

成層圏オゾン層変動のモニタリングと 機構解明プロジェクト

(中間報告)

Ozone Layer Research Project

平成 13~ 14年度

FY 2001~ 2002

成層圏オゾン層変動のモニタリングと機構解明プロジェクト

平成
13
~
14
年
度

NIES



独立行政法人 国立環境研究所
NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES
<http://www.nies.go.jp/index-j.html>

国立
環境
研究
所

国立環境研究所特別研究報告

Report of Special Research from the National Institute for Environmental Studies, Japan

SR - 55 - 2003

成層圏オゾン層変動のモニタリングと 機構解明プロジェクト

(中間報告)

Ozone Layer Research Project

平成13～14年度

FY 2001～2002

独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

重点特別研究プロジェクト「成層圏オゾン層変動のモニタリングと機構解明」
(期間 平成13～14年度)

プロジェクト責任者：笹野泰弘
プロジェクト幹事：今村隆史
報告書編集担当：今村隆史

序

本報告書は、平成13～17年度の5カ年の予定で実施されている重点特別研究プロジェクト『成層圏オゾン層変動のモニタリングと機構解明』の平成13～14年度、前期2年間の研究成果を取りまとめたものです。

成層圏オゾン層破壊の問題は、現象の理論的予言とその発見がなされ、科学的知見とそのリスク評価に基づいた国際的な枠組みでの政策（規制）決定、さらにはその対応すべき対策技術の開発の実施、といったシステムが始めて機能した地球環境問題です。当国立環境研究所では環境省（環境庁）と連携し、つくばにおいてオゾンレーザーレーダーによるオゾン層の監視を1986年よりスタートし、また地球環境観測技術衛星「みどり」に搭載されたオゾン層監視センサ「改良型大気周縁赤外分光計（ILAS）」によるオゾン層の観測を1996年11月から1997年6月まで行ってきました。

フロン・ハロンの規制を軸とした国際的なオゾン層保護対策の実施の結果、オゾン層の存在する成層圏においても、有機塩素・臭素化合物濃度はピークを迎え、緩やかな減少傾向に転ずるステージにいたっています。視点を変えますと、フロン・ハロン濃度が最も高いこの時期はオゾン層が極めて破壊されやすい時期に相当していると思えます。また、成層圏においてフロン・ハロン以外の化学物質の濃度や分布はオゾンホール出現以前の状況と既に異なっています。それ故、オゾン層破壊の現状と今後の変動を把握し、そのオゾン層の変動を如何に予測できるかが、今問われています。

本課題では、平成14年12月に打ち上げられた地球環境観測技術衛星「みどりII」に搭載されたオゾン層監視センサ「改良型大気周縁赤外分光計II型（ILAS-II）」によって取得される成層圏オゾンや各種のオゾン層破壊関連物質に関するデータを、高品質で信頼性の高いデータとして国内外の成層圏研究者に提供することを第一の目的としています。また、ILAS-II観測以外につくばや北海道・陸別でのオゾンモニタリングデータの提供も行うと共に、これまで取得したデータの解析を通して、オゾン層破壊の機構解明を目指し研究を推進してきました。さらに、数値モデルの開発とその利用を通し、これまでのオゾン層変動の原因を説明すると共に、今後のオゾン層の変動予測も、目標とした研究を行っています。研究成果の一部はWMO/UNEPのオゾン科学アセスメントパネルの報告書などに引用されるなど、成果の社会への還元努力も実りつつあります。

本重点特別研究プロジェクトは研究半ばではありますが、中間報告としてこれまでの研究過程とその成果を公表することで、今後の研究を展開するための貴重なご意見を各方面よりいただけることを期待しています。

平成 15 年11月

独立行政法人 国立環境研究所
理事長 合 志 陽 一

目 次

1	研究の目的と経緯	1
2	研究の成果	2
2.1	オゾン層の監視	2
2.1.1	ILASの検証解析	2
2.1.2	ILAS-II	5
2.1.3	地上観測	9
2.2	極域でのオゾン層破壊	14
2.2.1	極域成層圏雲の同定および組成の推定	14
2.2.2	反応性窒素酸化物の分布と極域成層圏雲の形成過程	17
2.2.3	オゾン破壊速度	21
2.2.4	北極における水蒸気の不可逆的除去（脱水過程）	24
2.2.5	極渦活動度の長期変動の解析	25
2.3	中緯度オゾンの変動	27
2.3.1	夏期の北半球中高緯度オゾン，亜酸化窒素の挙動	27
2.3.2	極渦崩壊時の高緯度域における微量気体成分の混合	28
2.3.3	化学輸送モデルを用いた極渦崩壊後の亜酸化窒素の混合過程	29
2.3.4	中緯度中間圏オゾンの変動観測	33
2.4	オゾン層のモデリング	34
2.4.1	モデルの概要	34
2.4.2	亜熱帯域のオゾン変動	36
2.4.3	化学気候モデルとCO ₂ 漸増実験	37
	引用文献	40
	[資 料]	
	研究の組織と研究課題の構成	45
1	研究の組織	45
2	研究課題と担当者	45
	研究成果発表一覧	46
1	誌上発表	46
2	口頭発表	50

1 研究の目的と経緯

成層圏オゾン層の保護対策として、モントリオール議定書などに基づいた有機塩素・臭素化合物（フロン・ハロン類など）の規制が既に行われている。その結果、対流圏での全有機ハロゲン濃度は1990年代半ばにピークを迎え、その後は緩やかな減少傾向に転じるにいたった。対流圏と成層圏との空気の交換による時間的な遅れ（3～6年）を考慮すると、成層圏におけるハロゲン濃度は2000年ごろにピークに達したものと考えられる。言い換えれば、本中期計画期間（2001～2005年度）は、成層圏でのハロゲン濃度が最も高い、すなわちオゾン層が極めて破壊されやすい時期に相当する。

既に放出され大気中に蓄積されている多くのハロゲン化合物の大気中寿命が50～100年程度であることから、今後その放出がゼロと考えても、その大気中濃度の減少は年1～2%程度に留まる。実際、多くのフロン・ハロン類の地表面濃度の減少は（今なお、放出があることも一因ではあるが）、1%以下である。一方、温室効果気体（CO₂、N₂O、メタン、水蒸気）などの成層圏中の濃度は、現在既にオゾンホール出現前とは大きく異なっている。例えばCO₂は1980年から2000年の間に平均で337から369 ppmvに増加（年平均0.5%程度の増加に対応）している。CO₂の増加は成層圏の冷却化をもたらす、極成層圏雲（PSC）の生成と不均一反応確率の増加、オゾン破壊の加速をもたらすことでオゾン層の回復を遅らせる、と言った仮説も存在している。言い換えれば、年に0.1～1%程度の増加あるいは減少トレンドを有しかつ成層圏オゾンの生成・消失に影響を及ぼし得る様ないかなる大気組成や気候の変化もオゾン層破壊物質の規制の効果を打ち消す可能性があり、今後のハロゲン濃度の減少に呼応してオゾン層が率直に回復する保証はない。よって、ハロゲン濃度が横ばいとなっている現在でもオゾン層破壊は深刻化しているのか、温室効果気体をはじめとする大気組成の変化が今後のオゾン層の回復にどのような影響を及ぼすのか、の疑問に答えることが、ハロゲン物質の規制を軸に行われてきたオゾン層保護政策の効果と今後温暖化対策とオゾン層対策の効果的融合を考える上で重要である。

上記の社会的要請を考慮して、本重点特別研究プロジェクトの目的として、オゾン層変動の監視、オゾン層変動機構の解明に資するデータの国内外への提供と機構解明にかかわる科学的知見の蓄積、将来のオゾン層変動の

予測とその検証に貢献することを中期計画の中でうたっている。その具体的な目標とアプローチは次の通りである。

オゾン層の破壊は、南極オゾンホールで代表される様に極域成層圏で最も顕著である。極域オゾン層の破壊は、極域の空気と中緯度域の空気との混合過程を通して、中緯度成層圏のオゾン濃度にも影響を与える。極域でのオゾン層破壊の機構解明には、高頻度で詳細な観測とそのデータ解析やモデルとの比較が極めて有力な研究手段と考えられる。高頻度で詳細な観測手段として、衛星観測は最も有力な手法である。環境省（環境庁時代も含む）が開発を担当しているILAS/ILAS-IIセンサはまさに高頻度に極域オゾンの監視を行うもので、得られる観測データの活用が期待される。衛星観測は巨額の資金を投入するプロジェクトであり、そのアウトプットは世界の研究者が共有すべき貴重な知的財産である。よって本重点特別研究プロジェクトの目標の一つは、ILAS/ILAS-IIデータを高品質で高い信頼性を有するデータとして世界に提供することにある。また、既存の観測データや気象データに加え、ILAS/ILAS-IIによって取得したデータを活用した極域オゾン層破壊の進行の有無の検出と破壊機構の解明が第二の目標である。

オゾン層破壊は極域のみの問題ではない。日本も位置する中緯度域は多くの人口を抱えており、中緯度でのオゾン層破壊の影響評価や今後の対策・紫外線予防などを考える上でも中緯度での長期のオゾン減少トレンドを理解する必要がある。しかし中緯度成層圏オゾンは、その領域内での化学的なオゾン分解以外に、極域や低緯度からの空気塊の輸送も影響するため短期的な変動が激しく、長期変動を理解するためには注意深い観察・解析が必要である。そのため、観測が手薄なアジア地域での貴重な観測点として国際的な観測ネットワークとの協力のもと、高品質な地上モニタリングデータの提供を目標の一つとしている。

今後のオゾン層保護対策立案や温暖化対策とのベストミックスを考える上でオゾン層変動の将来予測は避けて通ることができない。そこで、本重点特別研究プロジェクトでは、温室効果気体の長期変動の効果を定量化するために、成層圏での化学・力学・放射プロセスを陽に含んだモデルの開発と数値モデル実験を通じたオゾン層の長期変動予測を行うことを目標としている。

2 研究の成果

2.1 オゾン層の監視

オゾン層の監視として本重点特別研究プロジェクトでは、衛星からの観測（ILASおよびILAS-II観測）ならびに地上からの観測を行っている。ここでは衛星観測に関して、2.1.1項と2.1.2項で各々、1996年11月から1997年6月まで観測が行われたILASの検証解析と2003年4月より準定常運用に入るILAS-IIのデータ処理運用システムを中心にその成果を述べる。また2.1.3項で地上からのオゾン層のモニタリングに関する成果を紹介する。

2.1.1 ILASの検証解析

改良型大気周縁赤外分光計（Improved Limb Atmospheric Spectrometer; ILAS）は、「みどり」（ADEOS: Advanced Earth Observing Satellite）衛星に搭載された太陽掩蔽法のセンサで、1996年11月から1997年6月までの約8カ月にわたり、両極域（北緯57.1～72.7度、南緯64.3～88.2度）において、オゾン、硝酸、水蒸気等の成層圏大気微量成分およびエアロゾルの高度分布を観測した。ILAS取得データから様々な大気成分の情報を抽出するために開発されたデータ処理アルゴリズムの妥当性の検証は、ILAS観測と時間的・空間的にみて一定の一致基準（例えば、300 km, 12時間以内）を満たした観測データ（検証データ）とILASデータを比較し、矛盾が生じていないかを確認することによって行われる。検証データとしては、コア検証実験データや協力実験データあるいは公にデータ取得が可能なデータベースを利用した。本中期計画以前に既にバージョン4.2（1999年7月）が登録研究者向けに提供されていた。しかし、バージョン4.2で処理されたオゾンなどの高度分布は、季節によって、検証データとの一致度合いが変化していることが見いだされており、これを解消すべく、新しいバージョンでは接線高度決めに工夫を加えてバージョン5.2として2002年1月に一般研究者にデータ提供を開始した。提供したデータは、オゾン（ O_3 ）、硝酸（ HNO_3 ）、可視波長でのエアロゾル消散係数に加えて、二酸化窒素（ NO_2 ）、亜酸化窒素（ N_2O ）、メタン（ CH_4 ）、水蒸気（ H_2O ）の7化学種である。さらに2003年3月には、接線高度決めの修正や放射伝達計算フォワードモデルに利用している気温・気圧プロファイルの高高度領域の改訂などを盛り込んだバージョン6.0を登録研究者向けに提供した。このバージョン

では、硝酸塩素（ $ClONO_2$ ）、五酸化二窒素（ N_2O_5 ）、CFC-12（ CF_2Cl_2 ）を新たに提供している。具体的なILAS導出アルゴリズムや高度決めの方法論は省略し、ここではILASデータの検証解析結果についてのみ述べる。

(1) バージョン5.2オゾン

Ver.5.20のILAS導出アルゴリズムによって得られたオゾンデータは、HALOE（Halogen Occultation Experiment）Ver.19、SAGE II（Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II）Ver.6及びPOAM II（Polar Ozone and Aerosol Measurement II）Ver.6の各導出アルゴリズムによって得られた他の衛星データならびにオゾンゾンデ、気球あるいは航空機搭載機器および地上設置機器によって得られたデータと比較された。ILASで観測された緯度領域と検証データとして用いた観測地点との比較を図1に示す。

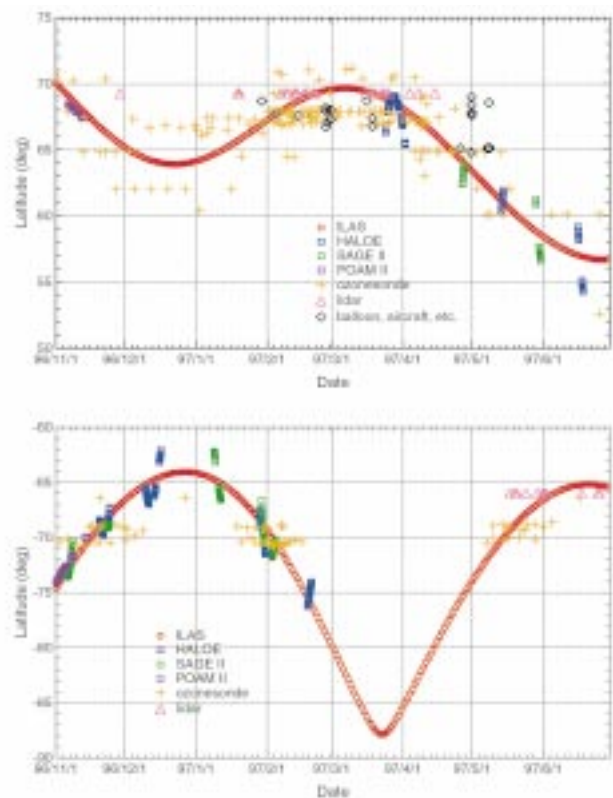


図1 ILASデータと検証データの観測緯度
上のパネルは北半球。下のパネルは南半球。

なお、ILASおよび検証実験の時間および水平方向の一致基準としては、衛星データに関しては ± 12 時間、

300 kmを、オゾンゾンデとの比較では±12時間、500 kmを、また気球や航空機搭載機器ならびに地上設置機器との比較の場合は、±12時間、1,000 kmとした。また高度方向の比較では、1 kmごとの比較を基本とした。さらにUKMO（英国気象局）提供の全球成層圏同化データをもとに、各高度、時間での渦位を求め渦位の差が15%以内にあることを追加条件とした。これは、極渦が発達している時期においては、観測地点が極渦内か外か、あるいは極渦の縁に近い部分かによってオゾン濃度が大きく異なるためである。

この様な一致判定条件を満たした検証データとILASデータとの比較を行った結果の例として、ILASと同じく衛星観測のデータであるHALOE Ver.19との比較を示す。図1から分かる様に、北半球では1997年の3月後半から6月中旬にかけて、また南半球では1996年の11月中旬から1997年2月中旬にかけてのデータの比較が可能であった。図2にILASおよびHALOEのオゾン混合比の高度分布ならびに相対値差を示す。ここで相対値差（以後Dと略す）は次の様に定義する。

$$D(\%) = 100 \times \{O_3(\text{ILAS}) - O_3(\text{HALOE})\} / [\{O_3(\text{ILAS}) + O_3(\text{HALOE})\} / 2]$$

ここで、 $O_3(x)$ は x (=ILAS or HALOE) の観測によって求められたオゾン混合比を表す。図にはILASおよびHALOEデータから導出されたオゾン混合比の平均値と1σ（σは標準偏差を表す）ならびにデータ内の最大値と最小値も合わせてプロットしている。比較を行った11~70 kmの高度領域においてオゾン混合比の絶対値でILASデータとHALOEデータの平均値を比べると、北半球（図2 a）では、0.2 ppmv以内で、また南半球（図2 b）では0.3ppmv以内で一致している。一方相対誤差で比較すると、北半球では求められたDの平均値はほぼ全ての高度で、ILASおよびHALOEのそれぞれの観測誤差から推定される誤差領域（RSSと略す）内にあることが分かる。南半球では高度15~45 kmの領域ではDの平均値はほぼ10%以内であり、RSSの範囲内にある。しかしながら、高度30~51 kmにかけてDが単調に増加する傾向にあり、特に高度48~55 kmの領域でRSSを超えていることから、ILASデータに何らかのバイアスが存在している可能性も否定できない。また、63 km以上の高度ではD値がRSS内にあるものの大きく振動している。これはILASのオゾンデータそのものが63 km以上の高度領域で振動していることが主な原因と考えられる。一方、

南半球下部のデータは14 km以下でD値は増加し、比較を行った最低高度である9 kmでは50%を超えるにいった。しかしながら、その様な低高度でのオゾン混合比自身が0.2 ppmv程度と低く、ILASデータの精度自体が0.1 ppmv程度の誤差を有する。このことが低高度で大きなD値が現れた原因であろう。よって、HALOEとの比較からは、ILASバージョン5.2データには南半球50 km付近で正のバイアスが存在する可能性が示唆されたことや0.4 ppmvを下回るようなオゾン混合比の小さい領域を除くと、高度11~64 kmの領域において検証データと±10%以内で一致していることが分かった。ほぼ同様の結果は他の衛星観測であるSAGE IIやPOAM IIのデータとの比較でも認められた。

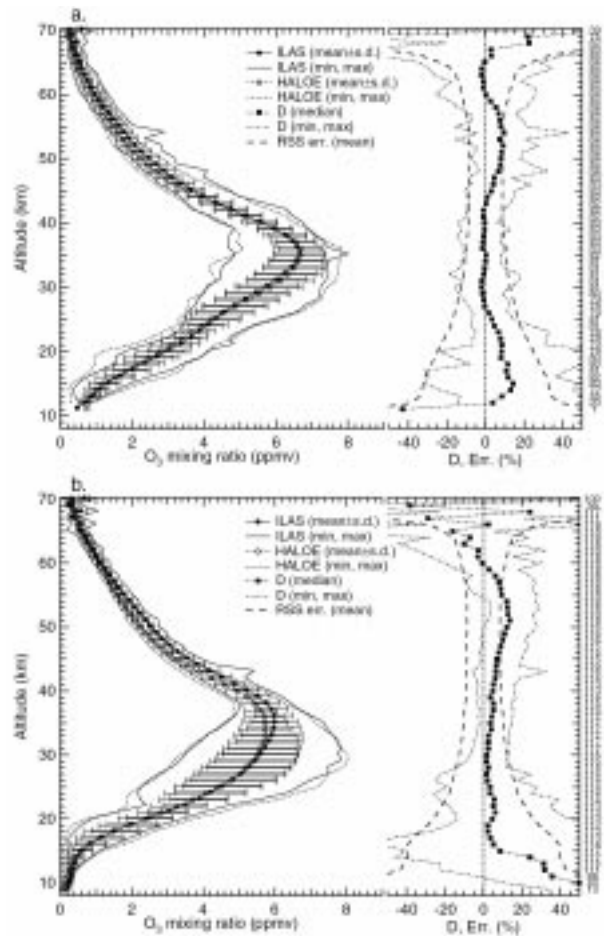


図2 上のパネルは北半球でILASとHALOEにより観測されたオゾン混合比の高度分布
右側はILASとHALOEの相対値差D（詳細は文中）と測定誤差の統合値RSSの高度分布。下のパネルは南半球であることを除き上のパネルに同じ。

下部成層圏でのオゾンの観測において最も信頼性の高いと考えられているオゾンゾンデデータの比較を行った結果、比較した9~30 kmの高度領域で南北両半球にお

ける相対値差DがILASおよびオゾンゾンデそれぞれの誤差から推定される誤差RSSの範囲内に収まっていることが分かった。ILAS-HALOEの比較の中でも認められた、高度が低くなるに従いILASがやや大きめのオゾン混合比を与える特徴は、ILAS-オゾンゾンデの比較でも認められたが、ILAS-HALOEの時と同様、その程度は小さい。同様にILASデータは気球や航空機搭載機器ならびに地上設置機器との比較も行われた、ILAS-オゾンゾンデの比較とほぼ同じ傾向であることが確認された。

この他、月ごとに分けてのILASデータと検証データとの比較やILAS-HALOE/SAGE IIで見られた相対値差Dの観測時間差依存性なども調べた。それらの結果も含め、今回の検証研究から確かめられたILASのオゾンデータの信頼性は次の通りである。

- ・南半球の1月の高度45~55 kmの領域でILASデータが他の衛星データ（HALOEとSAGE II）に比べ、RSS誤差範囲を超えてやや高めの混合比を与える点を除けば、11~64 kmの高度領域におけるILASデータと各種検証データとはRSS誤差範囲内で一致することが確認できた。定量的には、高度21 kmから64 kmにかけてマイナス8%からプラス12%の相対値差の範囲であることが分かった。高度20 km以下では、例外的に相対値差が20%を超える場合が存在するが、その絶対値差としては0.2 ppmv程度と非常に小さく、それら高度でのオゾン混合比自体が低濃度（0.5~1.0 ppmv以下程度）になることに起因する。
- ・高度45~55 km領域で他の2つの衛星データとの比較から認められた正のバイアスの程度（規模）は、観測地方時の差に依存する（空間的な差にはほとんど依存しない）ことが認められた。このことは観測地方時と関係がある何らかのILASデータ処理側の問題に起因していることが考えられる。この原因に関しては今後のさらなる研究が必要である。

(2) バージョン5.2 水蒸気

バージョン5.2の水蒸気データの比較検証は、(i) ILAS検証の気球キャンペーン、(ii) POLARIS (Photochemistry of Ozone Loss in the Arctic Region in Summer) キャンペーンで実施された航空機による観測、(iii) 利用可能な衛星観測であるHALOE Ver. 19 および SAGE Ver. 6の観測データを用いて行われた。

気球キャンペーンはスウェーデンのKirunaおよびアラスカのFairbanksで1997年2月から5月にかけて実施され、Lyman- 発光水蒸気計、露点水蒸気計、太陽遮蔽FTIR分光計、周縁発光検出計の4種類の水蒸気センサーが用いられた。ILASと検証実験の時間的・空間的な差はそれぞれ2~13時間以内、850 km以内であった。個々の検証データとILASデータの比較の詳細は省略し、全ての検証実験とILASの結果の比較を図3に示す。図3には極渦内および極渦外のデータも合わせて示している。なお図中の実線はILASデータ=検証データとなる傾き1の直線である。この図からも明らかな様に、ILASデータは気球観測データと1:1の良い相関を示していることが分かる。例外的に1:1の相関から逸脱しているデータが見られるが、これらは基本的にお互いの観測が行われた空気塊の渦位の違いに起因している。

