correlate with low temperatures deep inside the polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, submitted, 1999.
- 6) Nakajima, H., X. Liu, I. Murata, Y. Kondo, F. J. Murcray, M. Koike, Y. Zhao and H. Nakane, Retrieval of vertical profiles of ozone from high-resolution infrared solar spectra at Rikubetsu, Japan, *J. Geophys. Res.*, 102, 29981-29990, 1997.
- 7) Rinsland, C. P., R. E. Boughner, J. C. Larsen, G. M. Stokes, and J. W. Brault, Diurnal variations of atmospheric nitric oxide: Ground-based infrared spectroscopic measurements and their interpretation with time-dependent photochemical model calculations, *J. Geophys. Res.*, 89, 9613-9622, 1984.
- 8) Rinsland, C. P., B. J. Connor, N. B. Jones, I. Boyd, W. A. Matthews, A. Goldman, F. J. Murcray, D. G. Murcray, S. J. David, and N. S. Pougatchev, Comparison of infrared and Dobson total ozone columns measured from Lauder, New Zealand, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 1025-1028, 1996.
- 9) Rothman, L. S., R. R. Gamache, R. H. Tipping, C. P. Rinsland, M. A. H. Smith, D. C. Benner, V. M. Devi, J.-M. Flaud, C. Camy-Peyret, A. Perrin, A. Goldman, S. T. Massie, L. R. Brown, and R. A. Toth, The HITRAN molecular database Edition of 1991 and 1992, *J. Quant. Spectros. Radiat. Transfer*, 48, 469-507, 1992
- 10) Murata, I., Y. Kondo, H. Nakajima, M. Koike, Y. Zhao, W. A. Matthews, and K. Suzuki, Accuracy of total ozone column amounts observed with solar infrared spectroscopy, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 77-80, 1997.
- 11) Koike, M., Y. Kondo, W. A. Matthews, P. V. Johnston, and K. Yamazaki, Decrease of stratospheric NO₂ at 44N caused by Pinatubo volcanic aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 1975-1978, 1993.
- 12) Koike, M., Y. Kondo, W. A. Matthews, P. V. Johnston, H. Nakajima, A. Kawaguchi, H. Nakane, Y. Sasano, I. Murata, A. Budiyo, M. Kanada, and N. Toriyama, Assessment of the uncertainties in the NO₂ and O₃ measurements by visible spectrometers, *J. Atmos. Chem.*, 32, 121-145, 1999.
- 13) Rodgers, C. D., Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys.*, 14, 609-624, 1976.
- 14) Connor, B. J., D. E. Siskind, J. J. Tsou, A. Parrish, and E. E. Remsberg, Ground-based microwave observations of ozone in the upper stratosphere and mesosphere, *J.*

- Geophys. Res, 99, 16757-16770, 1994.
- 15) Keating, G. M., M. C. Pitts, and D. F. Young, Ozone reference models for the middle atmosphere, Adv. Space Res., 10, 317-355, 1990.
- 16) Garcia, R. R., and S. Solomon, The effect of breaking gravity waves on the dynamics and chemical composition of the mesosphere and lower thermosphere, J. Geophys. Res., 90, 3850-3868, 1985.
- 17) Murayama, Y., T. Tsuda, and S. Fukao, Seasonal variation of gravity wave activity in the lower stratosphere observed with the MU radar, J. Geophys. Res., 99, 23057-23069, 1994.
- 18) Nedoluba, G. E., R. M. Bevilacqua, R. M. Gomez, D. L. Thacker, W. B. Waltman, and T. A. Pauls, Ground-based measurements of water vapor in the middle atmosphere, J. Geophys. Res., 100, 2927-2939, 1995.
- 19) Nagahama, T., H. Nakane, Y. Fujunuma, M. Ninomiya, H. Ogawa and Y. Fukui, Ground-based millimeter-wave observations of ozone in the upper stratosphere and mesosphere over Tsukuba, submitted to Earth. Planets and Space, 1999.
- 20) Nakane, H., S. Hayashida, Y. Sasano, N. Sugimoto, I. Matsui and A. Minato, Vertical profiles of temperature and ozone observed during DYANA campaign with the NIES ozone lidar system at Tsukuba, J. Geomag. Geoelectr., 44, 1071-1083, 1992.

[国際協同研究等の状況]

研究計画名 ; WCRP / SPARC

連携状況 ; 運営委員会によってcontributing projectと認定された。

研究計画名 ; THSEO (Third European Stratospheric Experiment on Ozone)hange)

カウンターパート ; EU、ロシア中央大気観測所 (CAO)

連携状況 ; データの交換、気象データ (予報を含む) の取得、連携したオゾンゾンデ観測、オゾンレーザーレーダー観測等の協力を実施した。

研究計画名 ; NDSC (Network for the Detection of Stratospheric Change)

カウンターパート ; International

連携状況 ; Steering Committee Meeting等の開催、データの集積、観測・解析技術の交換

[研究成果の発表状況]

(1) 口頭発表

- ① Nakane, H., T. Ogawa, Y. Kondo and V. U. Khattatov, NASDA and EA project to clarify the ozone depletion mechanisms in North-Eastern Asia region, IGAC SPARC GAW global Meas. Syst. Atmos. Compos., Tronto, 1997.
- ② Nakane, H., Y. Kondo, H. Nakajima, M. Ninomiya and S. Kournossenko, Variation of

ozone in 1996 and 1997 in Hokkaido: Relation with polar vortex, Arctic ozone workshop, Tokyo, 1998.