他の衛星観測との比較では、全体的にほとんどの高度領域において、相対値差Dは10%未満と、非常に良く一致している。また、南極、北極ともに下部成層圏で類似した鉛直構造を示しているのが分かった。

その他の検証データとの比較も合わせて評価したILASバージョン5.2水蒸気データの信頼性は次の通りである。

- ・高度15~60 kmでほとんどのケースが10%以内で一致している。
- ・特殊な例外はあるが、全ての比較において20%以内で一致した。

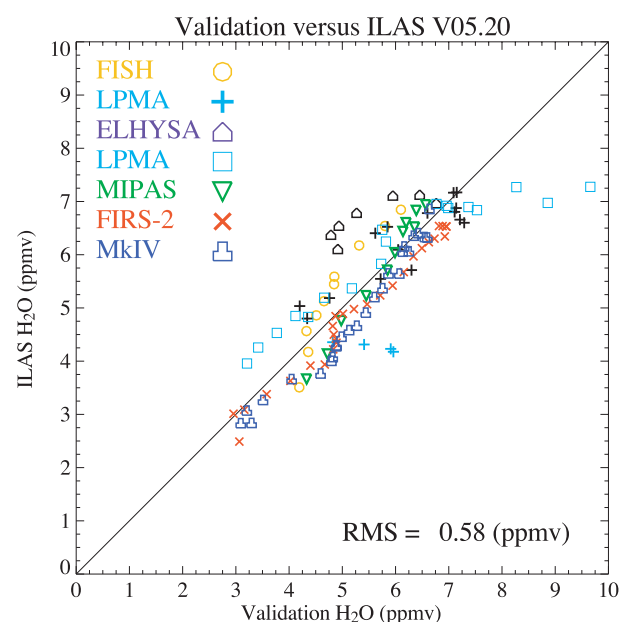


図3 ILASと各種センサによって観測された水蒸気混合比の相関

(3) バージョン5.2 エアロゾル消散係数

バージョン5.2の可視波長(780 nm)でのエアロゾル消散係数の比較検証は、衛星センサSAGE IIのVer. 6.0データを利用した。検証データ抽出の一致基準はお互いの観測が300 km以内、2時間以内であり、1996年11月と1997年2月および5月から各々38, 20, 11のマッチングペアが選ばれた。それらの比較結果から、ILASの消散係数データは、消散係数値が $1 \times 10^5 \text{ km}^{-1}$ よりも大きい高度領域(およそ20~25 km以下)において、10~20%以内でSAGE IIデータと一致していることが確かめられた。

(4) バージョン5.2のその他の微量気体

上記のオゾン・水蒸気と同様にVer.5.20のILAS導出アルゴリズムによって得られた様々な微量気体の検証比較を行った。ここでは、個々の微量成分ごとの検証研究の詳細は省略し、その検証研究の結果について要点のみを記す。

(i) N_2O : 検証気球キャンペーンデータ、飛行観測キャンペーンデータ、地上分光観測および航空機によるリモートセンシングデータ、UARS (Upper Atmosphere Research Satellite) 参照大気データ、と検証比較を行った。その結果、ILASの N_2O の不確かさは、高度10~30 kmでは10%未満、高度40~50 kmでは50%より大きい。これはILAS測定において予想された全誤差に匹敵する値である。

(ii) CH_4 : 検証気球キャンペーンデータ、飛行観測キャンペーンデータ、衛星センサ(HALOE)データとの検証比較を行った。その結果、ILASの CH_4 の不確かさは、正のバイアスが20%を越える冬季の高度15~30 kmを除けば高度10~50 kmで10%未満、高度50~60 kmでは20%より大きい。これはILAS測定において予想された全誤差より小さいか、あるいは匹敵する値である。

(iii) NO_2 : 気球観測キャンペーンデータ、衛星センサ(HALOE, POAM II)データと比較した。その結果、高度25~35 kmにおいて、10~30%で一致した。高度20 kmや45 kmでは、 NO_2 の絶対値自身が低濃度となるため、相対値差は大きくなる傾向が見られた。

(iv) HNO_3 : 検証気球キャンペーンデータと比較を行った。その結果、高度25~30 kmで検証データと0.1 ppbv(0~1%)以内で一致し、ランダムな差は10%以内であった。

(5) バージョン6.0硝酸塩素

2003年3月に新しいバージョン6.0導出アルゴリズムに基づくILASデータの提供が開始された。バージョン6.0では、最新の気体分光パラメータであるHITRAN 2000を利用したデータ処理に関する改良がなされ、硝酸塩素(ClONO_2)、五酸化二窒素(N_2O_5)、 CFC12 (CF_2Cl_2)データを新たに提供することが可能となった。ここでは新たにデータ提供される3つの微量成分の中でも、塩素のリザーバー分子であり、PSC上での不均一反応による活性化に重要である ClONO_2 について記載する。

ClONO_2 は7.6~7.9 μm の波長領域に特徴的な吸収帯を有しているが、バージョン5.2までは使用していたラインパラメータが不完全なものであったため、ILASデータから ClONO_2 データを精度良く抽出することができなかった。最新のバージョン6.0においては、NASA/JPL研究所のGeoff C. Toon博士の編さんした ClONO_2 の擬似ラインパラメータを利用することにより、 ClONO_2 データの導出に成功した。導出された ClONO_2 データの検証データとしては、ILASが観測を行った期間に北極域で行われた ClONO_2 の気球観測(MIPAS-B2, FIRS-2, MkIV)データを利用し、同じ日の800 km以内の条件を満たすデータと比較した。その結果、高度15~30 kmのILAS ClONO_2 データは気球データよりも系統的に20~40%小さいことが分かった。なおILAS観測の精度に関しては、1997年3月に南極点上空を繰り返し測定したILAS観測の ClONO_2 データから、高度15~30 kmにおけるILASの ClONO_2 観測の繰り返し精度は10~40%と決定された。この値は、ILASのデータ処理アルゴリズムから出てくるエラーバーの値よりも、若干小さなものであった。このことは、ILASのエラーバーが、実際のエラーより過大に評価されている可能性がある。

このように、系統的な誤差は残るものの、ILASの観測した ClONO_2 データは、成層圏大気化学で予測される季節変化を良く表しており、十分科学的解析に耐えうるものであるということが分かった。

2.1.2 ILAS-II

(1) ILAS-IIの概要

ILAS-II(改良型大気周縁赤外分光計II型: Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II)は、成層圏のオゾンおよびその破壊反応に関連する大気微量物質を観測するため、1996年に打ち上げられた「みどり」(ADEOS)衛星

搭載の改良型大気周縁赤外分光計（ILAS）の後継機として、環境庁（当時）が1995年から開発を行ってきたオゾン層観測センサである。ILAS-IIはILASの観測を継承するとともに、新たな研究改良を施したセンサである。その特徴は以下の通りである。

（i）オゾン，硝酸，二酸化窒素，一酸化二窒素，メタン，水蒸気，硝酸塩素，エアロゾル等のオゾン層の破壊や回復に関連する多種類の物質の高度分布を同時に測定することが可能である。これらの観測対象は基本的にはILASと同等であるが、新たに3～5.7 μmの波長帯をカバーするチャンネルと、硝酸塩素を対象としたチャンネルを加えている。この改良は、赤外スペクトルから極成層圏雲（オゾン層の破壊のメカニズムに重要なPSCと呼ばれる氷の粒）の組成を推定する際にも重要な情報を与える。

（ii）オゾン層の破壊が特に著しい北極・南極域を重点的に、長期間（3～5年）連続して、気体の高度分布（高度10～60 kmの範囲を1 kmごと）を高精度に観測することが可能である。瞬時視野の高度分解能は、ILASの2 km から1 kmに改善され、より微細な大気の構造

の検出を目指している。

（iii）気体濃度を導出する際に重要な観測高度を容易に決定できるよう、ILAS-IIでは太陽上の視野の位置を正確に求める機構を新たに加えている。さらに、大気圏外での太陽表面の走査機構や強い太陽光を光源としている利点を活かしての赤外の瞬時信号情報の検出など、新たな改良を加えている。

ILAS-IIは、2002年12月14日、宇宙開発事業団の環境観測技術衛星「みどりII（ADEOS-II）」に搭載され、種子島宇宙センターより打ち上げられた。2003年1月には、ILAS-IIはその機能を確認するための「初期チェックアウト」が行われた。引き続き、2003年2月には、観測パラメータを決定するための「早期データ取得」が行われた。これらの結果については、（3）で述べる。ILAS-IIは、2003年4月からは、準定常運用に入り、連続的にデータ取得を行う予定である。

（2）データ処理運用システムの構築

ILAS-IIデータ処理運用システムは、ILAS-IIによって観測されたデータを定常的に処理・解析・保存し、その

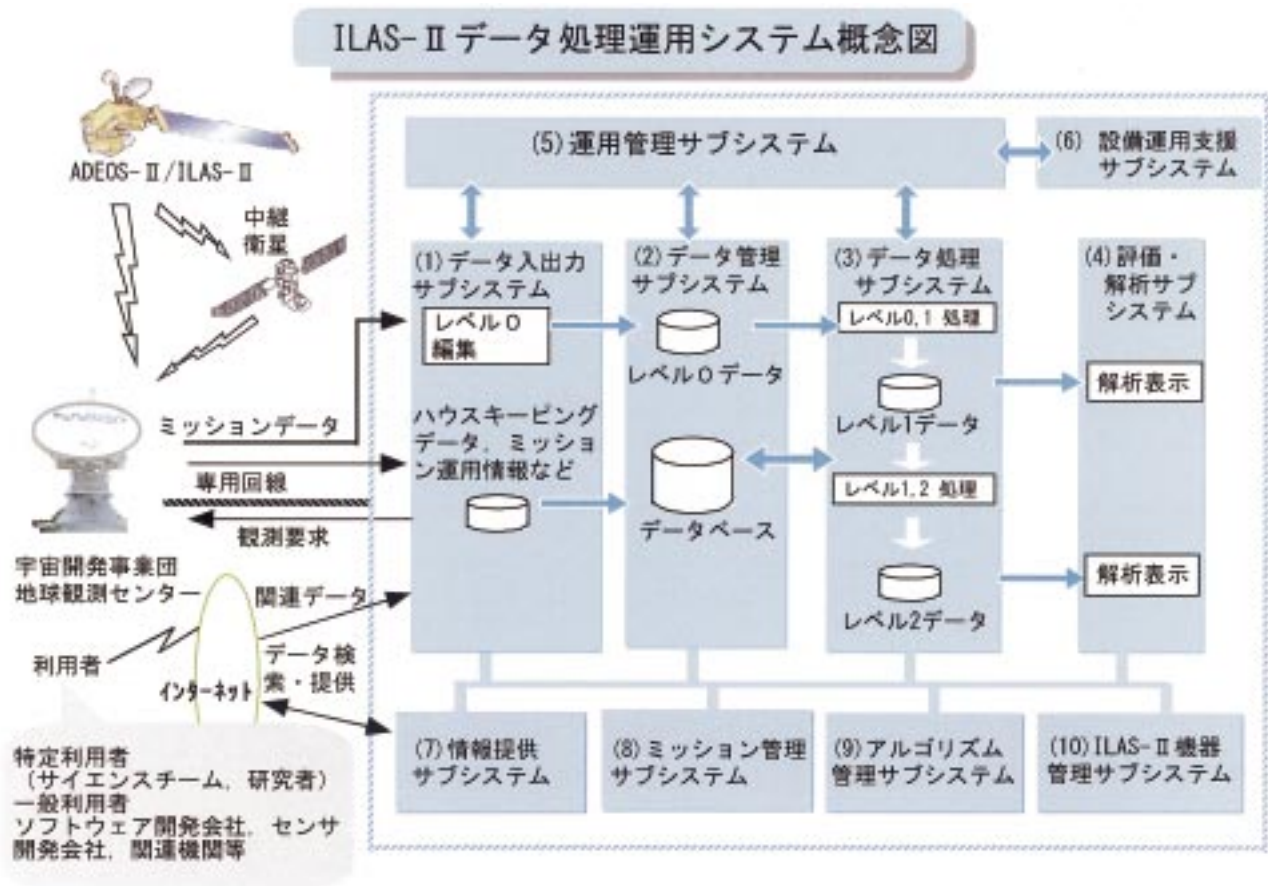


図4 ILAS-IIデータ処理運用システムの機能概要

結果をユーザの要求に応じて検索・配布・提供するために構築されたシステムである。また、当システムは、ILAS-IIの観測ミッションの運用計画の作成や、機器の状態の監視機能も有している。ILAS-IIデータ処理運用システムの機能概要を図4に、そこに示されている各サブシステムの概要を表1に示す。

本研究プロジェクトでは、ILASのデータ処理を通して得られた知見をもとに、システムの改良と、それらの改良に基づく性能試験を2001年と2002年に実施した。この間の研究に基づいて改良された事項は、以下の通りである。

- (i) データ処理バージョンの扱いの改良 (内部ユーザと外部ユーザの扱いを分け、詳細に扱う)
- (ii) 処理モードの切り分け (定常運用モード、再処理モード、研究運用モードの区別と自動化)
- (iii) 高速高精度処理演算のための改良
 - ・ 気体吸収のシミュレーションの際の波長間隔の細分化

- ・ 気体吸収のシミュレーションの際の吸収断面積計算用テーブルの効率化
 - ・ 導出対象気体の変更 (COF₂を対象外としN₂O₅とClONO₂を加える)
 - ・ 吸収ラインパラメータの更新 (HITRAN96からHITRAN2000に変更)
 - ・ 放射伝達の光路計算上 (大気層内分布、データの層境界への内挿等) の改良
 - ・ 参照用標準大気モデルの改良 (新たな微量気体の追加、低高度への対応)
 - ・ 太陽面走査情報に基づく周縁減光および黒点の影響補正
 - ・ 可視チャンネルの観測スペクトルにおける酸素の吸収に基づく気温・気圧情報とベースラインとの同時算出手法
- 気体濃度の導出には、データにエアロゾル散乱の影響が避けられないため、その推定精度が気体導出精度に直接影響する。ILAS-IIでは3 ~ 12 μmの波長域において連

表1 ILAS-IIデータ処理運用システムにおける各サブシステムの概要

サブシステム名	内 容
運用管理サブシステム (SMS: System Management Subsystem)	本システムを正常に運用させるべく本システムの各機能を統括、実行制御するソフトウェア
運用設備支援サブシステム (FSS: Facility Support Subsystem)	オペレータによる日報、設備情報等の監視など日々の作業を支援するソフトウェア
データ入出力サブシステム (DIOS: Data I/O Subsystem)	本システムとNASDA/EOC、その他関係機関とのデータ授受を行うソフトウェア
データ処理サブシステム (DPS: Data Processing Subsystem)	リトリvableアルゴリズムソフトウェアを利用し、レベル0データを解析に適した形式のデータに処理するソフトウェア
データ管理サブシステム (DMS: Data Management Subsystem)	本システムにおけるデータの保存、管理を行うソフトウェア
評価・解析サブシステム (VAS: Validation and Analysis Subsystem)	ILAS-IIの各レベルのデータをグラフやイメージで可視化して、データの妥当性や異変を評価解析するソフトウェア
情報提供サブシステム (IDS: Information and Distribution Subsystem)	ユーザからのインベントリ検索・配布および各種情報の作成支援および提供を行うソフトウェア
ミッション管理サブシステム (MPS: Mission Planning Subsystem)	ILAS-II運用計画立案から運用状況の表示等を作成、管理するソフトウェア
機器管理サブシステム (IMS: Instrument Monitoring Subsystem)	HKデータ、ミッションデータを用いてセンサーの状態を把握、状況表示を行うソフトウェア
アルゴリズム管理サブシステム (AMS: Algorithm Management Subsystem)	各機能のソース、モジュールの一括管理を行うソフトウェア。特にアルゴリズムについては、データバージョン、処理環境等も含めた管理を提供する。

続分光したデータが取得可能である特徴を生かし、気体の吸収の少ない「大気の窓領域」に対応する波長の複数の素子情報からエアロゾルのスペクトル構造を折れ線による内挿近似で推定し、その寄与分をデータから差し引く方法で気体の吸収量を求めている（ILASでの推定手法と同じ）。本プロジェクトではより精密な推定を目指して、気体・エアロゾル同時算出方法について研究を進めている。その結果、極成層圏雲の存在を仮定した数値シミュレーションからは、信号にノイズがない場合には、従来の導出手法で問題となっていた低高度でのNO₂濃度の過大評価、15～30km付近での水蒸気的大幅な過小評価とメタンの過大評価の問題をほぼ解決できる結果が得られている。また、極成層圏雲を観測していると思われるILASの観測データに本手法を適用したところ、まだノイズが多いものの、相対的に改善の方向を示す結果が得られた。

(3) ILAS-II初期観測データ

ILAS-IIは、2003年1月20日～23日にかけて、初期チェックアウトが行われた。この期間にILAS-IIの電源投入が行われ、ジンバルミラー動作確認、オペレーションモードおよび観測ゲイン切り替え、太陽追尾動作確認などが行われた。それらの評価が一通り終わった段階で、実際の太陽掩蔽観測も行われた。

初期チェックアウト期間にILAS-IIによって得られた、赤外領域（6～12 μm）および可視領域（750～790 nm）における大気透過率スペクトルを図5に示す。赤外領域にはオゾンをはじめとした微量気体成分による吸収が認

められる。観測値と計算値はおおむね良く一致している。このスペクトルの解析から、オゾン等の鉛直分布を導出することができる。また可視領域では、地球大気中の酸素分子による吸収構造が認められ、その解析から上空の気温、気圧、エアロゾル量などを導出する。

図6では、日本時間の1月23日午前1時52分に、北緯65.2度、西経30.2度のグリーンランド付近上空、及び同日3時01分に、南緯64.1度、東経50.3度の南極昭和基地付近上空においてILAS-IIが観測したデータを、速報的に処理・可視化したものである。この図には、ILAS-IIの観測によるオゾン数密度の高度分布とともに、1997年の同時期（1月）にILASが観測したデータの平均値と変動幅（標準偏差の3倍）を、参照値として示してある。また図6には、ILAS-II観測の3日前に、南極昭和基地で第43次日本南極地域観測隊によって行われたオゾンゾンデ観測結果も併せて示している。

これらのデータは、15 km以上でよい一致を示していることが分かる。

また、図7では、ILAS-IIが日本時間の1月22日午後11時38分に南極上空において測定した、硝酸、二酸化窒素、水蒸気、亜酸化窒素、メタン、および可視エアロゾル消散係数の高度分布とともに、1997年の同時期（1月）にILASが観測したデータの平均値と変動幅（標準偏差の3倍）を、参照値として示した。ILAS-IIのデータはほぼILASの参照値と一致していることが分かる。

このように、ILAS-IIは高度10～50 km（北半球側は高度15～50 km）における、オゾンを始めとする微量気体成分の鉛直分布を、1 kmの高度分解能で取得すること

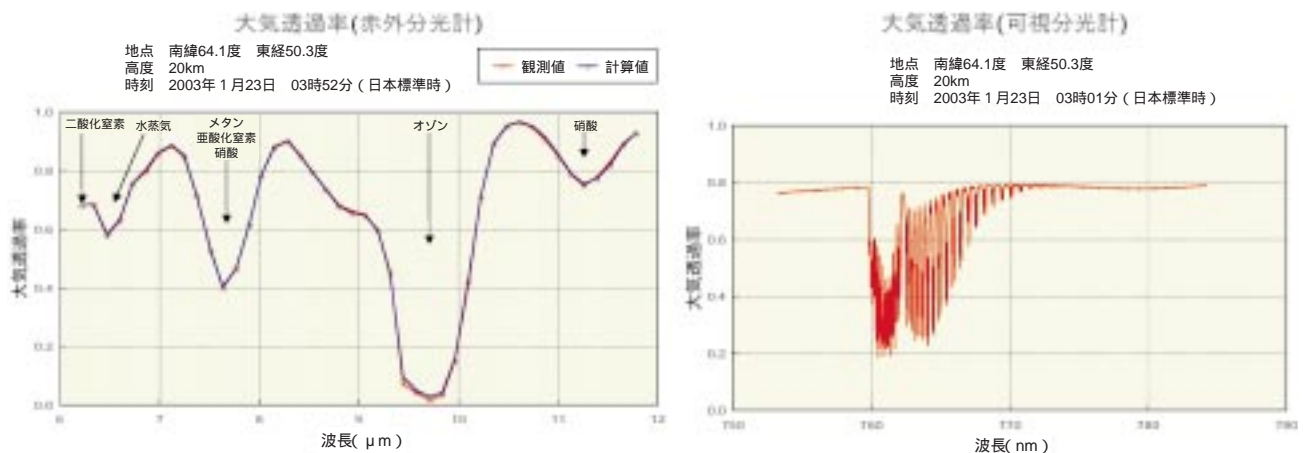


図5 ILAS-IIにより2003年1月23日に観測された大気透過率スペクトル
左のパネルは赤外分光計による結果。右のパネルは可視分光計による結果。

に成功し、ILAS-IIは予定していた機能を発揮していることが分かった。

2.1.3 地上観測

地上からのオゾン層の監視としては、つくば（国立環境研究所内）において1988年よりオゾンライダーによる観測を、また1996年よりミリ波オゾン分光計による観測を行っている。また北海道陸別町においてミリ波オゾン分光計による観測を1999年12月よりスタートさせた。地

上観測は国際的な観測ネットワークであるNDSC（Network for the Detection of Stratospheric Change）へのデータの提供を目標に行っている。本プロジェクトでの観測は、比較的観測サイトの少ない東アジア地区での観測となる。地上観測の内、オゾンライダーデータは既にNDSCへデータの提供を行っている。本プロジェクトでは、地球環境研究センター（CGER）との連携のもと、オゾンライダーデータの再解析およびミリ波分光計の広帯域化による観測高度範囲の拡大が行われた。

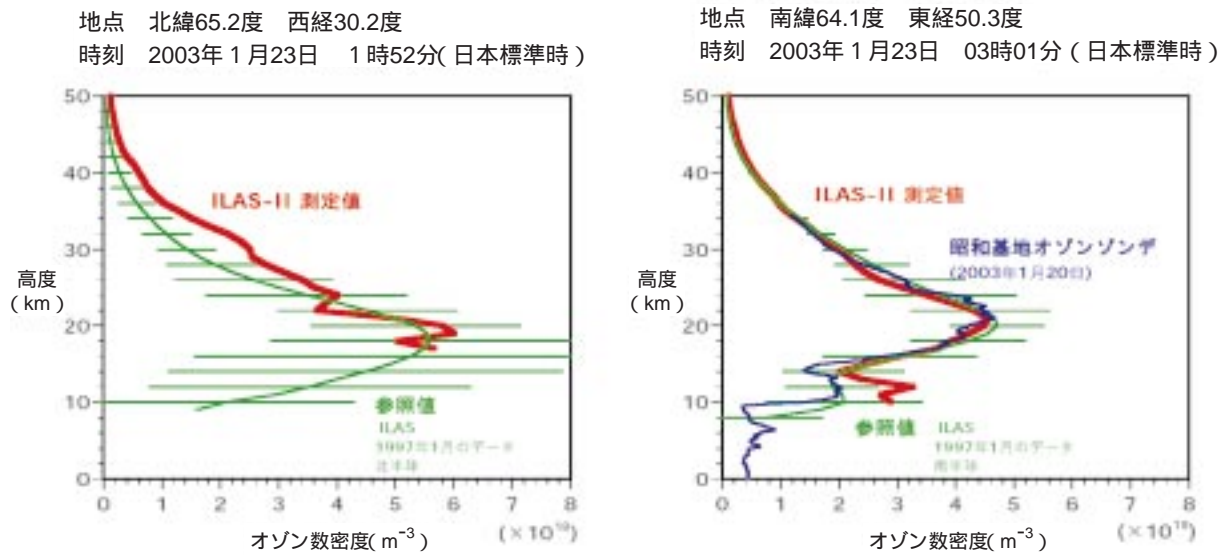


図6 改良型大気周縁赤外分光計II型（ILAS-II）によるオゾン数密度の測定結果
ILAS-IIが日本時間の1月23日午前1時52分にグリーンランド付近上空（左のパネル）、および同3時01分に南極昭和基地付近上空（右のパネル）において測定した、オゾン濃度の高度分布(赤線)。1997年の同時期（1月）にILASが観測したデータの平均値と変動幅（標準偏差の3倍）を、参照値（緑線）として示してある。また右図には、ILAS-II観測の3日前に、南極昭和基地で第43次日本南極地域観測隊によって行われたオゾンゾンデ観測結果（青線）も併せて示している。

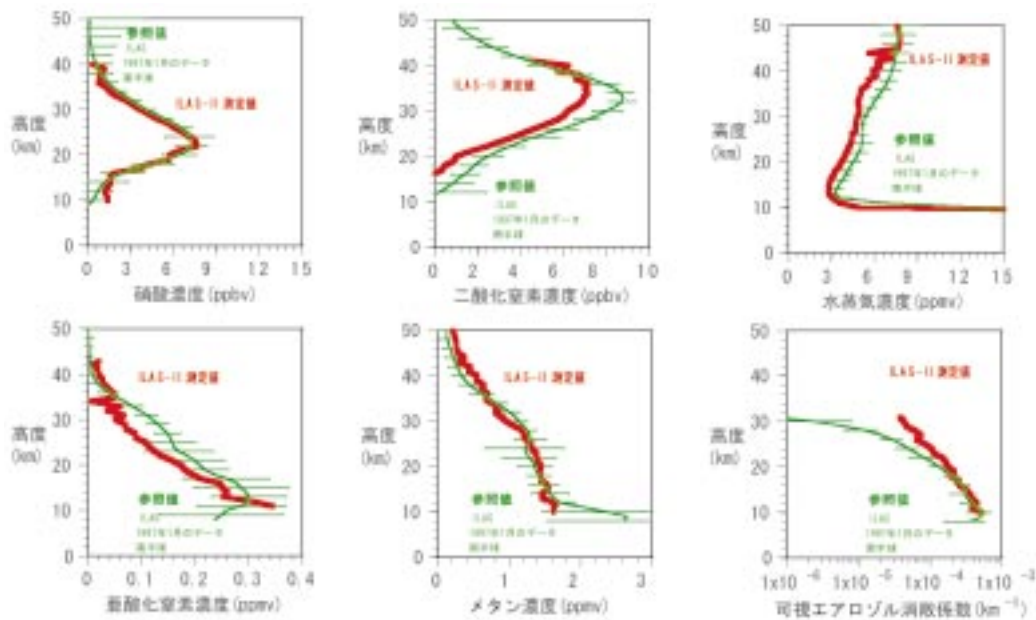


図7 ILAS-IIが日本時間の1月22日午後11時38分に南極上空において測定した、硝酸、二酸化窒素、水蒸気、亜酸化窒素、メタン、及び可視エアロゾル消散係数の高度分布（赤線）1997年の同時期（1月）にILASが観測したデータの平均値と変動幅（標準偏差の3倍）を、参照値（緑線）として示してある。

(1) オゾンライダーデータの再解析

既にNDSCへ提供しているライダーデータをバージョン2アルゴリズムで再解析を行い、オゾン、気温ならびにエアロゾルの高度分布を再決定した。再解析のポイントの一つとして、非常に大きなダイナミックレンジを要するライダー信号の処理の際に生じる系統誤差の除去が挙げられる。今回対象としたのは、ライダー信号によって誘起されるノイズ(SIN), 下部大気からの強いライダー信号によって検出系の応答の直線性がゆがめられる問題(DT), およびバックグラウンド信号(BS)の除去である。バージョン2アルゴリズムでは、SINがライダー高度に対し単一指数関数的に減衰することを仮定し、通常ライダーでは観測できない高高度に相当する信号の解析から、SIN+BSの寄与を推定した。またDTに関しては、同じ特性を有する2つの光検出器から信号を比較することで、補正量を推定する方式をとっている。具体的には、本ライダーシステムが一つの波長ごとに2つの検出器を用い、各々の検出器に異なる強度レベルのライダー光を入射させており、High Channelと称するより微弱信号を測定するモード(高高度からのライダー信号を感度よく測定するためのモード)とLow Channelと称するより強い信号を測定するモード(低高度からのより強いライダー信号を、ひずみを少なく測定するためのモード)の検

出器の信号強度を矛盾無く一致するように補正パラメータを決定した。実際の例として、図8にDT補正の検証例を示す(a, bはそれぞれ308nmと355nmの結果)。図中 N_{low} および N_{high} は各々Low ChannelおよびHigh Channel側の信号強度を表す。補正が正しければ、 N_{high} は N_{low} から推定される強度レベルと一致するはずで、それが図中の実線で表されている。実際の信号強度は図中の印で示している様に、ひずんでいることが分かる。これにDT補正を施すことにより、図中の+印の様に実線で表した関係を良く満足し、本研究で用いた補正方法がうまく働いていることが分かる。上記のSIN+BSの補正は高高度でのライダーデータの質の向上に、またDTの補正は低高度でのデータ質の向上に主に寄与した。

レーザーライダー信号からオゾンの鉛直分布を高精度で求めるためには、信号の質の向上に加え、エアロゾルによるレーザー光の散乱と減衰の効果を補正する必要がある。そのための基本的な考えをフローチャートとして図9に示す。エアロゾルの補正はピナツボ火山噴火後のエアロゾル濃度の高い期間(1991年後半~1995年頃まで)については特に重要である。具体的にはエアロゾルの影響を次の様にして補正した。

まず気象データ(NCEP)と一次元モデルデータ(CIRA-86)から得られた気温の鉛直分布と空気によるレ

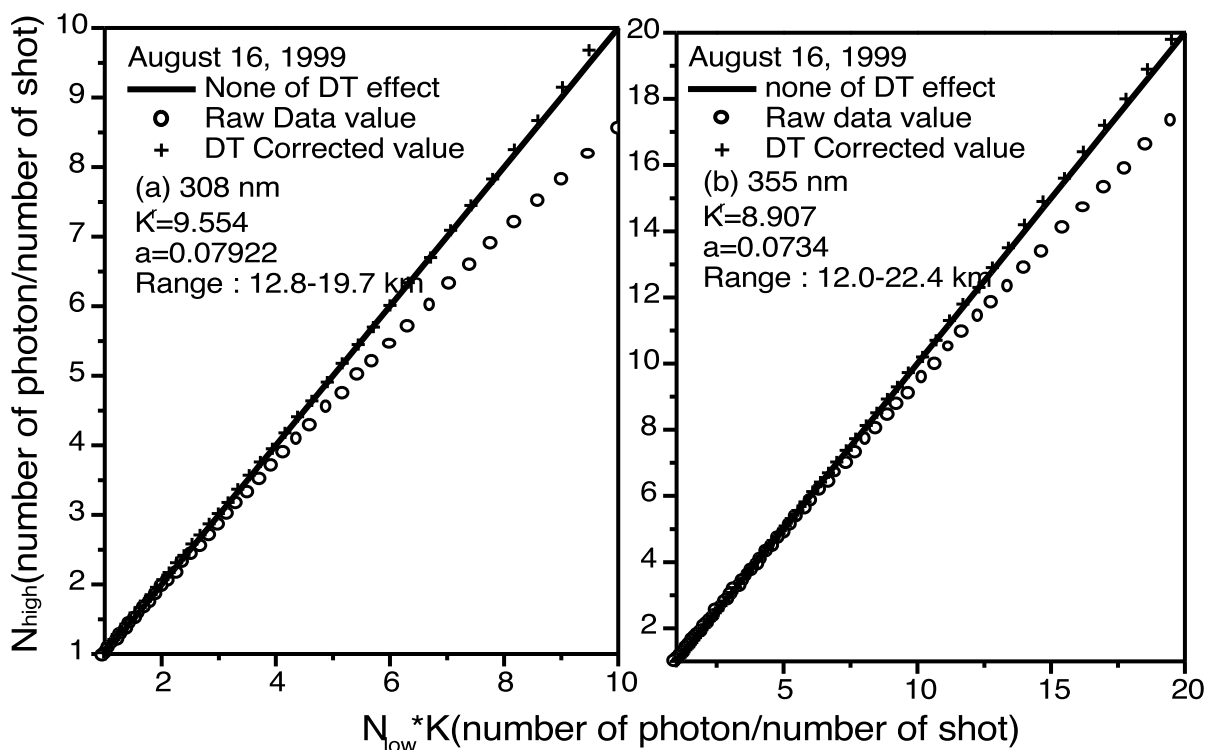


図8 (a) 308 nmおよび(b) 355 nmのライダー信号に対するDT補正の効果

ーリー散乱のみを仮定したレーザーレーダー信号の解析から計算される気温鉛直分布を比較した。両者の気温分布が誤差範囲内で一致（すなわちエアロゾルの影響が無視出来る）高度領域のデータを外挿することで、成層圏下部でのエアロゾル濃度を決定した。次に、米国のSAGE IIデータを減衰の評価に使用し、減衰と後方散乱の両方の効果を受けたレーザーレーダー信号を併せてイタレーションを行い、減衰/後方散乱比とエアロゾル高度分布を同時に求めた。このようにして求めた、減衰/後方散乱比とエアロゾル高度分布はピナツボ火山噴火後に行われた研究によって得られた値と良く一致している。また、補正されたオゾン高度分布は、ピナツボ火山噴火後の成層圏エアロゾル濃度が高い時期においてさえも、オゾンゾンデやSAGE IIによって得られたものと良く一致している。レーザーレーダーから得られた気温鉛直分布はNCEPデータと高度50 kmまでは良く一致しているが、高度55 kmではレーザーレーダーから求めた値の方がなめらかな長期変動を示した。また、15 km以上の高度領域で鉛直積分した後方散乱係数はピナツボ噴火直後増大した後、徐々に減少し、1997年以降はほぼ一定レベルで推移していることが分かった。このことは現在の

成層圏エアロゾルレベルはほぼバックグラウンドレベルにあることを示唆している。

最後に、図10に今回再解析を行ったオゾンライダーデータから得られた、各高度でのオゾン濃度の時系列をSAGE IIデータとあわせてプロットした。両者は季節変化、年々変動も含め、良い一致を示している。今後はここに述べた再解析データのNDSCへの提供と同時に、1988年以降の観測結果をもとに、日本上空でのオゾン濃度の年々変動やトレンドの解析を行っていく。

(2) ミリ波オゾン分光計

1995年に導入されたつくばミリ波分光計は、60MHzの分光帯域でオゾンスペクトルを取得し、高度38 kmから76 kmのオゾン濃度鉛直分布を24時間連続して観測を行ってきた。2002年、それまで行ってきたオゾンライダーによるモニタリング観測が停止したことを受けて、引き続き高度15 km付近までのオゾンの観測が行えるよう、つくばミリ波分光計の広帯域化を行った。

地上からのミリ波分光によるオゾン鉛直分布観測では、大気圧によるオゾンスペクトルの線幅の圧力幅広がりを利用して、観測されたスペクトルから各高度におけ

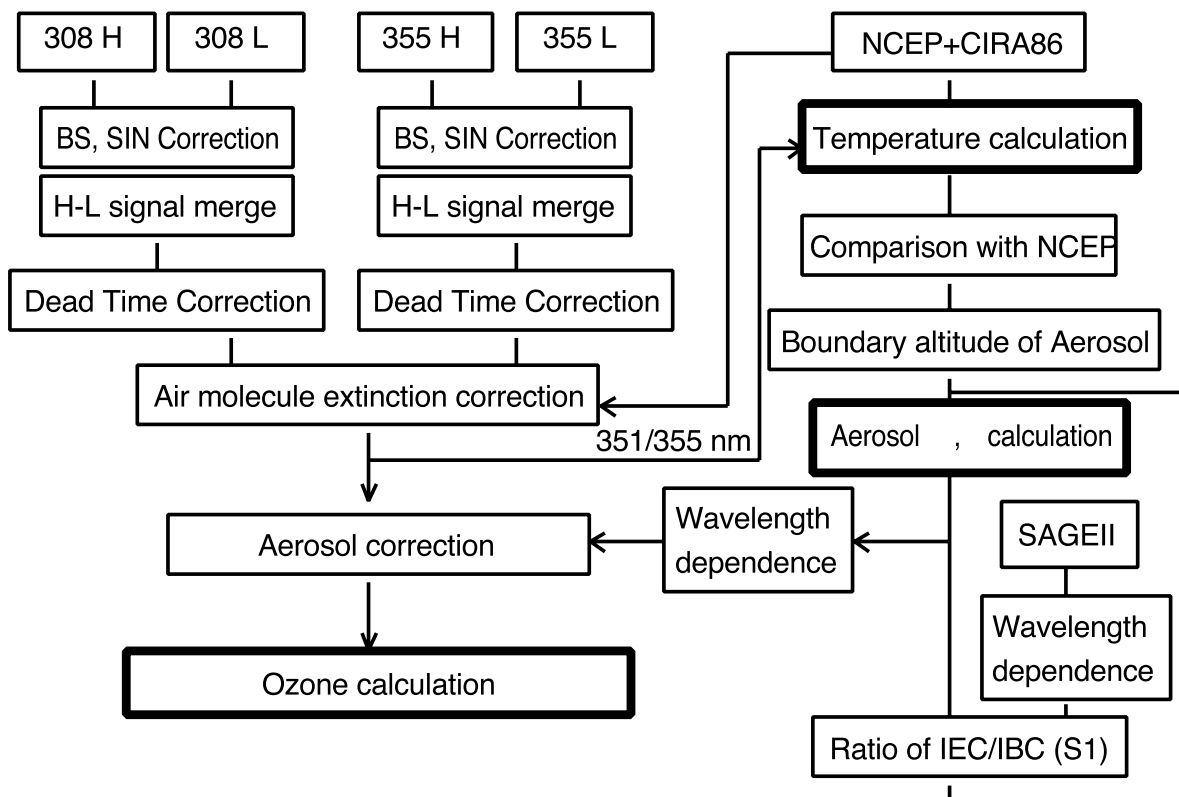


図9 オゾンライダー信号処理とデータ処理のフローチャート

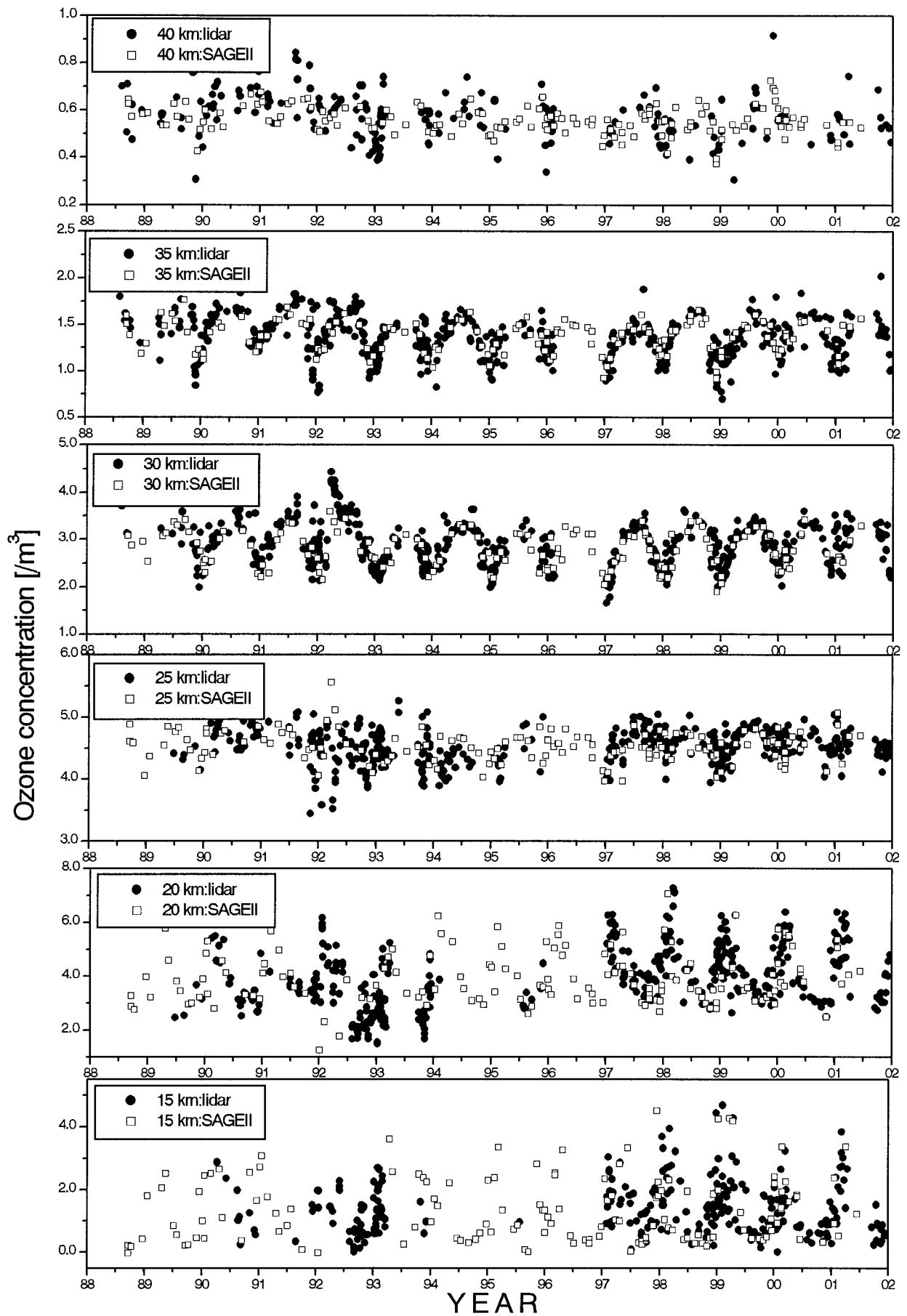


図10 オゾンライダーで測定した高度15~40 kmでのオゾン濃度の長期変動 (●) 比較のため、SAGE II衛星データ (□) もあわせてプロットされている。

る濃度を求めている（インバージョン）。低高度のオゾンからの放射スペクトルは高高度からのものに比べて広い線幅を持つので、ミリ波分光計で低高度のオゾンを観測するには、線幅の広がったスペクトルを精確に取得する必要がある。従来につくばミリ波分光計の分光帯域では高度38 kmが観測下限であり、より低高度領域を観測するためには装置の広帯域化が必要であった。そこで具体的には（1）広い分光帯域の分光計を導入し、（2）帯域全体でスペクトルベースラインのうねりを平坦化する装置および観測手法の開発、によりつくばミリ波分光計の広帯域化を行った。

広い帯域で分光を行うために、新たに帯域1 GHzの音響光学型分光計を導入し、これまでの分光計と同時にスペクトルが取得できるようにした。また、それにあわせて中間周波増幅系にも改良を加えた。1 GHzの分光帯域は、圧力幅で換算すると高度14 kmの大気圧によるスペクトル線幅に相当するので、この高度まで観測することが可能である。また、広帯域でのスペクトルのベースライン平坦化のために、光路長変調器およびエレベーションスイッチ方式の観測に対応した光学系を追加した。光

路長変調器は、2組の山型ミラーの間隔を短時間に1/4波長変化させることにより、光学系で発生する定在波を打ち消し、スペクトルベースラインを平坦化させる。エレベーションスイッチ方式は、2つの異なる高度角を短時間で切り替えながら観測する方法で、これにより不要な雑音成分をスペクトルから精確に取り除くことができる。図11に従来のバランス法および新たに採用したエレベーションスイッチ法で観測したオゾンスペクトルを示す。低高度での測定の可否は、スペクトルの裾の部分がいかによがみ無く測定できるかにかかっている。バランス法の場合、装置の非線形性の影響でスペクトルの裾の部分がゆがんでいるのに対し、エレベーションスイッチ法では裾部分が滑らかに減少しており、エレベーションスイッチ方式による観測スペクトルの方が、バランス法による観測スペクトルよりも質の良いスペクトルが得られることが分かった。また、スペクトルの精確な強度較正のために、常温および冷却黒体を光学系に設置し、観測の前後でこれらの放射強度を計測するようにした。今後、広帯域スペクトルからオゾン高度分布を導出し、その変動について解析を進める予定である。