- ③Nakajima, H., FTIR measurement at Hokkaido, Arctic ozone workshop, Tokyo, 1998.
- ④Ninomiya, M. and H. Nakane, On the boundary behaviors of the Arctic polar vortex, 1998 Fall Meeting, AGU, San Francisco, 1998.
- ⑤Nagahama, T., H. Nakane, M. Ninomiya, H. Ogawa and Y. Fukui, Ground-based millimeter-wave monitoring of ozone in the upper stratosphere and mesosphere at Tsukuba, Japan, IUGG99, Birmingham, 1999.
- ⑥Nakane, H. A. Kournossenko, A. Lukyanov, H. Akiyoshi and M. Ninomiya, Interannual variability of Arctic polar vortex and its effects on ozone, IUGG99, Birmingham, 1999.
- ⑦Rex, M., et al., Ozone loss in the Arctic stratosphere as observed by Match, IUGG99, Birmingham, 1999.
- ⑧Nishida, M., et al., Verification of GPS/MET temperature profiles with radiosonde and lidar measurements, IUGG99, Birmingham, 1999.

(2) 論文発表

- ①Nakajima, H., X. Liu, I. Murata, Y. Kondo, F. J. Murcray, M. Koike, Y. Zhao, and H. Nakane :Retrieval of vertical profiles of ozone from high - resolution infrared solar spectra at Rikubetsu, Japan, J. Geophys. Res., 102, D25, 29981-29990(1996).
- ②Rex, M., N. R. P. Harris, P. von der Garthen, R. Lehmann, G. O. Braathen, E. Reumer, A. Beck, M. P. Chipperfield, R. Alfier, M. Allaart, F. O'Conor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, M. Gill, 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).
- ③Knudsen, B. M., N. Larsen, I. S. Mikkelsen, J.-J. Morcrette, G. O. Braathen, E. Kyro, H. Fast, H. Gernandt, H. Kanzawa, H. Nakane, et al., Ozone depletion in and below the Arctic vortex for 1997, Geophys. Res. Lett., 25, 627-630(1998).
- ④Yushkov, V., V. Dorokhov, I. Zaitcev, V. Bekorjukov, A. Lukyanov, N. Zvetkova, S. Merkolov, H. Nakane and T. Ogawa.
A comparison of ozone, hygrometry and thermal tropopause heights over Yakutsk in 95/96, 96/97 winter-spring period, Air pollution research report 66, Polar stratospheric ozone 1997, Proceedings of the fourth European symposium 22 to 26 September 1997, Schliersee, Bavaria, Germany, 231-234(1998).
- ⑤Yushkov, V., V. Dorokhov, N. Zvetkova, A. Lukyanov, I. Zaitcev, S. Merkolov, H. Nakane,
Some results of balloon ozone, aerosol and water vapor sounding at Yakutsk

station obtained in winter-spring 96/97 in comparison with the previous years. Air pollution research report 66, Polar stratospheric ozone 1997, Proceedings of the fourth European symposium 22 to 26 September 1997, Schliersee, Bavaria, Germany, 235-238(1998).

- ⑥ Lukyanov, A., V. Yushkov, H. Nakane and H. Akiyoshi, Ozone loss rate from box model studies and ozone sonde data along the air mass trajectories arriving at Yakutsk station in winter-spring season. Some results of balloon ozone, aerosol and water vapor sounding at Yakutsk, Air pollution research report 66, Polar stratospheric ozone 1997, Proceedings of the fourth European symposium 22 to 26 September 1997, Schliersee, Bavaria, Germany, 297-300(1998).
- ⑦ Yushkov, V., V. Dorokhov, V. Khattatov, A. Lukyanov, I. Zaitcev, N. Zvetkova, H. Nakane, H. Akiyoshi and T. Ogawa, Evidence of ozone depletion over Yakutsk, Eastern Siberia, in 1995, Atmospheric Ozone, Proceedings of the XVIII Quadrennial ozone symposium, 241-244, 1998.
- ⑧ Koike, M., Y. Kondo, W. A. Matthews, P. V. Johnston, H. Nakajima, A. Kawaguchi, H. Nakane, Y. Sasano, I. Murata, A. Budiyo, M. Kanada, and N. Toriyama, Assessment of the uncertainties in the NO₂ and O₃ measurements by visible spectrometers, J. Atmos. Chem., 32, 121-145, 1999.
- ⑨ Murata, I., Y. Kondo, H. Nakajima, M. Koike, Y. Zhao, W.A. Matthews, and K. Suzuki, Accuracy of total ozone column amounts observed with solar infrared spectroscopy, Geophys. Res. Lett., 24, 77-80, 1997.
- ⑩ Schulz, A., J. Steger, M. Rex, N. R. P. Harris, G. O. Braathen, E. Reimer, R. Alfier, A. Beck, M. Alpers, J. Cisneros, H. Claude, H. De. Backer, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, S. Godin, G. Hansen, Y. Kondo, E. Kosmidis, E. Kyro, J. Molyneux, G. Murphy, H. Nakane, C. Parrondo, F. Ravagnani, C. Varotsos, C. Vialle, V. Yushkov, C. Zerefos and P. von der Garthen, Match observations in the Arctic winter 1996/1997: High stratospheric ozone loss rates correlate with low temperatures deep inside the polar vortex, Geophys. Res. Lett, submitted, 1999.
- ⑪ Nagahama, T., H. Nakane, H. Ogawa and Y. Fukui, Ground-based millimeter-wave observations of ozone in the upper stratosphere and mesosphere at Tsukuba and Nagoya. Advances in Space Research, in press, 1999.
- ⑫ Fukui, Y., H. Ogawa, K. C. Xiao, Y. Iwasaka, H. Nakane and T. Nagahama, Ground-based millimeterwave instrument for measurement of stratospheric ClO using a superconductive (SIS) receiver, Advances in Space Research, in press, 1999.
- ⑬ 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, Advances in Space Research, in press, 1999.