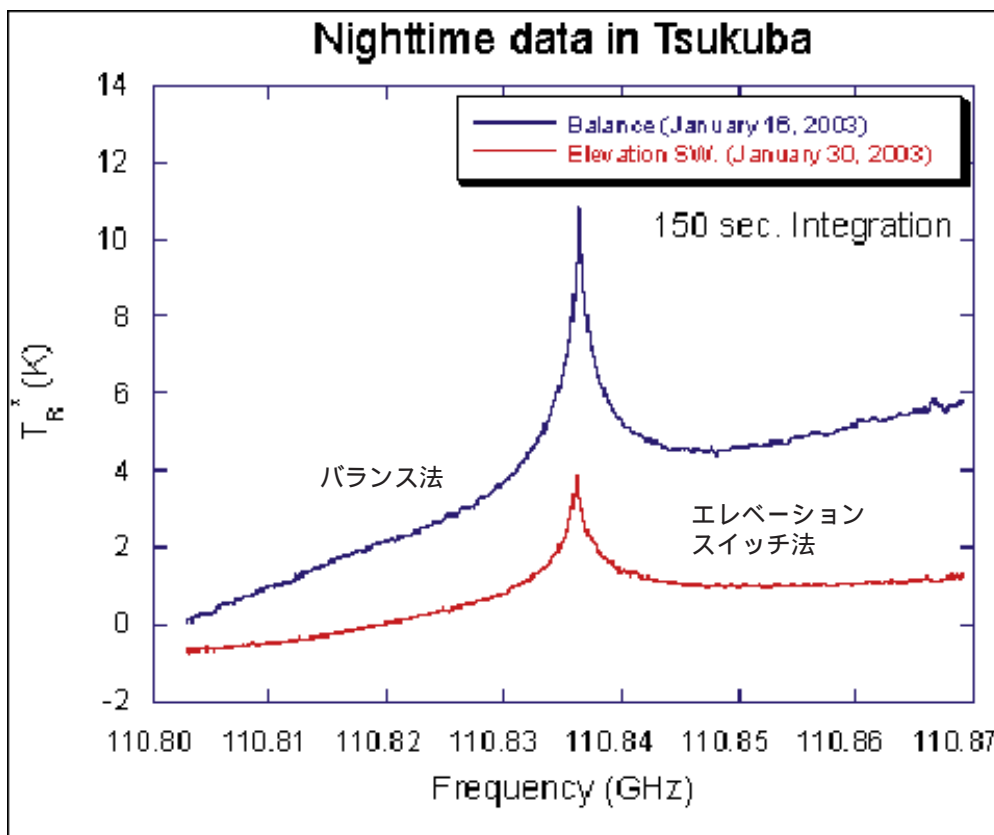


図11 2003年1月16日の夜間にバランス法で観測されたオゾンスペクトルと1月30日の夜間にエレベーションスイッチ法で観測されたスペクトル

2.2 極域でのオゾン層破壊

南極オゾンホールで代表される様に、冬季から春季の極域下部成層圏における大規模なオゾンの減少はオゾン層破壊の最も特徴的な例である。大規模な極域オゾン破壊は南極ばかりでなく北極域でも近年観測されている。冬季から春季の極域でのオゾン層破壊には、極渦の存在（極渦内外の空気の混合の抑制）、極成層圏雲（Polar Stratospheric Clouds; PSCs）の生成とPSC上での不均一化学過程、独特の大気組成のもとでの光化学反応によるオゾン分解、などが重要な役割を果たしていると考えられている。また極域での大規模なオゾン層破壊の影響は極域だけに留まらず、中緯度域のオゾン濃度の変動にも寄与する可能性がある。よって、極域オゾン層破壊機構の解明は今後のオゾン層変動を予想する上でも重要である。極域オゾン層破壊と言っても、北極域と南極域では地理的な違いによって、成層圏の気象条件が大きく違う。そのため、南北両半球で同じオゾン破壊機構が働いているか、それぞれのプロセスがオゾン分解に及ぼす影響の程度が同じか、といった問題には観測データをもとに詳しく調べる必要がある。特に北極域でも、極渦の強化（2.2.5項）極渦内の気温の低下 PSCの生成（2.2.1項）

PSC上での不均一反応による塩素の活性化と窒素酸化物・水蒸気の除去（2.2.2項、2.2.3項）大きなオゾン分解速度（2.2.4項）、の機構が働いているか、解決すべき大きな疑問の一つである。

この節ではILASによる頻度の高い極域オゾン層の観測データを活用した極域オゾン層破壊に関連する現象の解明を中心に、極域成層圏の物理・化学過程の理解を目的とした研究成果を紹介する。

2.2.1 極域成層圏雲の同定および組成の推定

極域成層圏雲（PSCs）は、極域下部成層圏における

大規模なオゾン破壊現象において重要な役割を果たしており、PSCsの化学組成を知ることは、オゾン減少率を正確に評価し、冬季・春季極域におけるオゾン破壊メカニズムの詳細を知る上で非常に重要である。ILASは1996年11月から1997年6月までの約8ヵ月間、両極域（北緯57.1～72.7度、南緯64.3～88.2度）において、オゾン、硝酸、水蒸気等の成層圏大気微量成分およびエアロゾルの高度分布を観測した。本研究では、ILASの0.78 μmのエアロゾル消散係数データの解析から、冬季北極におけるPSCsイベントを同定し、その時空間分布を明らかにし、観測されたPSCsの化学組成を推論することを目的とした。

（1）1997年冬季/春季の北極成層圏におけるPSCsの空間分布

ILASの0.78 μmエアロゾル消散係数データのうち、PSCs形成の閾値より十分に高い気温（およそ200 K）条件下でのデータを平均して、極渦内外別に対象となる高度ごと10日ごとに平均値と標準偏差を計算した。それに基づいて、（平均値）+ 5 ×（標準偏差）をPSCsの同定のための閾値として設定した。これにより0.78 μm消散係数が閾値を越えていれば、PSCsが発生したと判定した。この様にしてILASデータをもとに1997年1～3月に北極域でPSCsの発生が確認された高度と時間を各観測高度での最低気温の変化と合わせて図12に示す。特徴的な点は、PSCsの発生が確認された時間と場所は最低気温が195 K以下の領域と一致していることとPSCsが3月に入っても観測されたことである。前者は熱力学的に見て妥当なことで、今回の解析方法がPSCsの発生を問題なくとらえている証拠でもある。後者の特徴は、ILASが観測した1996/1997年が特異的な年に相当していることを意味している。

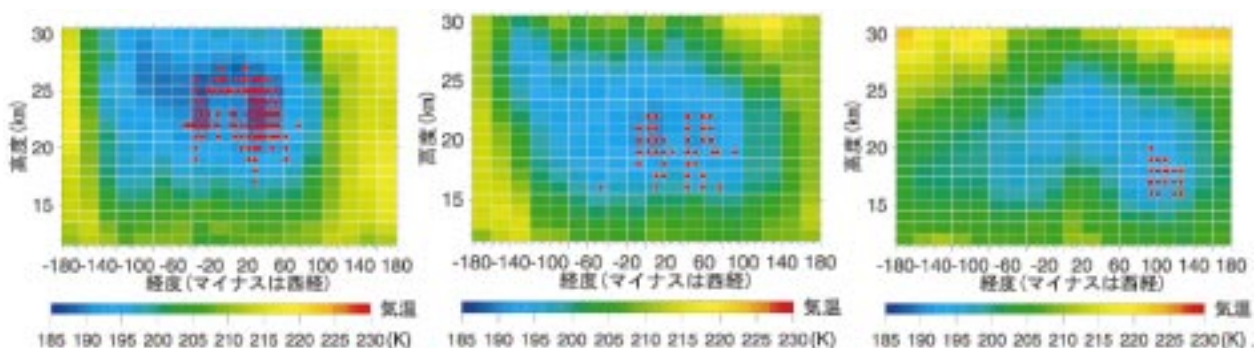


図12 1997年1月、2月、3月に観測されたPSCsイベント（赤丸）の高度 - 経度断面色は各月の最低気温を示す。

(2) 観測されたPSCsの組成

1) PSCs理論値の計算

ILASの観測値とPSCsの組成を仮定して見積もったILASの理論値とを比較することで、観測されたPSCsの化学組成の推定を行った。本研究では、PSCsの組成として液相粒子であるSTS (super-cooled ternary solution) ならびに固相粒子であるNAD (nitric acid dihydrate) と NAT (nitric acid trihydrate) を考慮した。STS粒子形成を仮定したときに理論的に期待できる粒子体積および粒子に取り込まれた後に気相中に残存する硝酸量は、ILASデータから見積もられたバックグラウンド硝酸量、水蒸気量、硫酸量を用いて、熱力学モデルに基づいた理論式を援用して計算した。NADやNAT粒子と平衡状態となる硝酸蒸気圧は室内実験データに基づいて計算された。その計算に基づき、粒子の密度 1.62 g/cm^3 を用いて、理論粒子体積を求めた。理論体積とILASのエアロゾル消散係数データとを比較するために、粒径分布を仮定し、複素屈折率を与え、Mie散乱理論をあてはめて、体積を $0.78 \mu\text{m}$ 消散係数に変換した。

2) 1997年1月

図13は、1月中旬の高度22 kmでの (a) ILAS消散係数データとUKMO気温データ、(b) ILAS硝酸データとUKMO気温データの散布図である。黒丸はPSCsと判定されたデータを表している。10日ごと高度ごとにILASデータから見積もられた値を用いて計算したSTS, NAD, NATの理論曲線もあわせて示されている。1月中旬の高度22 km付近では、ILASデータはSTS理論値に最も近く、消散係数がSTS理論値に対応しながら増加し、同時

にガス状硝酸が減少していた。低温領域においては、消散係数が大きくなると硝酸がより減少していた。また、1月19, 20日に測定された消散係数およびガス状硝酸濃度の鉛直分布は、比較的広範囲(18~23km)でのSTSの存在を示唆していた。

次に、1月中旬に観測されたPSCイベントについて、それぞれの粒子体積の増加量から、STSを仮定した場合に粒子に取り込まれると考えられる理論硝酸量を計算し、その量と実際に大気中から除去された硝酸量とを比較した。大気中の硝酸量と理論残存硝酸量は定量的に一致しており、STSを仮定すると観測されたPSC粒子の HNO_3 の質量保存は保たれていたことが分かった。

ECMWFデータを用いて20日間のバックトラジェクトリーを計算し、理論値との比較からSTSの存在を示唆する空気塊が経てきた気温を調べた。その結果、この時期に観測されたSTSだと考えられるPSCイベントの多くが、観測直前以外は20日間氷点(T_{ice})付近の低温を経験しておらず、固体粒子の核となりうる氷粒子も硫酸水和物(SAT)も観測時には存在していなかったと考えられるため、液相粒子が形成されやすい状況であったと結論できる。

しかしながら、1月中旬に観測された特徴的なPSCイベントはスカンジナビア山脈の風下側で観測されたものが多く、観測時に山岳波による局所的冷却の影響を受けていた可能性がある。図13(3, 7で示したデータ点)に示されているように、 T_{ice} 付近で観測されているPSCイベントのいくつかは観測値と対応するSTS理論値との間に大きな隔たりがあるが、これは山岳波による局所的気温振動のために、STSが完全な平衡状態に達することが

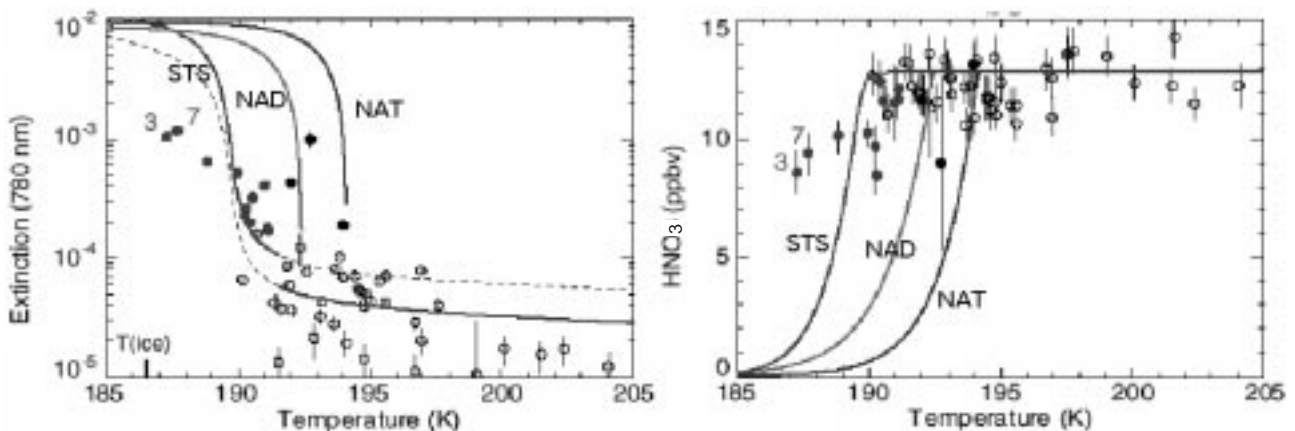


図13 1997年1月中旬に北極の高度22 kmで観測されたILASデータの散布図
同期間のSTS, NAD, NATの理論値も示されている。

できなかったことが一因であると考えられる。また、ILASは高度20 km付近で、視野方向に約200 kmの幅を持った空気塊を観測していたため、観測視野の中にSTSとそれ以外の組成のPSCsあるいはエアロゾルが同時に存在していた可能性がある。図13に示されたPSCイベントと同時観測された水蒸気も大きく減少していたことから、山岳波による急激な気温降下があったとすると、これらのデータはiceとSTSが混合していた状態であると考えられる。

3) 1997年3月

PSCが発生した時期の後期にあたる3月初旬の高度18 kmでの (a) 消散係数データと (b) 硝酸データの散布図を図14に示す。消散係数値、硝酸値ともにNAD粒子、NAT粒子の存在を示唆している。

3月の9, 10日には高度数 kmにわたってNADあるいはNATのPSCsが観測された。図15にそれらのPSCイベント

が経験した気温履歴の一例を示す。STSの気温履歴と比較すると、気温が T_{NAT} 以下まで低下した時間が明らかに長く、また T_{ice} 付近まで低下した。他の研究によって、総観規模で少なくとも1日連続して空気が T_{NAT} 以下の低温を経験するか、あるいは T_{NAT} 以下の低温で山岳波による気温振動を経験すれば粒子が凍ることが示されている。3月に観測されたPSCsイベントは T_{NAT} 以下を数日間以上連続して経験していた。また、観測直前に山岳波の影響を受ける可能性のある典型的な山岳領域を通過しておらず、観測時に山岳波による冷却のために氷粒子が形成されていたと考えられない。液相に対する固相の飽和比は20日間継続的に高い値を示しており(図15), homogeneous nucleationによる核形成速度が高かったことが示唆される。しかしながら、もし以前に形成されたSAT粒子が融解することなく固体の状態で周囲に存在していたとすると、それを核として硝酸水和物が形成したかもしれない。

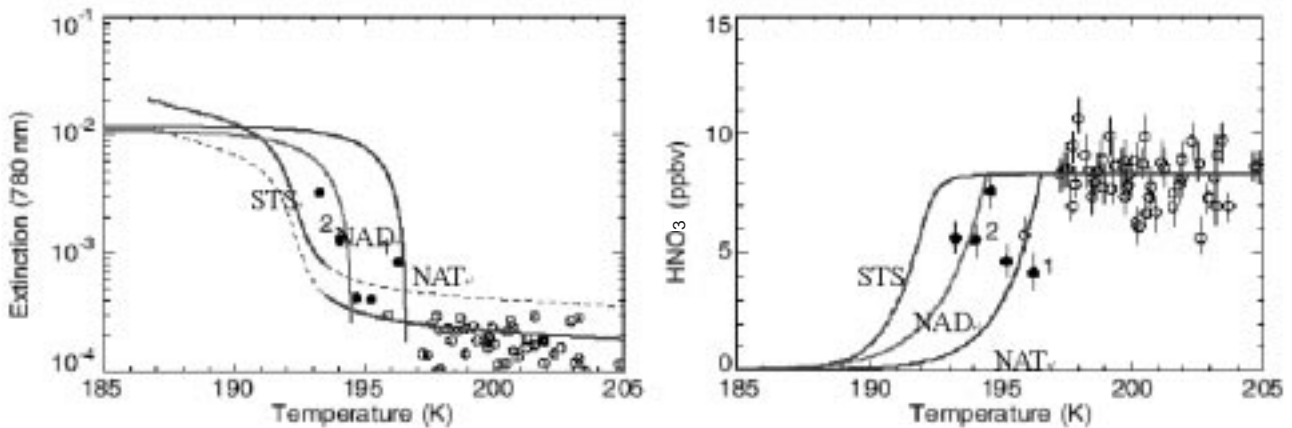


図14 1997年3月初旬に北極の高度18 kmで観測されたILASデータの散布図
同期間のSTS, NAD, NATの理論値も示されている。

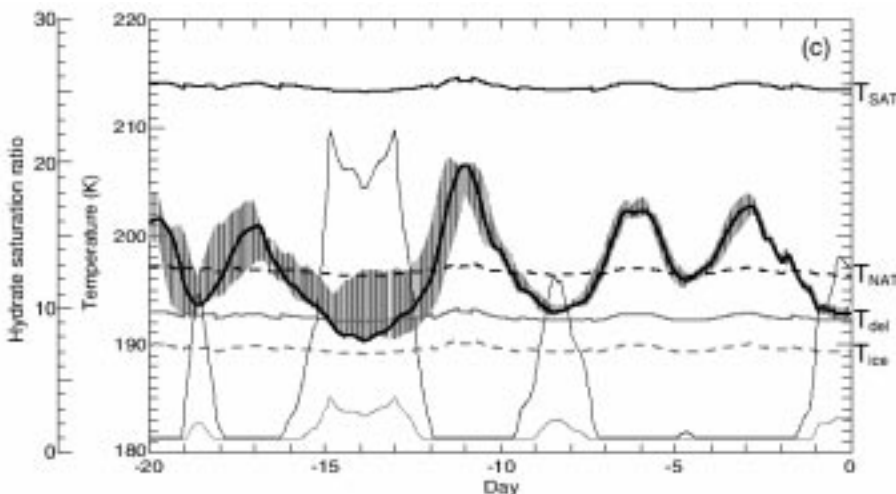


図15 1997年3月初旬に観測されたNAD/NATイベントの20日間の気温履歴
灰色部分は観測地点から東西南北100 km離れた地点からのトラジェクトリーを計算した場合の気温の振幅を表す。

(3) まとめ

ILASセンサは、1996年11月から1997年6月まで北極成層圏でエアロゾル消散係数、 HNO_3 、 H_2O の観測を行った。我々は65個のPSCsを含む高度分布を特定した。

本研究では、ILASの消散係数および HNO_3 データをSTS、NAD、NATの理論値と比較した。1997年1月中旬に、消散係数データと硝酸(HNO_3)データはSTSの理論値と最も良く一致し、STSへの HNO_3 の取り込みを示唆した。1月19~20日では広い高度域でSTSのPSCが観測された。しかしILASセンサが観測した空気塊の大きさを考えれば、STSを含んだいくつかの空気塊では氷粒子が共存していた可能性がある。3月に観測されたPSCsはNADかNATであったと考えられる。

20日間の後方バックトラジェクトリーを計算して、ILASが観測したPSCsの総観規模の温度履歴を調べた。STSが観測された空気は、固体PSCの形成に必要な核となり得る硫酸水和物や氷粒子が生成する温度まで冷やされておらず、そのためSTSが生成したと考えられる。さらに決定的な結論を導くには、山岳波による氷粒子の生成過程に関する詳細な解析が必要である。

3月初旬にNADやNATが観測された空気は、NATの飽和温度以下の低温を数日以上経験した。それらの空気は山岳波が発生しやすい領域を通過していなかった。したがって、観測されたNADやNATの生成は総観規模の温度で説明できることが分かった。NADやNATが観測された空気は、NADやNATの飽和温度以下の低温を長時間経験しており、STSの凍結によって形成したことを示唆する。

2月中旬から3月初旬にかけて、PSCsが観測された空気で極めて低濃度の HNO_3 が観測された。観測されるまでに、気温は氷点付近まで低下していた。これらの HNO_3 濃度が低下した空気では、気温がPSCs生成に十分な気温まで低下しても HNO_3 の不足のために粒子の成長が阻害されると考えられる。

2.2.2 反応性窒素酸化物の分布と極域成層圏雲の形成過程

(1) はじめに

人体に有害な紫外線を遮蔽している成層圏オゾンは、人為起源のクロロフルオロカーボンから発生する活性塩素によって破壊される。低温の成層圏で発生する極域成層圏雲(PSCs)は不活性な塩素化合物を活性化させ、そ

の活性塩素が冬季から春先に極域の成層圏オゾンを著しく破壊する。一方で、反応性窒素酸化物は活性塩素を不活性化させる。冬季に発生するPSCsは反応性窒素酸化物の主成分である硝酸を含み、そのPSCの重力落下は反応性窒素酸化物の濃度を不可逆的に低下させる(脱室)。その結果、活性塩素が春先まで高濃度を維持してオゾン破壊が拡大する。この影響は、近未来の成層圏の寒冷化によってPSCの発生頻度が増加するとさらに重要になると考えられている。本研究では、このような重要性を持つ脱室を引き起こすPSCの形成過程の解明を目的とする。

(2) ILAS データ

ILAS観測は、1996年11月から1997年6月まで北緯57~73度と南緯64~88度の高緯度を南北各半球で1日に14回行われた。本研究では1997年1~3月に北極域の高度12~23 kmで得られたILASの HNO_3 、 N_2O 、 O_3 、エアロゾル消散係数データを用いた。

PSCsが HNO_3 を取り込むと気相中の HNO_3 濃度が減少する。このPSCsが重力落下する前に蒸発すれば、気相中の HNO_3 の濃度は元に戻る。このような一時的な HNO_3 濃度の減少は脱室に分類されない。脱室されたデータを選ぶために、ILASの $0.78 \mu\text{m}$ のエアロゾル消散係数データを用いた。PSCの生成が無視できる $T_{\text{NAT}} + 5 \text{ K}$ (およそ200 K)よりも高い気温で得られた消散係数データを10日間ごとに平均し、平均値(m)と標準偏差(s)を計算した。消散係数が $m+1$ よりも小さいときには、脱室の影響によってのみ HNO_3 濃度が低下したとみなすことができるため、本研究ではそれらのデータを用いた。

(3) 結果

1) 気象場

図16では、1997年1月から3月までに氷点(T_{ICE})やNATの飽和温度(T_{NAT})まで冷却された領域の面積の時系列が高度ごとにプロットされている。気温データとしてヨーロッパ中期予報センター(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts; ECMWF)のデータを用いた。高度ごとの T_{NAT} と T_{ICE} は室内実験に基づいて計算された。

1996/1997年冬季に北極成層圏では、北極域の最低気温が1月中旬までは過去20年間の平均値とほぼ同じであり、1月から4月までは平均値よりも低かった。高度13

~23 kmでは、1月から3月にかけて T_{NAT} まで冷却され、特に2月10日から25日までのあいだに高度17~21 kmの最低気温は T_{ICE} まで達していた。

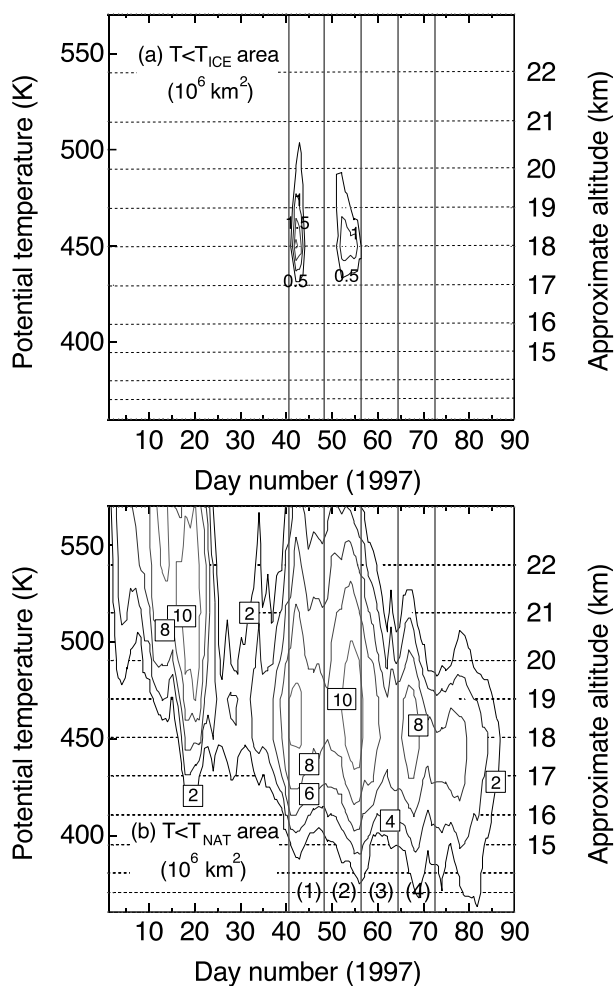


図16 北緯40度以上における、(a) $T < T_{ICE}$ 以下の領域と、(b) $T < T_{NAT}$ 以下の領域の高度-時間断面図
(1),(2),(3),(4)はそれぞれ、2月10~17日、2月18~25日、2月26日~3月5日、3月6~13日を示す。

2) 脱室の定量化

脱室によって失われた反応性窒素酸化物(NO_y)の濃度を見積もるために、 NO_y-N_2O 相関関係が有効であることが良く知られている。冬季の極域では日が当たらないため、 HNO_3 は NO_y の主成分(80%以上)になっている。したがって、 NO_y-N_2O 相関関係の代わりに HNO_3-N_2O 相関関係を用いて脱室を定量化することができる。

1997年1月から2月上旬にかけて、ILASが観測した HNO_3-N_2O 相関関係はばらつきが小さく、ほとんど変化しなかったことが分かった。2月上旬に得られた各高度の HNO_3-N_2O 相関関係を、 HNO_3 濃度の変化量を見積もるための基準(HNO_3^*)として用いた。

2月以降になると北極域にも日が当たりはじめ HNO_3

の光解離が起きる。この影響を除くために、Atmospheric and Environment Research, Inc. (AER)の光化学ボックスモデルを用いて HNO_3^* の補正を行った。高度1 kmごとにAERボックスモデルを適用して、光解離による HNO_3 の減少速度を見積もった。高度17 km以下では HNO_3 の光解離は無視できるほど小さかったため HNO_3^* の補正を行わなかった。

高度12~15 kmでは HNO_3^* を正確に決定するためにはILASの N_2O の観測精度が不適当なため、 HNO_3-N_2O 相関関係の代わりに HNO_3-O_3 の相関関係を用いた。1月から2月上旬まで、極渦内の高度12~15 kmの HNO_3-O_3 の相関関係はばらつきが小さく、ほとんど変化しなかった。高度12~15 kmでは、2月上旬の HNO_3-O_3 相関関係を用いて

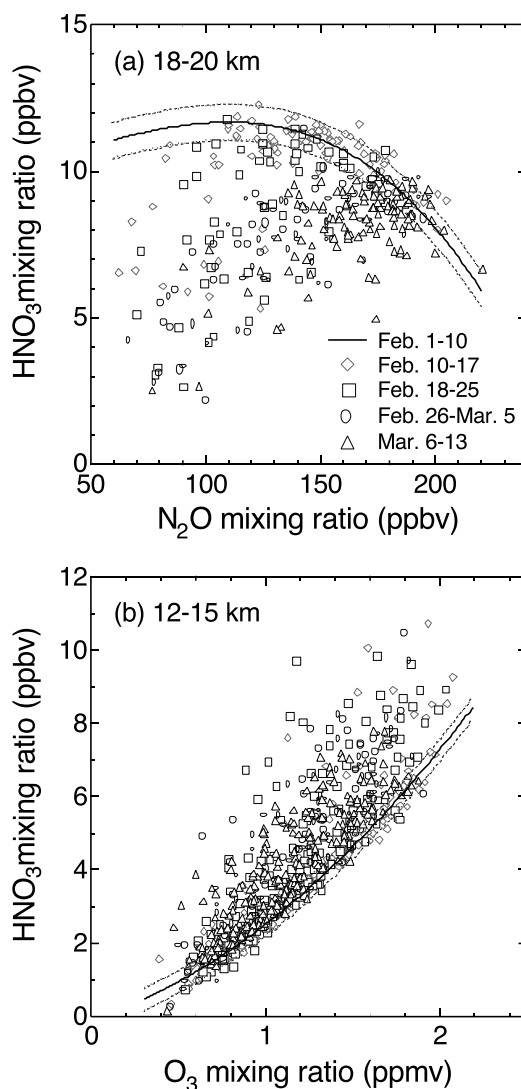


図17 2月10日~3月13日の極渦内の(a) HNO_3-N_2O 、(b) HNO_3-O_3 の相関関係
PSCのデータは除外されている。参考に、2月上旬の相関関係とその標準偏差をそれぞれ、太線と点線で示す。

HNO₃*を計算した。オゾン濃度の化学的損失のHNO₃*への影響はILASデータから推定されたオゾン破壊速度を用いて補正された。

図17(a)は1997年2月から3月までに高度18~20 kmで観測されたHNO₃-N₂Oの相関関係を示す。参考に、2月上旬のHNO₃-N₂O相関関係を太線で示す。HNO₃濃度は190 ppbv以下のN₂O濃度で顕著に減少した。ここで、PSCsが発生していたデータは除外されているので、このHNO₃濃度の減少は脱室によって引き起こされたと考えられる。観測されたHNO₃からHNO₃*を引いた値、

HNO₃をHNO₃*の変化量として定義する。N₂O = 60-150 ppbvにおいて、HNO₃*は11.5 ± 0.5 ppbvでほぼ一定なので、HNO₃はN₂Oのランダム誤差にほとんど依存しないと考えられる。

図17(b)は1997年2月から3月までの高度12~15 kmにおけるHNO₃とO₃の相関関係を示す。2月上旬のHNO₃-O₃相関関係は太線で示されている。2月中旬以降に高度12~15 kmでHNO₃が増加したことが分かった。高高度から重力落下してきたPSCsが蒸発して、HNO₃が増加(硝化)したと考えられる。

3) 脱室が起きる温度条件

脱室が起きるための温度条件を調べるために、ILASが観測した空気から10日間のバックトラジェクトリーを計算した。トラジェクトリー上の気温データ(ECMWFデータ)を用いて、空気が経験した最低気温(T_{MIN})を計算した。ECMWFの気温データはラジオゾンデとの比較から約1Kの正のバイアスを持っていることが報告されている。本研究では、その報告に基づいて気温データを補正した。

図18は温位430~515 KのHNO₃とT_{MIN} - T_{ICE}のプロットである。1月11日~2月9日と2月10~17日は、それぞれ白と黒丸で示されている。2 ppbv以上の脱室は、187 K (T_{ICE} - 1 K)と191 K (T_{ICE} + 3 K)まで冷却された空気塊でのみ観測された。室内実験および数値モデル計算によって、氷粒子が生成する臨界温度は、過冷却のため、T_{ICE}からさらに3 K低いことが報告されている。ILASが観測した脱室された空気はそのような低温まで冷却されなかったため、脱室は氷粒子によって引き起こされなかったと考えられる。他の室内実験を考慮すれば、T_{ICE}付近でNATの核形成が起きたと考えられる。

NAT粒子の形成や落下の時間スケールを調べるため

に、空気塊がT_{ICE} + 3 Kに冷却された後にT_{NAT}以下の気温を連続的に経験した時間に対してHNO₃をプロットした(図19)。T_{ICE} + 3 Kに冷却されてからT_{NAT}以下の気温を連続的に4日間以上の経験した空気塊では2 ppbv以上の脱室が観測された。これらの結果から、1) 187~191 Kまで冷却され、2) その後4日間以上TNAT以下に冷却され続けることが、脱室が起きる必要条件であることが明らかになった。

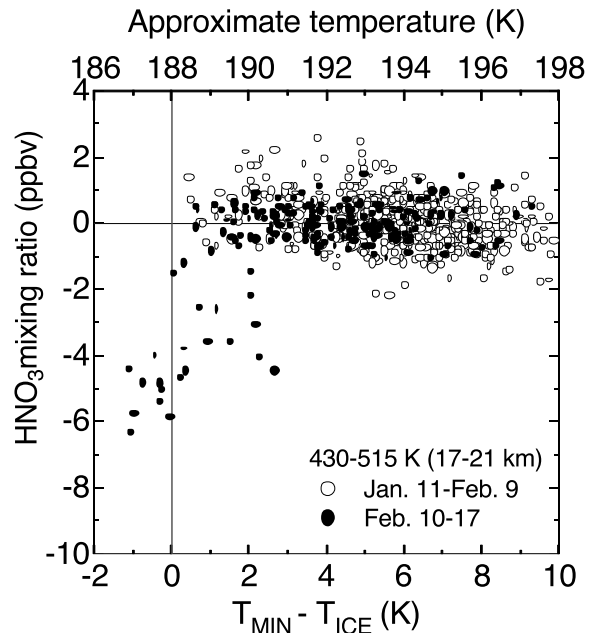


図18 HNO₃とT_{MIN}-T_{ICE}のプロット
T_{MIN}は空気塊が経験した最低気温である。

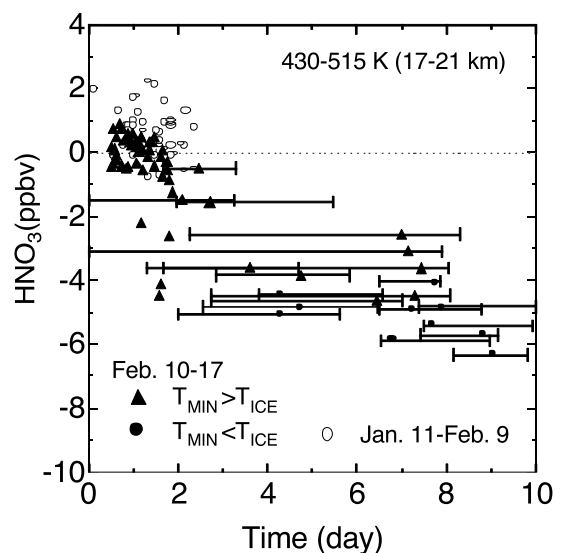


図19 空気塊がT_{ICE} + 3 Kまで冷却された後にT_{NAT}以下まで冷却された連続時間に対するHNO₃のプロット
水平バーは、ECMWFの温度バイアスを0 K, 2 Kとした時の連続時間。

4) 脱室の時空間分布

図20では HNO_3 が等価緯度 (equivalent latitude) に対してプロットされている。等価緯度が北緯62~68度の領域は極渦の境界域であり、それよりも高緯度は極渦の内部を意味する。1996/1997年では、脱室によって失われた HNO_3 量は極渦の中心で最大であった。脱室の緯度分布と整合的に、極渦の中心は最も低温であった。3月上旬に北緯75, 80, 85度のそれぞれで、脱室によって HNO_3 は18, 36, 43%まで失われた。50%以上のdenitrificationが春季のオゾンの回復に影響を与えることが数値モデルによって示されている。このモデル計算を考慮すると、脱室は極渦の中心付近でのみ、オゾン破壊を拡大させたと考えられる。

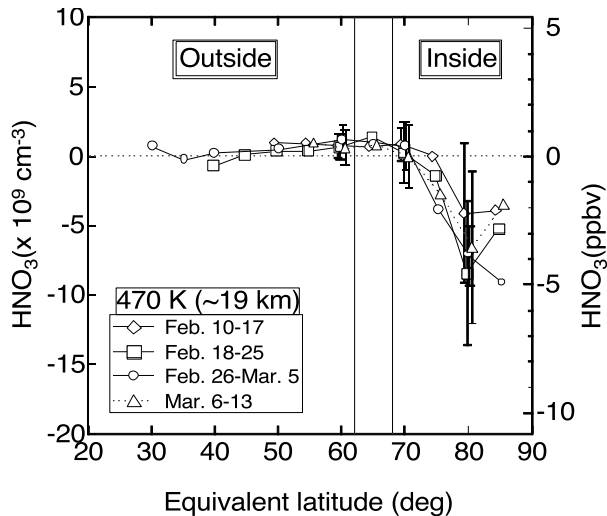


図20 温位面470 K (~19 km) の HNO_3 と等価緯度のプロット
2本の縦線は極渦の境界を示す。

図21は極渦内で再分配された HNO_3 量の鉛直分布を示す。各高度に分配された HNO_3 量は、 HNO_3 と等価緯度の関係に基づいて、ある緯度範囲が囲む面積の重みを考慮して計算された。図21には、2月10日から25日までに T_{ICE} や T_{NAT} まで冷却された領域の平均面積も示されている。

脱室は高度17~21 kmでのみ観測され、北極の最低気温が T_{ICE} まで低下した高度と一致した (図21)。この結果は、空気が T_{ICE} 付近まで冷却されることが脱室される必要条件であることを支持する。 T_{ICE} まで冷却された領域の面積が最大であった高度18~19 kmで、最大の脱室が起きていたことも脱室の必要条件の結果と整合的である。一方、12~14 kmの高度で硝化が起き、そこでの気温は一般に T_{NAT} よりも高かった。重力落下したNAT粒子

がこれらの高度で蒸発して HNO_3 濃度を増加させたと考えられる。

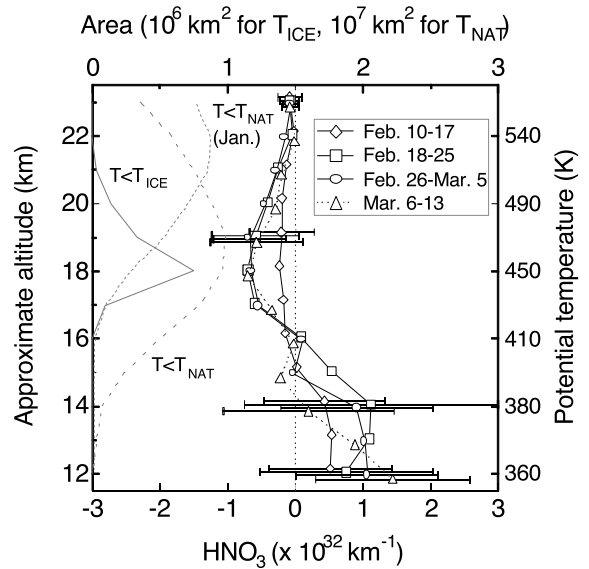


図21 極渦内で再分配された HNO_3 の鉛直分布
 T_{ICE} や T_{NAT} まで冷却された面積の2月10~25日の平均値も示す。点線は T_{NAT} まで冷却された面積の1月10~25日の平均値を示す。

脱室と硝化の高度領域で HNO_3 をそれぞれ積分し、 HNO_3 全量の正味の変化量を計算した (表2)。この計算によって、2月10~25日に脱室と硝化が進行したことが分かった。2月26日から3月上旬にかけて、北極の最低気温は T_{ICE} よりも高く、脱室や硝化はほとんど進行しなかった。このように、脱室と硝化の時間発展からも T_{ICE} 付近への冷却が脱室過程にとって重要であることを示すことができた。また、高度17~21 kmの2月下旬と3月上旬の全 HNO_3 濃度の減少量は、高度12~15 kmの増加量と25%以内で一致したことが分かった。これにより、下部成層圏において HNO_3 の質量保存が示され、 HNO_3 を含んだPSCsの落下と蒸発が起きていたことを定量的に確認した。

表2 2月上旬からの下部成層圏の全 HNO_3 の減少量と増加量

Period	Denitrification	Nitrification	Diff. (%)
Feb. 10-17	1.1 ± 3.1	1.3 ± 2.9	+10
Feb. 18-25	2.6 ± 3.9	3.2 ± 6.0	+22
Feb. 26-Mar. 5	2.7 ± 3.5	2.5 ± 4.3	-7
Mar. 6-13	2.4 ± 5.4	1.8 ± 3.0	-25

単位は、 10^{32} molecules。差 (Diff.) は (Nitrification - Denitrification) / Denitrification である。

(4) まとめ

北極の極渦内の最低気温が氷点 (T_{ICE}) まで低下した直後に、脱室と硝化がほぼ同時に観測され始めた。最低気温が T_{ICE} 以下に低下した2月10~25日に、主な脱室と硝化が起きた。トラジェクトリー解析の結果、(1) 187 K ($T_{ICE} - 1$ K) と191 K ($T_{ICE} + 3$ K) の間の臨界温度まで一度冷却された後、(2) 4日間以上連続して T_{NAT} まで冷却されることが脱室が起きる必要条件であることが示された。 $T_{ICE} - 3$ K よりも低温で氷粒子が生成するという室内実験の結果を考慮すると、脱室は氷粒子によって引き起こされていないと考えられる。その代わりに、 T_{ICE} 付近の気温で NAT 粒子の核形成が起こる。本研究によって、脱室を引き起こす粒子の組成が NAT であり、NAT の核形成が T_{ICE} 付近で起きて4日間のあいだに成長・落下するという脱室過程が提案された。

脱室の高度は17~21 kmに限られ、北極の最低気温が T_{ICE} に低下した高度と一致した。この一致も T_{ICE} 付近の気温が脱室の温度条件であることの証拠である。北極全域における HNO_3 濃度の変化の見積もりから、最大の脱室の高度は18~19 kmであった。 T_{ICE} 以下に低下した領域の面積はこの高度で最大であり、温度条件の結果と整合的であった。硝化は高度12~14 kmで観測され、その高度の気温は一般に T_{NAT} 以上であった。脱室を引き起こした粒子は NAT 粒子であることを強く支持する。2月下旬から3月上旬における、高度16~23 kmの HNO_3 全量の減少量は12~15 kmの増加量と25%以内で一致した。これにより、 HNO_3 を含んだPSCの落下と蒸発の過程を通じた HNO_3 の質量保存が初めて実証された。

3月上旬まで、脱室と硝化の領域はそれぞれ、極渦の面積の40%と35%まで達した。極渦の中心付近の脱室の度合いは極渦の境界のそれよりも大きく、そこでの空気塊は最も低温を経験していた。極渦内の脱室の度合いの平均は20%と小さいが、極渦の中心付近の脱室は43%まで達した。1997年冬季の北極成層圏において、極渦の中心付近のオゾン破壊が脱室によって強められたと考えられる。

2.2.3 オゾン破壊速度

(1) はじめに

極域成層圏のオゾン破壊量の評価に不可欠な化学過程と輸送過程の分離を行うため、von der Gathen *et al.*¹⁾、Rex *et al.*²⁾等はMatch Techniqueを考案し、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を見ることに成功した。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考えるものである。

これまでオゾンゾンデデータについて行われてきたMatch Techniqueと同様の手法を用いて、Sasano *et al.*³⁾とTerao *et al.*⁴⁾はオゾンをはじめとする各大気微量成分とPSCsなどのエアロゾルを同時観測した改良型大気周縁赤外分光計(ILAS)データから、大規模な北極域でのオゾン減少が報告されている1996/97年冬期を事例にして、化学的オゾン減少率を算出した。本稿ではTerao *et al.*に基づき、人工衛星データをMatch Techniqueに応用した極域オゾン破壊量の定量化する手法、Double-sounded air parcel解析の解析手法とILASデータから求めた1997年冬期北極におけるオゾン減少量について報告する。また、 O_3-N_2O 相関手法によって定量化された春期北極極渦内のオゾンと総窒素酸化物濃度の関係(Sugita *et al.*⁵⁾)について報告する。

(2) 解析データと手法

オゾン混合比データはILASバージョン5.20を用いた。流跡線解析等に使う気象要素データはUKMO 全球同化データ(2.5度×3.75度, 12 UT)を用いた。

北半球における1997年1月から3月の全ILAS観測地点から、10日先までの流跡線をUKMO流跡線解析プログラムを用いて、375 Kから600 Kの計9等温位面上で計算した。ILASで観測された空気塊を流跡線解析で追跡し、数日後別の時間・位置で再びILASが観測するような空気塊(double-sounded air parcel)を探す。

オゾンゾンデデータを用いた解析(e.g., Rex *et al.*)に比べ、人工衛星データを用いた解析では、データが均質である、オゾン以外の化学種やエアロゾルを同時測定している、という利点がある。一方、一般的に人工衛星データはオゾンゾンデデータより鉛直分解能が粗く、観測空気塊が大きいといった欠点がある。この欠点を補うために、Terao *et al.*では、double-sounded air parcelを決定する際に複数の流跡線解析を行い、厳密な空気塊の決定条件を設定した。ILASセンサは太陽掩蔽法を原理として

いるので、観測空気塊の大きさは高度方向に約1.6 km、太陽視線方向に約300 kmである。この観測空気塊の4つの角（観測地点から、高度 ± 0.8 km、水平距離 ± 150 km）から流跡線を計算し（図22）、これらの流跡線が時間と共に大きく拡散するようなケースを解析から除外した。

Double-sounded air parcelの条件は、(1) 2つ目のILAS 観測地点と1つ目のILAS観測地点から前方流跡線で計算された位置との距離の差が500 km以内、(2) 1つ目のILAS観測地点の周り4点から計算した前方流跡線間の距離が1,600km以内、(3) 1, 2の条件を、後方流跡線でも満たす、(4) 1の前方流跡線に沿ったポテンシャル渦度（24時間の移動平均）の最大値と最小値の差の平均に対する割合が15%以内、であることとした。

オゾン減少率の計算の際には、まず、上述の条件を満たす極渦内の個々の double-sounded air parcel に対して、

非断熱冷却/加熱（ ）による空気塊の下降/上昇を考慮してオゾン混合比の変化を計算する。 により、観測ペアの始点と終点のオゾン濃度は異なる温位面上で求めることになる。非断熱加熱率は Knudsen *et al.*[®] を利用した。次に、ある日に対して前7日以内に出発して後7日以内に到着する様な double-sounded air parcel を選び出し、データのセットを作る。そして、オゾン変化は時間に対して線形であると仮定し、最小二乗法でオゾン変化と時間の回帰係数を求め、それをオゾン変化率と定義した。

(3) 結果と考察

1) 極渦内平均オゾン変化率

まず、極渦内で得られた double-sounded air parcel を用いて、極渦内平均オゾン変化率を算出した。図23 (a)

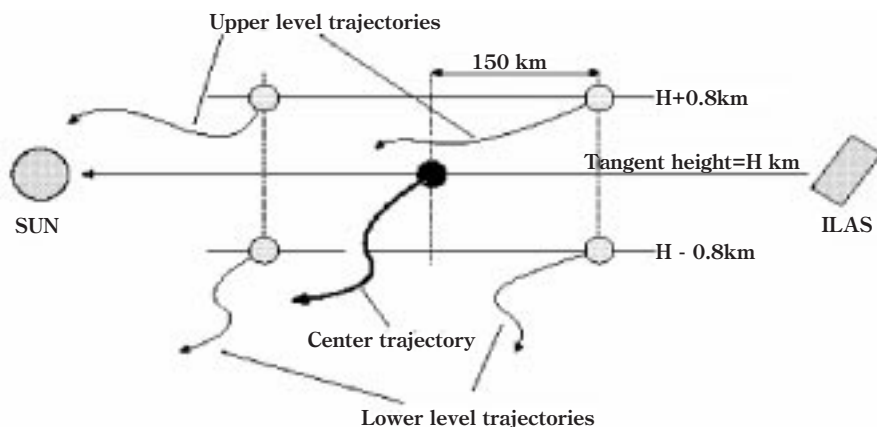


図22 流跡線解析の概念図

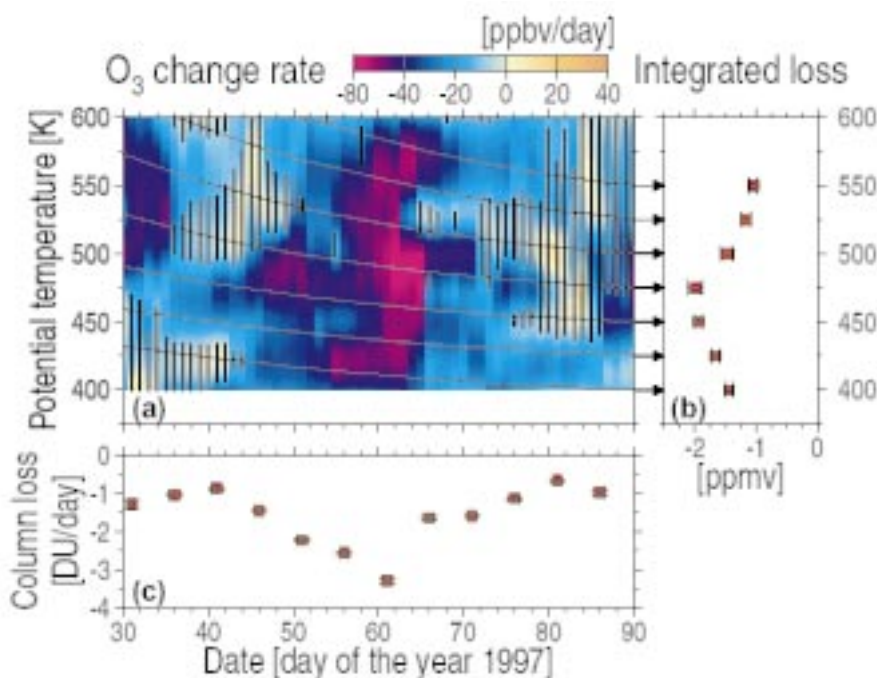


図23 (a) 極渦内平均オゾン変化率 (ppbv/day) の高度時間断面図
縦線は統計的に有意でない領域 (有意水準 99%) を、ゆるやかな曲線は空気塊の非断熱下降運動に伴う温位変化を示す。データは鉛直方向に 1 K 間隔でスプライン補間した。
(b) 空気塊の下降に沿った積算オゾン変化量 (ppmv) エラーバーは 1 シグマ。
(c) 400 K から 600 K で積算したオゾンカラム変化量 (DU/day)

に、一日あたりのオゾン変化率 (ppbv/day) の高度時間断面図を示す。これは、1時間太陽光があたった時のオゾン変化量 (ppbv/sunlit hour) に、流跡線上に太陽光があたった時間の日平均値を掛けることにより算出された。ほとんどの領域でオゾンは有意に減少していて、わずかに見られるオゾンの増加域は統計的有意性が無い。オゾン減少率は2月下旬から3月上旬の450~500 K面で最大50~80 ppbv/dayに達した。

非断熱下降する空気塊に沿って積算したオゾン減少量 (図23 (b)) は、1月30日 (529 K) から3月31日 (475 K) で最大2.0 ppmvを記録した。1月30日の529 Kにおける極渦内平均オゾン混合比は3.6 ppmvであることから、この2ヵ月間で約55%のオゾンが化学的に減少したことが示された。また、オゾン変化率を混合比から数密度に変換して単位気柱におけるオゾン減少量を計算した結果 (図23 (c)), 1月30日から3月31日の400 Kから600 Kにおけるオゾンカラム減少量は96 DUであった。

2) オゾン変化率の極渦内分布

ポテンシャル渦度のスケールを用いて、オゾン破壊速度と極渦に対する相対位置の関係を調べた。図24はrelative PV (rPV) (Rex *et al.*) によるオゾン破壊速度の違いを表す。rPVは、ポテンシャル渦度をその等値線で囲ま

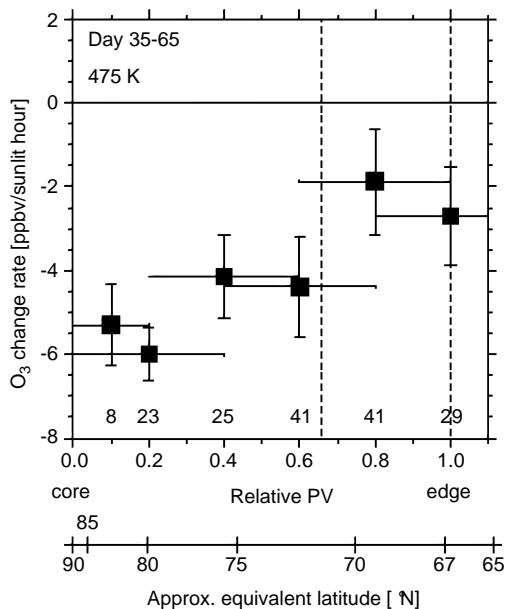


図24 温位面475 Kにおける2月4日から3月6日のオゾン変化率 (ppbv/sunlit time) の relative PV (rPV) による違い。図中の数字は、それぞれのオゾン変化率を計算するのに用いた double-sounded air parcel の数を示す。また、点線は極渦境界 (1.0 rPV) と極渦境界領域 (0.66 rPV) を示す。補助的に、平均的な等価緯度のスケールも示した。

れた面積が等しくなるように正規化したもので、1が極渦境界、0が極渦中心を表す。大規模なオゾン減少が確認された2月の475 Kにおいて、オゾン減少率は極渦の境界から中心に向かって大きくなり、極渦中心付近で最大6.0 ppbv/sunlit hour に達した。これは、極渦境界領域でのオゾン減少率の約3倍の大きさである。

3) 春期北極極渦内のオゾンと総窒素酸化物濃度の関係

本節ではDouble-sounded air parcel 解析とは別に行った、 O_3-N_2O 相関手法によって定量化されたオゾン破壊量について述べる。ILASデータから O_3-N_2O 相関手法によって北極極渦内の2月始めから4月終わりにかけての550 Kでのオゾン破壊量を定量化し、その破壊量を $HNO_3+NO_2+CINO_3+2*(N_2O_5)$ の総和量ごとに分類し、オゾン破壊と総窒素酸化物濃度の関係を考察した。2月から3月では、より大きなオゾン破壊はより少ない総窒素酸化物の空気塊で見られたが、同時に一般的にはより気温履歴の低い空気塊でもあった。しかし、4月初めでは気温履歴がほぼ同じであったために、総窒素酸化物量がオゾン破壊量を支配している可能性が見られた (図25)。

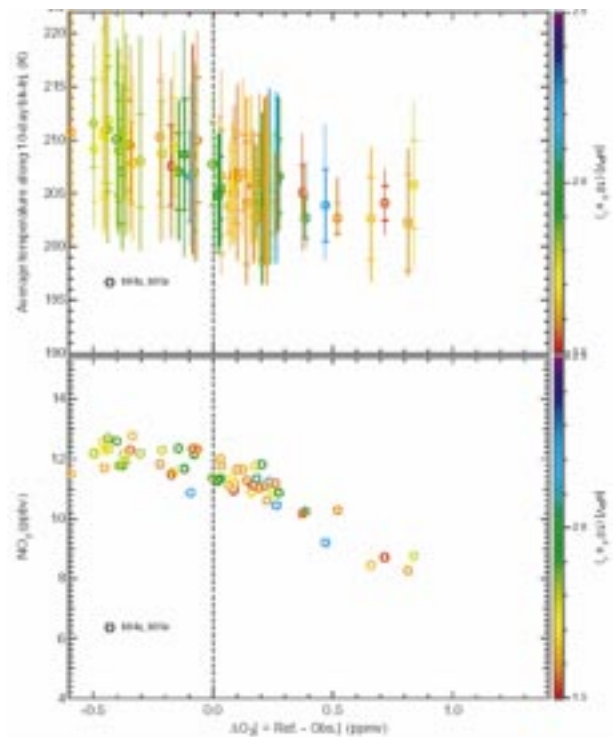


図25 O_3-N_2O 相関から得られた1997年3~4月の500 Kにおける1ヵ月のオゾン減少量 (4月初めの観測値と3月初めの参照値の差) と (上) 空気塊の10日間後流跡線上の平均気温、(下) 総窒素酸化物濃度、との関係。色は空気塊の規格化されたポテンシャル渦度を示す。

(4)最後に

我々のグループは、オゾン破壊速度を定量化する手法 Match TechniqueをILASによる衛星観測データへ応用することに成功した。本研究では、ILAS バージョン5.20 データを用いて、1997年冬～春季北極域の極渦内における化学過程によるオゾン破壊量を定量的に評価した。また、ILASで行った本解析を、Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) II およびIIIデータに応用し、1994年から2000年までの各北極冬期のオゾン変化率の算出も行っている (Terao, manuscript in preparation)。ILAS と POAM II/III は、極軌道衛星搭載の太陽掩蔽観測センサという共通点があるため、観測緯度帯がほぼ一緒である (図26)。北極では極渦の形状が毎年異なるため、年によってはPOAMの極渦内での観測数が少ない場合もあるが、各年のオゾン破壊の特徴はとらえることができた。ILASはPOAMよりも観測化学種が多いという点で優れており、硝酸やメタン、一酸化二窒素の変動も解析できる。これらオゾン以外の物質については現在鋭意解析中である。

オゾンゾンデによるMatch実験は人的にも経済的にも困難を伴うものであるため、2003年を最後に今後予定されておらず (2003年3月現在)、ILAS-IIから取得されるデータと本研究で提唱された人工衛星によるMatch解析は、今後の成層圏オゾン層のモニタリングに大きく貢献できるであろう。

2.2.4 北極における水蒸気の不可逆的除去 (脱水過程)

水蒸気の不可逆的な除去はこれまで述べてきた硝酸の不可逆的な除去過程 (脱窒)と同様に、巨大な PSC 粒

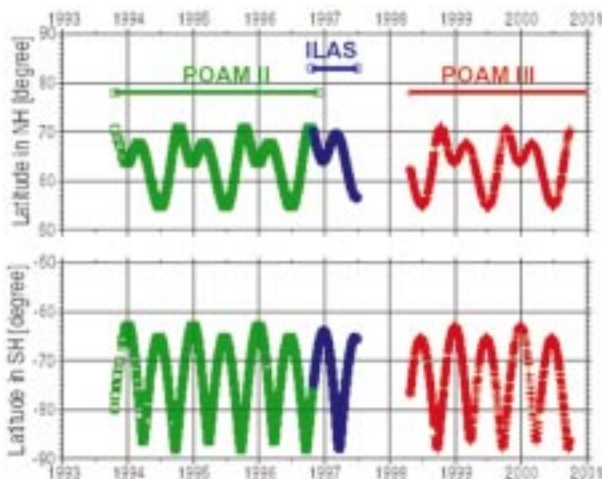


図26 POAM II, ILAS, POAM III の観測緯度帯

子の重力落下により引き起こされると考えられている。しかしながら、この極域成層圏に特有の現象は、これまで南極においては、航空機観測、衛星観測などにより多くの報告があるものの、北極においては、ごく数例の気球観測などの直接測定によってしか報告されていない。その主な理由は、北極は南極ほど気温が低下しないからであると考えられている。また、低温域の範囲は水平方向にも高度方向にも北極では小さいため、脱水を検出すること自体が難しい。これをつきとめるためには、高い高度分解能で高頻度の観測 (特に高度分解能の高い衛星観測が有効)が必要となる。どのような条件の下でどの程度の脱水が生じ得るのかを調べることは、PSCの生成メカニズムを明らかにする上で重要である。また、脱水が一度生じた空気塊では、水蒸気濃度が少ないために、次にPSCが生成するためには、より低い気温が必要となるなどオゾン破壊メカニズムを考える上でも重要である。

まず脱水の影響を受けたイベントを検出するために、脱窒のところで述べたように、 H_2O と N_2O の相関関係を利用した。図27には北極の1月の温位レベル400~600 Kでの H_2O - N_2O 相関関係を示す。で示された観測は極渦の内側、は極渦の境界、そしては極渦の外側を各々示している。これらの図から観測時の気温が200 K以上のデータを抽出し、それらのデータに対して多項式フィッティングを施し、脱水の影響を受けていないバックグラウンド曲線を求めた。この曲線の標準偏差の ± 2 倍

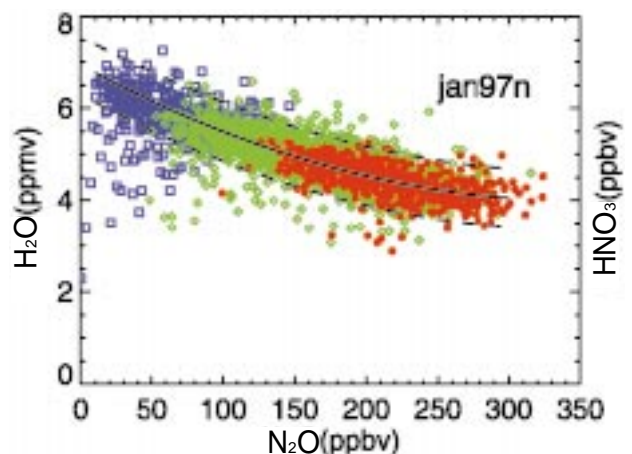


図27 1997年1月に北極の温位レベル400~600 KでILASによって観測された H_2O と N_2O の相関関係、は各々極渦の内側、境界、外側で観測されたことを示す。実線は気温200 K以上の観測に対して多項式フィットしたもの。破線はそのフィットからの ± 2 標準偏差を示す。

の曲線（破線）から逸脱しているイベントを脱水イベントと同定した。また ΔH_2O 軸に対してバックグラウンド曲線からの逸脱量をデルタ H_2O (ppmv) と定義する。

抽出されたこれらの脱水イベントが、その場での氷粒子の存在によって減少しているかどうかを次に調べた。そのために観測空気塊の観測時の気温と観測されるまでの過去10日間の気温履歴中の最低気温を調べた。図28はそれらの気温と氷粒子の飽和温度 (T_{ICE}) との差の関数としてデルタ H_2O を示している。この図には熱力学的に決まる氷粒子上での飽和水蒸気混合比を青の曲線で示している。多くのイベントはこの熱力学的な予測通りに T_{ICE} 以下の温度でデルタ H_2O の負方向の減少が始まっているのが分かる。しかしながら、 T_{ICE} より3~4K高い

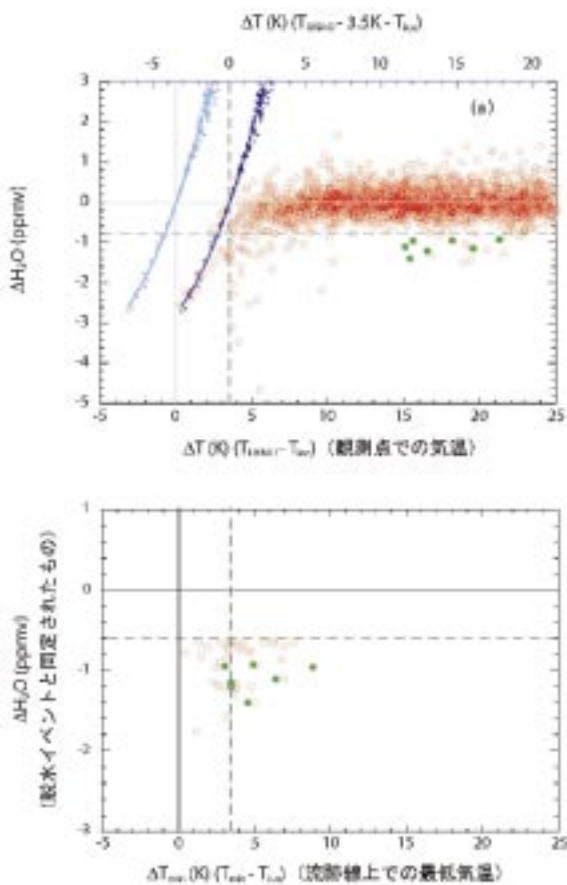


図28 定量化された水蒸気の除去量（デルタ H_2O ）と観測気温と氷粒子の飽和温度との差（デルタ T ）の関係（上のパネル）

図中の青い2つの曲線は氷粒子上での飽和水蒸気混合比の理論値を示す（可能性のあるUKMO気温の温暖バイアス分を考慮した場合と非考慮の場合）。下のパネルは上のパネルで有意な負のデルタ H_2O が観測された40程度のイベントについて、観測空気塊の過去10日間の気温履歴中の最低気温と氷粒子の飽和温度との差（デルタTMIN）に対してデルタ H_2O をプロットした。図中の破線は可能性のあるUKMO気温の温暖バイアス分を考慮した場合。

気温においても、いくつかのイベントでは有意に大きな負のデルタ H_2O となっている。これらイベント（約40）のみを取り出して、デルタ H_2O 値を気温履歴中の最低気温に対してプロットしたのが、図28の下のパネルになる。この図から分かることは、これらイベントは観測されるまでの間に一度は T_{ICE} 付近の気温を経験していたことである（なお、図の中の破線は可能性のあるUKMO提供の気温データの温暖バイアス（3.5 K）を示す。つまりこの破線の気温が実際の T_{ICE} 付近と考えられる。）。またこの図から分かるように、1997年1月の北極渦内において、最大で 1.8 ± 0.32 ppmvの水蒸気の除去が、衛星観測としては世界で初めて観測された。

2.2.5 極渦活動度の長期変動の解析

(1) 規格化した渦位傾度（NGPV）を用いた極渦変動図の作成

欧州中期気予報センター（ECMWF）や米国環境予測センター／米国大気研究センター（NCEP/NCAR）、気象庁（JMA）等によって作成される天気予報用の三次元気象データ（客観解析データ）を用いて、渦位と呼ばれる物理量（等温位面上では保存量なので、一種のトレーサーとして扱える）の分布を求め、極渦の可視化を行うことができることを、これまでの研究で明らかにしてきた。本研究では、最近公開された1958年から約40年間のNCEP/NCAR再解析データについて同一の手法を適用して可視化し、さらに極渦の特性を表すパラメータを抽出して、そのトレンド及び長期・短期変動について解析した。

極渦内外の境界には、極渦内外の輸送の壁が存在するため渦位の勾配が大きい。したがって、渦位を等価緯度で微分し、渦位によって規格化した量（normalized gradient of potential vorticity; NGPV）, $s(\varphi)$,

$$s(\varphi) = (dQ/d\varphi)/Q$$

によって、その時刻の極渦の境界の位置（等価緯度）および輸送の壁の強さが分かる。NGPVの値は平均すると90分の1（0.011）となるが、その約3倍の値0.03以上のところが極渦の縁にあたる。NGPVのピークは北極でも0.06以上、南極では0.07以上になっていることが多い。そして、 $s(\varphi)$ のピークの位置 φ_e^{max} が極渦の境界の位置であり、 $(90 - \varphi_e^{max})$ が緯度で表した極渦半径となる。また、 $s(\varphi_e^{max})$ がその時刻の極渦強度である。 $s(\varphi)$ の時間変化を秋から初夏まで図示すると、その冬（ここでは、

晩秋から晩春までの極渦のある期間を「冬」で代表する)の極渦の強さ、大きさ、継続期間、安定性が一目で分かる。これを「極渦変動図」と称した。

(2) 北半球および南半球の極渦変動

北半球の1959年から2000年までの42年間の極渦変動図を図29に示す。なお、ここでは、1958年の秋から1959年の初夏までの期間を「1959年(の冬)」で代表する。高緯度側と低緯度側が $s(\varphi)$ の高い部分によって分離され、それが明瞭になる11月終わりから12月の始め頃が極渦の生成時期である。この後極渦が成長し半径20度~30度の極渦ができ、3~5月のある時期に $s(\varphi)$ の高い部分が消失する。これが最終昇温による極渦の崩壊にあたる。ところが突然昇温のために、1月や2月に $s(\varphi)$ の高い部分が突然消えて極渦が無くなること、小さくなることもある。1963年2月初旬や1973年2月、1977年1月、1985年1月に明瞭に見られる。また、1967年、1972年、1976年、1993年、1997年などの年には極渦が強くて安定していたことが分かる。1995年2月初旬にも小さいがはっきりした昇温があったが、その後極渦は再び安定

化した。1999年には極渦はきわめて弱かった。2000年の極渦は2月から3月始めにかけて非常に強かった。また、3月中頃の極渦の分裂後も小さな極渦が4月後半まで残ったことが分かる。また、1959年から2000年までの42年間の北半球の極渦変動図を眺めると、1997年までは極渦が徐々に強くなっていること、安定化していることが定性的に分かる。北半球での極渦強度は、少なくとも太陽活動が活発な期間においては高度17~22 kmで、高度が高くなる程強くなる傾向(年率約1%)にあることが見いだされた。一方極渦半径は17~22kmの高度範囲ではほとんど同程度であり、また40年間に3~4度大きくなる傾向がはじめて見いだされた。

南半球では極渦の強度、半径、持続期間、安定性のいずれもが北半球より大きく、特に極渦強度は大きくなってきていることが分かった。一方極渦の半径は1960年代と比較しても増加しておらず、極渦生成から極渦消滅までの間の極渦半径の変化も、1960年代ではほぼ一定の半径を有していたのに対し、1990年代には極渦生成時には半径が小さく、7月頃に最大になり、その後縮小する特徴を有していることが分かった。

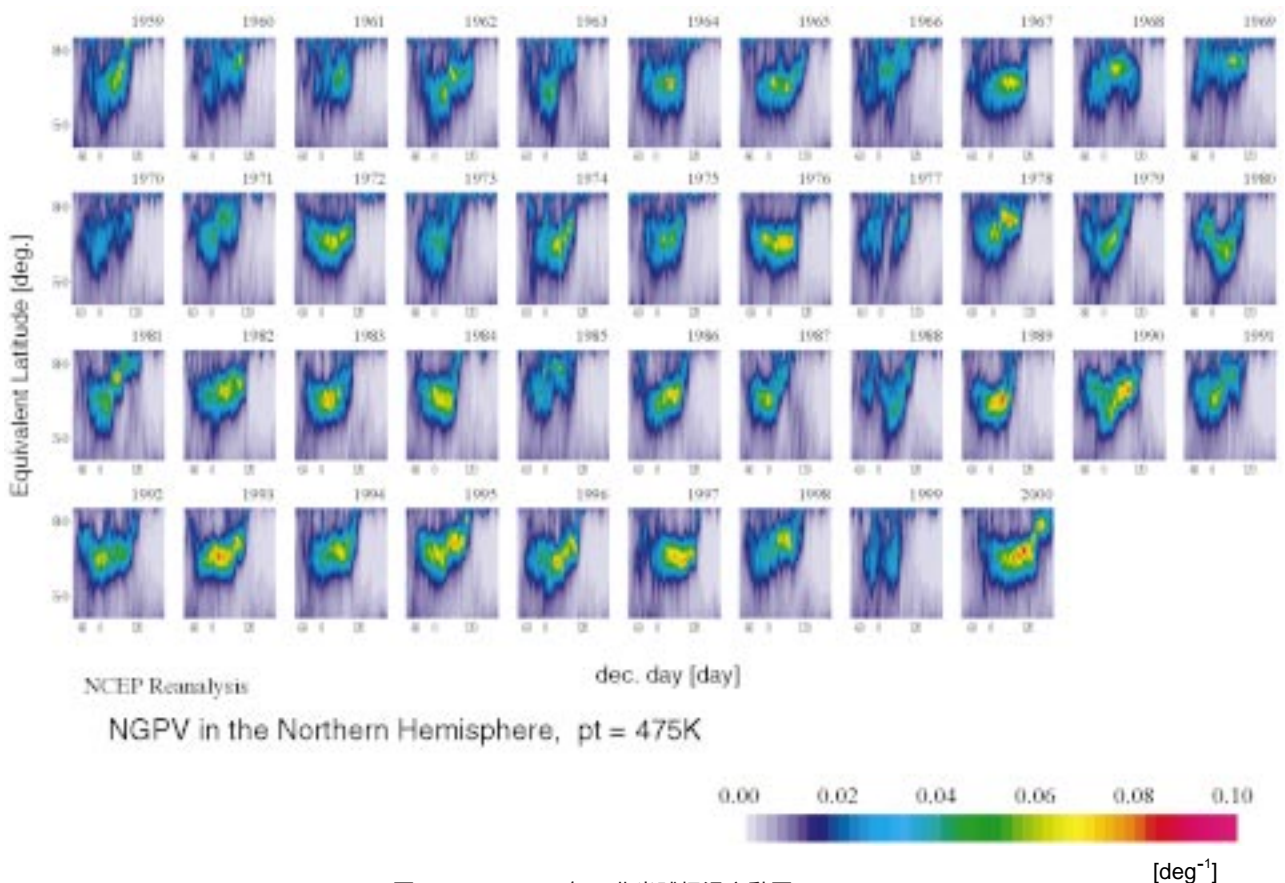


図29 1959~2000年の北半球極渦変動図
規格化渦位傾度の時間-等価緯度面上マップ。

2.3 中緯度オゾンの変動

極域のオゾン破壊は冬から春にかけて形成される極渦の内部において生じることは、2.2節で述べてきた。それに対して、中緯度のオゾン変動を把握することは以下の理由から非常に難しい。(i) 春から初夏にかけての極渦起源の空気塊の輸送の影響 (ii) 亜熱帯域からの空気塊の輸送の影響 (iii) 中緯度その場での光化学的なオゾン破壊(極域オゾン破壊とはメカニズムは異なる)の影響などが非常に複雑に絡んでくる。特に力学的な輸送の影響を調べるためには、光化学的に寿命の長い亜酸化窒素(N_2O)の挙動をオゾンの挙動とともに調べることが重要である(2.3.1項, 2.3.2項)。また2.3.3項では、ILASによって観測された N_2O の挙動を三次元化学輸送モデルによって再現することに成功しており、1997年の北半球において、どのような輸送過程が中緯度に影響を及ぼしているのかが明らかになった。さらに2.3.4項では成層圏の力学場を考える上で重要な中間圏(成層圏の上、高度50 km以上)での熱構造を支配するオゾン濃度の高精度長期モニタリングの結果を紹介する。2.3.5項では中緯度でのオゾン破壊メカニズムを考える上で重要となる液相-気相間の不均一反応の室内実験結果を紹介する。

2.3.1 夏期の北半球中高緯度オゾン, 亜酸化窒素の挙動

(1) はじめに

冬期北極周極渦崩壊後, 春から夏にかけての下部・中

部成層圏における光化学過程と力学過程を研究することは、対象となる領域の特殊性(全日照等)の考慮を必要とする意味で極めて興味深い。最近では、1997年に行われたNASAのPOLARIS(Photochemistry of Ozone Loss in the Arctic Region In Summer)航空機観測からの優れた結果が注目される。しかし航空機観測の場合、議論可能な高度領域が18~20 kmに限られてしまう難点がある。この章では、POLARISと同時期の1997年4月から6月にかけてILASで測定されたオゾン, N_2O の中高緯度の高度23~25 km付近における挙動について議論する。用いたデータバージョンは5.2である。

(2) ILASの観測結果

図30は、Day number 91(4月1日)から180(6月30日)までの温位600 Kレベル(高度23~25 km付近)におけるオゾン混合比の時間-経度断面を示す。この図の特徴は、Day 130以降でオゾン濃度の低い領域が西進していることである。そしてそれは、少なくともILASの観測終了となったDay 180まで持続していたことが分かる。これについて期間を二つに分けて考察すると、Day 150までは、この低濃度のオゾンは、低濃度の N_2O の領域と良く一致しており、周極渦内のオゾン, N_2O ともに低濃度の空気塊が極渦崩壊後に西進していったものと考えられる。Day 150以降では、UKMOの等圧面高度場の解析を行った結果、オゾン等で見られた波動構造(東西波数2, 周期約半月)とほぼ同様な波動の存在が確認できた。

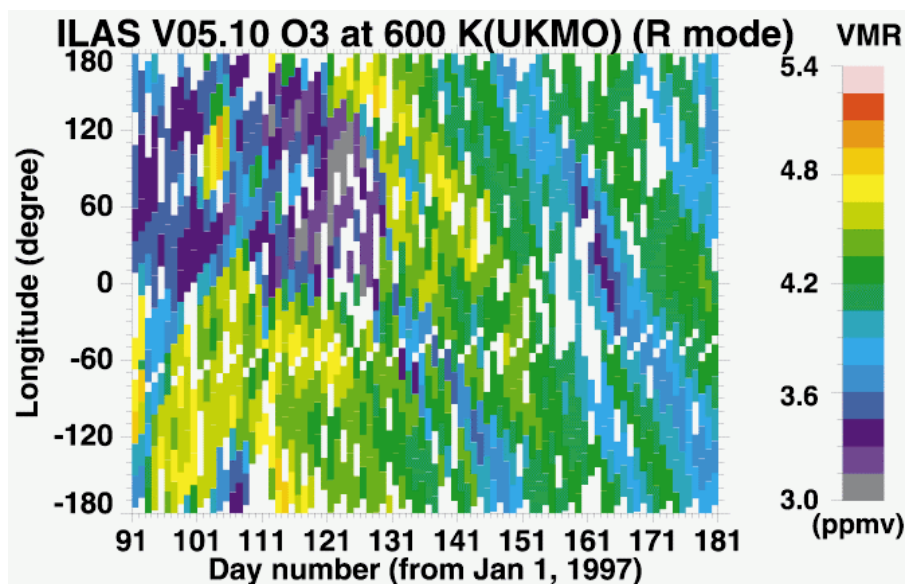


図30 ILASにより測定されたオゾン混合比の時間-経度断面図
観測緯度帯は、北緯55~65度。

このことから、この期間のオゾン等に見られる西進構造は、波動活動にともなう移流によって作られたものと示唆される。また、Day 150以降、低濃度のオゾンに対応して高濃度のNO₂が見られた。

次に図30に示されている600 Kレベルでの低あるいは高濃度のオゾンがどこから運ばれてきたかを調べるために、各観測ポイントから10日間の後方流跡線解析を行った。用いた気象データはUKMOデータである。これら流跡線解析結果から、過去10日間の空気塊の平均滞在緯度（ここではALと定義する）を計算した。その値に対してオゾン混合比をプロットしたものが図31である。また、ILASの各観測点でのポテンシャル渦度の値（PVU）はグレースケールにて示されている。図32はN₂Oであることを除いて図31に同じである。

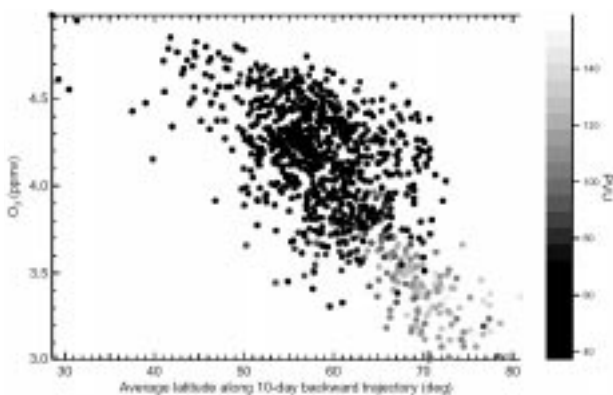


図31 過去10日間の平均滞在緯度に対するオゾン混合比
シンボル色はPV値でスケールされている。

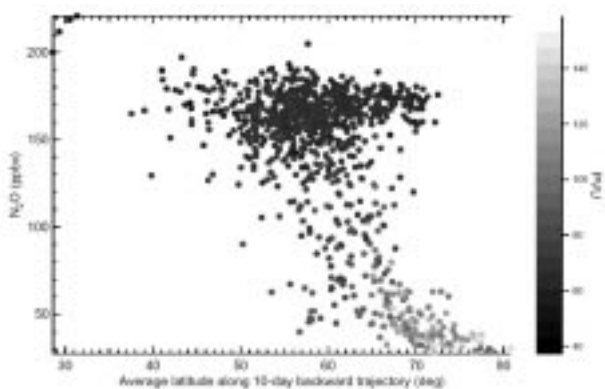


図32 N₂O混合比であることを除き図31に同じ

これらの図から見られる特徴的なことを示す。まず、N₂O混合比は70 PVU以下の空気塊においては、ALに対して170 ppbv +/- 20 ppbv程度とほぼ一定であるのに対して、オゾン混合比はALとよい逆相関にあることが分かる。このことはこの時期のこの温位におけるトレーサー

フィールドには明瞭な緯度勾配は見られていないのに対して、オゾンフィールドには明瞭な緯度勾配が見られており、より高緯度域でのオゾンの光化学的破壊反応の進行を示唆している。なお、70~80 PVU以上の空気塊は5月後半までILASにより観測され続けた極渦消滅後のパッチ状の“remnant”に対応している。

(3) まとめ

1997年4月から6月にかけて北半球中高緯度でILASにより観測されたオゾン濃度の時間-経度断面（温位600 Kレベル）から、大気の波動活動に伴うと考えられる西進構造が確認された。次にオゾン濃度の低い空気塊がどこから輸送されてきたかを系統的に調べるために、10日間の後方流跡線解析を観測されたすべての空気塊について行った。この10日間の平均滞在緯度（AL）の関数としてオゾン濃度と亜酸化窒素濃度を表した。その結果、5月以降の極渦起源の空気塊を以外に着目すると、亜酸化窒素の場合はAL値に依存せず、ほぼ一定の濃度となっているのに対して、オゾンの場合はより大きなAL値ほどオゾン濃度が小さくなっていることが明らかになった。このことから、この時期の600 Kレベルのオゾンの光化学的破壊は、より高緯度側ほど大きいと言える。今後、光化学流跡線モデル等を利用して、観測されたオゾン破壊が、どのオゾン破壊サイクルがどの程度寄与したことによって再現されるかを調べる。

2.3.2 極渦崩壊時の高緯度域における微量気体成分の混合

今回の解析では、南半球で極渦が崩壊した1996年11~12月、および北半球において極渦が崩壊した1997年4~5月に焦点を絞った。これらの時期のILASのすべての観測点を、等価緯度（Equivalent Latitude）- 温位（Potential Temperature）の座標に分類し、10日おきに各微量気体成分についてその二次元分布図を作成した。その結果、南北両半球について、極渦崩壊時にそれぞれ特徴的な微量成分の極方向への輸送が起きていることが明らかとなった。

図33に、ILASによる、1996年11月11日から11月20日までの10日間の全南半球観測点を用いた、N₂Oの等価緯度-温位座標プロットを示す。このように、等価緯度を用いることによって、地理緯度で見るとかなり狭い緯度帯でしか観測を行えない（11月11日から20日の10日間で

は南緯71.6度から南緯68.9度)。太陽掩蔽観測センサーデータを用いても、等価緯度で南緯30度以南のほとんど全緯度帯をカバーしていることが分かる。N₂Oの分布で見ると、黒線で示した極渦の中と外で、明らかにN₂O混合比に大きな差があるのが見て取れる。それが図34の12月11日から20日の10日間になると、ちょうど12月20日前後の極渦の崩壊に伴って、極渦内へ極渦外の濃度の高い気塊が注入されるのが見て取れる。この現象が明瞭に見える高度はそれぞれの微量気体で異なり、O₃: 1000K, HNO₃: 600K, NO₂: 1000K, N₂O: 800K, CH₄: 900K, H₂O: 900K,

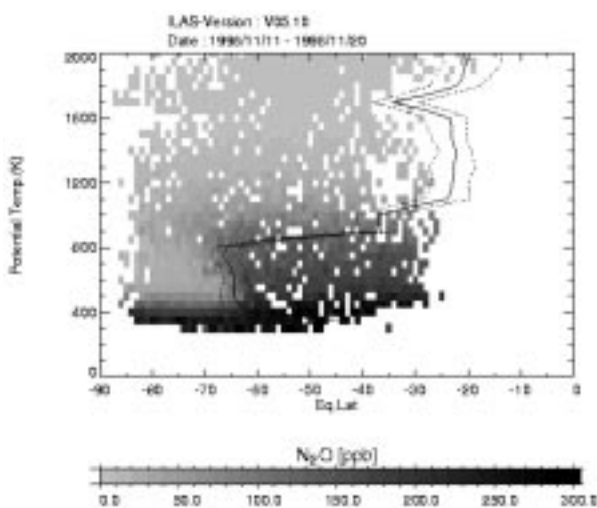


図33 ILASによる1996年11月11日から11月20日までの全南半球観測点を用いた、N₂Oの等価緯度 - 温位座標プロット
図中の黒線は、極渦境界位置 (inner edge, center, outer edge) を示す。

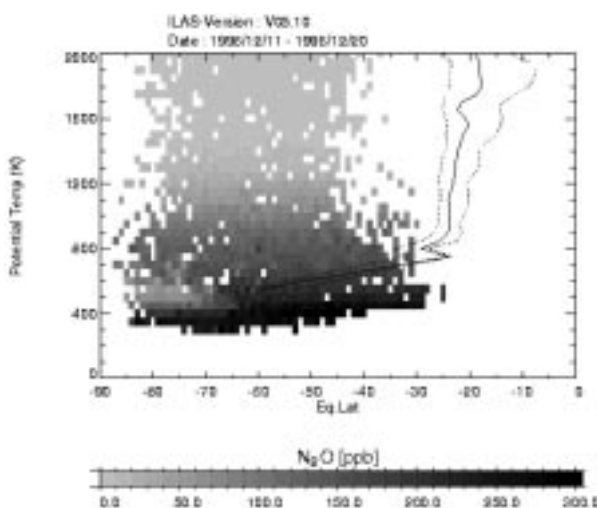


図34 ILASによる1996年12月11日から12月20日までの全南半球観測点を用いた、N₂Oの等価緯度 - 温位座標プロット

aerosol: 700Kとなっていることが分かった。これら、極渦内外の空気塊の混合が明瞭に見える高度が異なるのは、それぞれの微量気体の濃度が最大となる高度が、それぞれの成分で異なっているためと考えられる。そのおかげで、それらの高度で極渦が崩壊し、極渦内外の空気塊の混合が起こる時期の違いを明らかにすることができた。つまり、極渦が高い高度から徐々に低い高度に向かって崩壊していく様子を見て取ることに成功した。

もちろん、これらの微量気体成分の中には、NO₂やO₃, HNO₃のように、光化学反応の寄与が大きい物質も含まれているが、基本的には極渦の崩壊に伴って極渦内外の気塊の混合する様子が明らかとなった。

2.3.3 化学輸送モデルを用いた極渦崩壊後の亜酸化窒素の混合過程

(1) 背景

図31でも見られる様に、ILASによってポテンシャル渦度の値 (PVU) の大きくかつN₂O濃度の低い空気塊がALの小さい領域においても観測されている。このことは、極渦内にあった空気が極渦崩壊後も周りの空気と直ちに混合されずに存在している可能性を示唆している。類似の現象についてEhhalt *et al.*⁷⁾は、南フランス (43 ~ 44°N) 夏季に対流圏から成層圏下部にかけて、寿命の長い物質 (N₂O, CH₄, CFC-11, CFC-12) の気球観測を行い、成層圏の変動が少ない夏にかかわらず、これらの物質の濃度が大きく変化することを見いだしている。Hess and Holton⁸⁾とHess⁹⁾は、観測された物質濃度の変動の説明として、極渦内にあった空気が極渦崩壊とともに一旦はちぎれてバラバラになるが、そのちぎれてきた極渦内起源の小空気塊がその後数ヶ月の間、周りの空気と容易に混合されず夏の成層圏に“frozen in (凍結)”されるといふ仮説を立て数値計算によってその可能性を示した。さらにHess¹⁰⁾は、そのような極渦起源の空気塊の極渦崩壊後の混合過程について、GCMを用いた計算結果の詳しい解析を行っている。このような研究をもとに本研究では、ILASによる高緯度の微量成分分布観測が行われた1997年について、極渦内起源の空気塊が夏の成層圏でどのように“frozen in”されているのかを、ILASのVersion 5.20 N₂Oデータとナッジング化学輸送モデル (CTM) によるN₂Oの分布および変動の計算によって調べた。

(2) 化学輸送モデル

ILASによって観測された1997年北極渦崩壊後の N_2O の大きな濃度変動を理解するため、国立環境研究所のオゾン層モデリング研究チームが開発を行った化学輸送モデルによって、 N_2O 分布のシミュレーションを行った。この化学輸送モデルについての詳細は、後に2.4.1項で述べるが、東京大学気候システム研究センターと国立環境研究所で共同開発を行った大気大循環モデルに、国立環境研究所が開発した大気微量成分の濃度計算モジュールを結合し、さらに気温と風速のデータをこのモデルに入力して同化させ、毎日の大気微量成分の濃度分布を計算できるようにしたものである。化学計算ルーチンの改良点は、臭素系物質に関する光化学反応を導入したことと、 N_2O やフロン、ハロンなどの200nm以下の波長でのSchumann-Runge帯による光解離の効果を考慮に入れたことである。Schumann-Runge帯における放射の計算は、Minschwaner *et al.*¹¹⁾のパラメタリゼーションを用いた。Schumann-Runge帯による光解離の導入により、紫外域での光解離効果が強化され、対流圏上部から成層圏にかけて、これらの気体の濃度が上層へ向かって急激に減少し始める高度がより低くなり、鉛直分布が観測値とよく合うようになった。このモデルの水平分解能は $T42$ ($2.8^\circ \times 2.8^\circ$) である。

(3) ILASと化学輸送モデルの N_2O 濃度分布の比較

図35に、ILASと化学輸送モデルの、600 K (高度22~24 km) の等温位面上における N_2O の混合比の時間-経度断面を示す。1997年4月1日からILAS観測が中止されるまでの6月30日までの期間について示されている。ILASの観測緯度は、一番上のパネルで示されている。CTMの出力は、ILASの観測緯度・経度・時間に関して線形補間されている。CTMは N_2O 混合比の値が小さいところでILASに比べて若干大きい混合比を与えるが、図に示された1997年の北極渦崩壊(1997年5月10日あたり)前後で、観測とモデルの N_2O の変動・分布はかなりよい一致を示している。ここでは、ILASデータと化学輸送モデルの計算値の一致が特によい600Kの温位面上での N_2O 分布に関してモデル結果を述べる。なお、図35において、極渦崩壊後、低濃度 N_2O 空気塊を示す筋がとぎれている部分があるが(6月5日あたり)、これは、この気塊がILASの観測緯度をはずれて南へ一時的に移動したためである。

(4) 化学輸送モデルによって計算された極渦崩壊後の低濃度 N_2O 空気塊の混合過程

図36に、化学輸送モデルによって計算された N_2O の600 Kの等温位面上の分布を示す。1997年5月1日(極渦崩壊直前)、13日(極渦崩壊直後)、22日(低濃度 N_2O 空気塊がきれいな円形をしていた時期)、28日(低濃度 N_2O 空気塊が極渦崩壊後最初のstretchingを経験している時)について示してある。また、 N_2O との比較のために、この温位面上の渦位の分布を下段に示す。北極渦崩壊によって $0^\circ E$ 付近に起源を発する(図35を参照)、半径1,000~1,500 km程度の丸い形をした極渦内起源の低濃度 N_2O 空気塊が形成された(図36, 5月22日, $90^\circ W$ 付近)。5月下旬までには、極渦内起源の空気塊の渦位は、周囲の空気の渦位と大差なくなりそのコントラストが失われているのに対して、 N_2O の方は、明らかにその濃度コントラストを保っている。これは、下部成層圏では渦位のタイムスケールが1~3週間なのに対して、 N_2O の光化学タイムスケールが数年であるということに起因する。この低濃度 N_2O 空気塊は北極渦崩壊後の5月中旬から7月15日まで北極の周りを時計回りに約2周回って北極の中心に近づき、動きが止まった。その間数回“stretching”を経験し、その度に周囲との濃度コントラストを弱めていった。低濃度 N_2O 空気塊がstretchingを経験する時のこの濃度コントラストの弱まりの原因の一つは、温位面上に水平な、等温位面上での混合が起こるためだと考えられる。また、このとき空気塊は鉛直方向には西に傾いており、そのうち東風の鉛直シアによってこの低濃度 N_2O 空気塊の傾きが大きくなり、ついには引き裂かれて鉛直方向に周囲の空気との混合が起こり濃度コントラストが弱められていく効果も、等温位面内の混合に劣らず大きい(Hess¹⁰⁾)。実際、我々の化学輸送モデルによる計算でも、stretchingを経験しているときには、低濃度 N_2O 空気塊が西に傾いていることが確認された(Akiyoshi¹²⁾)。化学輸送モデルの中でも水平方向の混合と共にこのような鉛直方向の混合が起こり、低濃度 N_2O 空気塊の濃度コントラストが弱められていったと思われる。

(5) 下部成層圏渦拡散係数の推定

ILASで観測された北極渦崩壊後の $0^\circ E$ 起源の低濃度 N_2O 空気塊は、CTM計算によって、初期の段階では、その形が丸くてきれいな形をしていたことが分かり、また、この気塊のその後の挙動が追跡できた。そこで、拡散方

程式を使って、この空気塊の空間スケールと持続時間から、この気塊のプラネタリスケールでの渦拡散係数を見積もった。600 K上での初期の低濃度 N_2O 空気塊の半径 $x = 1000 \sim 1500$ km, 寿命 $t = 2.5$ ヵ月 (7月下旬まで識別可能だという計算結果) より, $1/2 (x)^2 / t$ により渦拡散係数の値を計算すると, $0.77 \sim 1.7 \times 10^5 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ とい

う値を得た。550 K上では, $t = 1.5$ ヵ月 (6月下旬まで識別可能だという計算結果) により, $1.3 \sim 2.97 \times 10^5 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ となった。これらの値は、極渦崩壊後の下部成層圏の、プラネタリスケールでの渦拡散係数の値として、妥当な値である (例えば, Newman *et al.*¹³; Plumb and Mahlman¹⁴; Haynes and Shuckburgh¹⁵ など)。

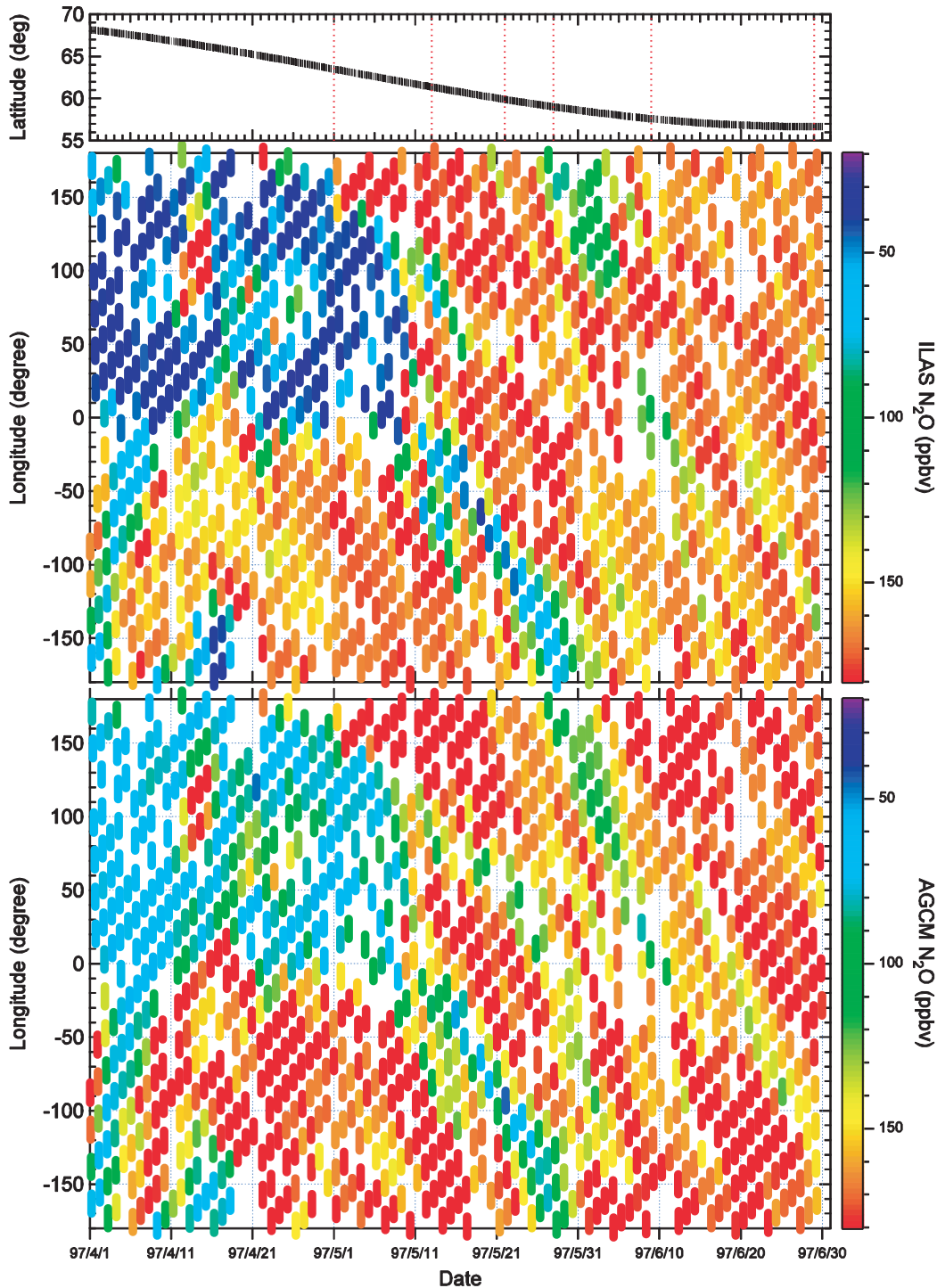


図35 600 K等温位面上の N_2O 体積混合比の時間 - 経度断面
1997年4月1日から6月30日のデータ及び計算結果。ILASによる観測値(上)と化学輸送モデルによる計算値(下)。ILASの観測緯度をいちばん上の小パネルで示す。このパネルの中の縦点線は、図36で示される日付を示す。

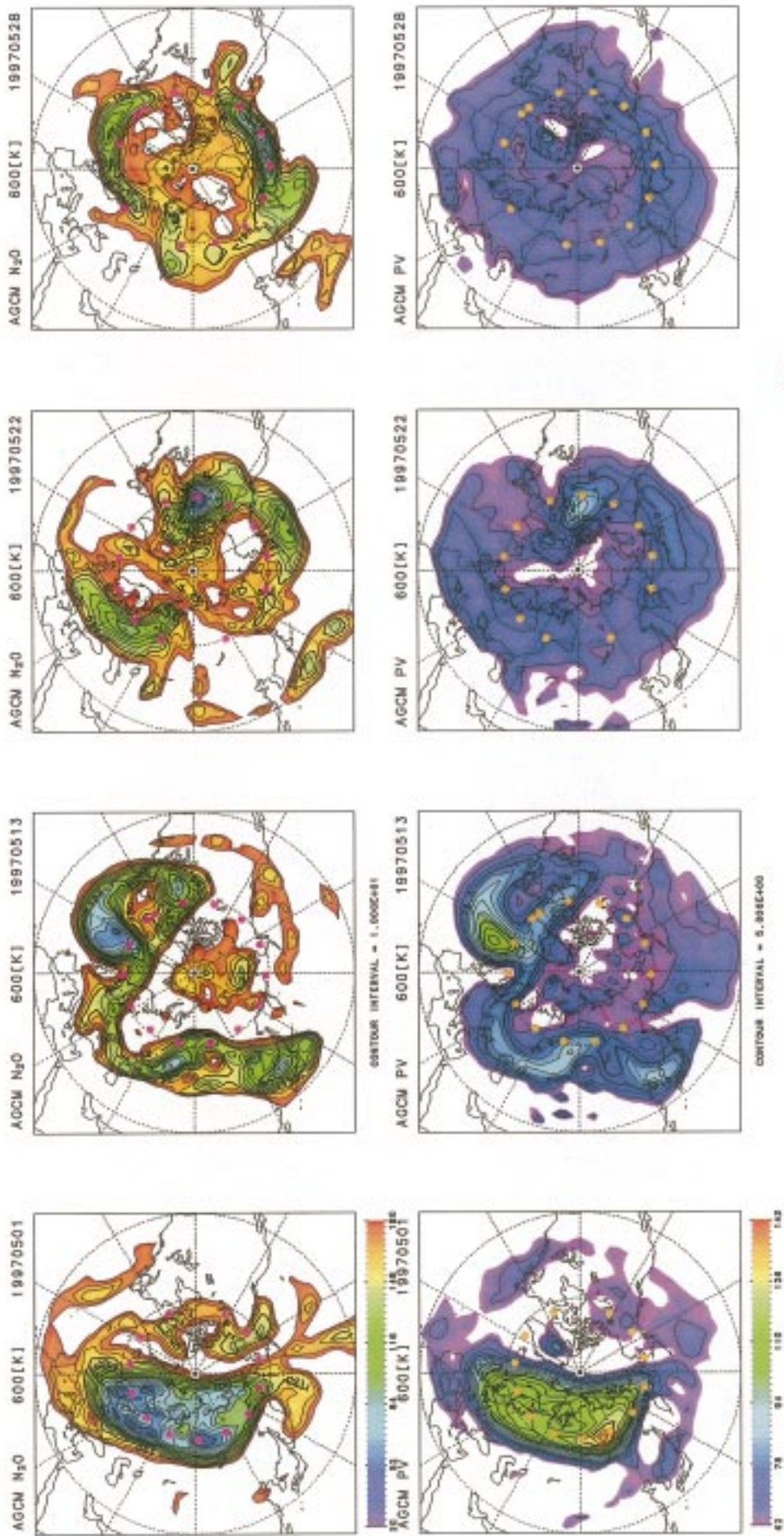


図36 600 K等温位面上の N_2O 体積混合比（上段）と渦位（下段）の北極周辺における分布

ナッジングCTMによる計算結果。上が $0^\circ E$ ，左が $90^\circ E$ の平射図法で表す。左から右へ，1997年5月1日，13日，22日，28日の分布。 $30^\circ N$ と $60^\circ N$ の緯度線が点線の下で示されている。経度線は 30° ごとに点線で描かれている。極渦内外の空気のコントラストを明確に示すため， N_2O の体積混合比が 180 ppbv を越える領域と渦位の値が $62 \times 10^6 \text{ K m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 以下の領域は白く描かれている。図中のピンク（上段）とオレンジ（下段）の丸い点は，ILASの観測点を示す。

(6) まとめ

水平分解能T42の化学輸送モデルを開発し、このモデルによって、ILASで観測された1997年北極渦崩壊後の低濃度 N_2O 空気塊の挙動を計算した。モデル計算によって、この空気塊の空間スケールと寿命がわかり、それから、極渦崩壊後の下部成層圏の渦拡散係数が見積もられた。このような極渦起源の空気塊の混合は、高緯度を中心に空間的に密な微量成分の測定を行ったILASと、高分解能のCTMを併せて用いることで明らかとなった。

2.3.4 中緯度中間圏オゾンの変動観測

つくばミリ波分光計で1996年10月から2000年3月の期間に測定された夜間ミリ波スペクトルデータの解析を行い、高度38 ~ 76 kmのオゾン濃度鉛直分布の時間変動を求めた(図37)。中間圏オゾンの頻度の高い長期連続観測はこれまでに例が無く、その時間変動についての知見

は十分ではなかった。解析の結果、観測された高度範囲では高度によって3つに分けられるオゾンの季節変動を明瞭に検出した。高度38 ~ 56 kmまでの上部成層圏・下部中間圏では年周期のオゾン変動が顕著である。観測されたオゾン濃度は12月に最大、6月に最小となり、これらは他の観測結果と良く一致している。

中間圏の高度56 ~ 68 kmおよび68 ~ 76 kmでは、それぞれで互いに位相の反転した半年周期変動が観測された。このうち68 km以下のオゾン半年周期変動については、世界で初めて明瞭に示したものである。68 km以下の中部中間圏のオゾン濃度は1月および7月に最大となり、ほぼ単一のサインカーブで表される。振幅は高度60 kmにおいては年平均値に対して13%であり、これは高度76 kmでの値(28%)の半分程度と小さい。ここでのオゾン半年周期変動の原因については、中間圏のオゾン濃度が基本的には光化学反応によって決まることから、

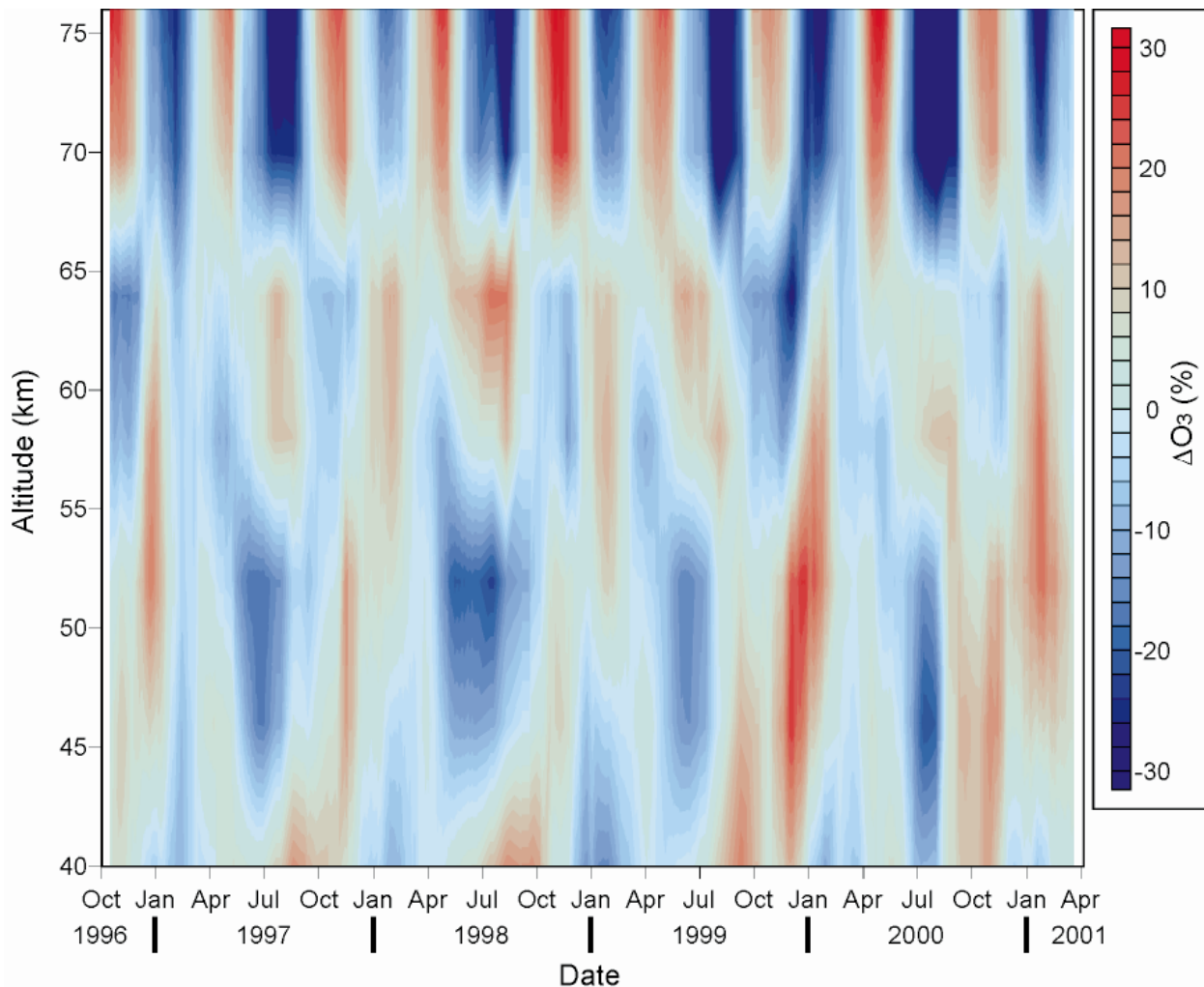


図37 1996年から2001年にかけてミリ波分光計によって観測されたつくば上空の中間圏オゾンの時間変動値は年平均値に対する変化(偏差)で示されている。

気温変動の影響が考えられる。これまでに、気温以外のプロセスが無視できる程度の短時間の観測から、オゾンと気温に明瞭な逆相関があることが見いだされている。さらに、中間圏の気温については、高度60 kmでは6 K程度の振幅の半年周期変動が知られており、その位相は我々の観測したオゾン半年周期変動のそれとほぼ逆転している。そこで、高度60 kmにおけるオゾン濃度と気温との逆相関の関係式を用いると、6 Kの気温変動によってオゾン濃度は年平均値に対して12%変動することが分かった。これは観測された値(13%)にほぼ一致する。このことから、中間圏オゾンの半年周期変動は気温変動の影響を強く受けている可能性が高いと考えられる。一方で、気温とオゾンの半年変動の位相は完全には一致していないことから、その他のプロセスがオゾン半年周期変動に影響を及ぼしている可能性が考えられる。なかでも水蒸気は、中間圏における主要なオゾン破壊過程に関連するHO_xの生成源であり、かつ中間圏において寿命が長いこと輸送による季節変動を示すことが知られている。今後これらの化学・輸送プロセスを含めたモデル研究と観測されたオゾンの季節変動との比較を行い、変動メカニズムについての定量的な理解を深めたい。

高度68~76 kmの上部中間圏では、68 km以下と比べて振幅が大きく位相が逆転したオゾン半年周期変動が見られる。この変動は半年周期の単一サインカーブで良く表すことができる。以前のSME衛星によるオゾン観測データによると、この高度領域のオゾン季節変動は年変動と半年変動の組み合わせた形で表されており、我々の結果とは違いがある。この違いの考え得る原因の一つとして、SMEの観測がオゾンではなくオゾンの光解離により生成した励起状態の酸素分子を測定していることによる影響が考えられる。ミリ波観測はオゾンそのものからの放射を測定しており、未知の化学反応もしくは放射プロセスによる季節変動が入る余地は少ないと考えられる。一方、SMEによる観測は間接的であり、化学反応プロセス内でオゾン以外の季節変動の影響を受ける可能性がある。この食い違いについては、関連する他の分子の観測データとあわせた研究が今後必要である。また、この高度領域でのオゾン半年周期変動のメカニズムについては、これまでにモデルによる研究から重力波砕波の活動性の季節変動との関連が示唆されているが、現時点ではこのモデル計算では観測されたオゾンの時間変動を定性的に説明できない。このことは、中間圏上部におけるオゾン変動

に関する化学・輸送・波動プロセスについての理解が十分でないことを示しており、今後、観測データの充実とモデルの面からの進展が望まれる。

2.4 オゾン層のモデリング

2.2節と2.3節ではオゾン層の観測結果とその定量的解釈を述べてきた。この節では、東京大学・気候システム研究センターと国立環境研究所が共同で開発してきたCCSR/NIES大気大循環モデルを必要に応じて発展させ、それらを利用した結果を報告する。2.4.1項ではこれまでに開発・改良を重ねてきたモデルの概要を説明し、2.4.2項ではその応用として亜熱帯域のオゾンの観測による変動を再現するべく行われた数値実験の結果を報告する(同様に前2.3.3項では中高緯度の亜酸化窒素(N₂O)の観測による変動をモデルで再現した)。特に中緯度のオゾン変動を考える上では、中緯度に隣接する高緯度域や亜熱帯域からの輸送過程をモデルによって再現することは重要である。このように観測結果とモデル計算結果の比較を通じてモデル内の各素過程を高度化し、それらを化学-気候結合モデルにフィードバックすることは、将来オゾン層の長期予測精度を高めるためにも重要である。現状の化学気候結合モデルによるオゾン層の将来予測結果を2.4.3項で紹介する。

2.4.1 モデルの概要

(1) はじめに

大気微量成分濃度の3次元分布や変動の化学的および力学的要因を調べるため、化学-輸送モデルの開発が行われ、それを用いてオゾン層破壊などに関する研究が行われてきた。これらは、気温と風速の客観解析データを用いて化学物質の生成・消滅と輸送を計算する、いわゆるoff-line計算モデルである。このようなoff-lineとよばれるモデルにおいてさえも、例えばオゾン量変化の大気放射過程へのフィードバックは、現在の大気を示す標準的なオゾン分布に対する補正という形で取り入れられている。しかしながら、将来大気におけるオゾン層の変動などというような、必ずしも現在の大気と微量成分の分布が同じとは限らないような状況における問題を考察するためには、微量成分の放射過程へのフィードバックを陽に考慮した3次元モデル、その結果として、微量成分分布と放射過程と力学過程間の結合過程をフルに考慮したモデルを構築する必要がある。このようなフルカップ

ルモデルを用いた将来オゾンの変動についての研究は、これまで化学過程や力学過程を簡略化したモデルによって行われてきた (Austin¹⁶⁾; Shindell *et al.*¹⁷⁾。このような実状を鑑みて、本プロジェクトにおいても、これまでに世界で開発されたものに比べてかなり詳しいフルカップル大循環化学モデルによる将来オゾン層の変動の研究が行われている。しかしながら、現時点ではその中に、液滴PSCによる不均一反応過程や臭素系物質によるオゾン破壊効果は考慮されていない。これらの影響は、ごく最近になってその大気化学過程に及ぼす重要性が指摘されはじめている。これらの効果を考慮に入れることによって、これまでのフルカップルモデルを用いた研究によって明らかになりつつあるオゾン層の将来変動予測が、どの程度の修正を受けるものか興味深いところである。また、フルカップルモデルでは、気温が実際の値に比べて低く計算される領域があり、特にモデルの熱帯上部対流圏や極夜域の低温バイアスは、成層圏における水蒸気の分布やオゾン破壊率の計算に悪影響を及ぼすという重要な問題が残されている。

本研究では、将来大気中におけるオゾン層の変化を計算できるフルカップル大循環化学モデルの開発と、それを念頭においた、気温と風の客観解析データを利用しながら化学微量成分分布の計算を行う化学輸送モデルの開発を行った。化学輸送モデルはCCSR/NIES AGCMに光化学過程を導入し、さらに、気温と風速の客観解析データを同化して計算するようにしたもので、このモデルによって、現実的な気温と風の下で、化学微量成分の光化学生成/消滅過程と輸送過程によって生じる毎日の微量成分の時間空間分布を再現することができるようになる。まずそれが第一の目標である。その後この気温と風速データの同化を行わないようにモデルを変更すれば、この化学輸送モデルの観測事実の再現性によって信頼性がある程度保証されたモデルのフルカップル大循環化学モデル版へと比較的容易に移行でき、将来予測に関する信頼性が増すであろう。

(2) CCSR/NIES大循環化学モデルとナッジング化学輸送モデルの開発

CCSR/NIES大循環化学モデルは、水平分解能T21 (5.6°×5.6°)、地表から約70kmの高度までを考慮した鉛直30層CCSR/NIES AGCMに、 O_x ($O^D + O + O_3$), HO_x ($H + OH + HO_2$), NO_x ($N + NO + NO_2 + NO_3$), Cl_x ($Cl + ClO +$

$HOCl$), CH_2O , CH_3O_2 , CH_3OOH , H_2O_2 , HNO_3 , HNO_4 , N_2O_5 , $ClONO_2$, HCl , H_2O と、地表起源のソースガス、 N_2O , CH_4 , $CFCl_3$, CF_2Cl_2 , CH_3Cl , CCl_4 を入れたものである。これらの化学成分の計算にはファミリー法を用いた。このモデルには不均一反応は導入されていないが、大循環モデルの中で計算される気温と太陽放射強度を使って、大気微量成分の化学反応定数や光解離係数を計算するところが特徴である。また、計算されたオゾン分布によって大気加熱率が計算され、それに基づいてこのモデルの成層圏の気温や風速も計算される。つまり、この化学大循環モデルの中では、気温や風速などの気象場と化学微量成分分布との、放射過程、輸送過程、光化学反応過程を通じた相互作用が陽に実現されていることになる。このモデルによって計算された成層圏の気温、風速、 O_3 , N_2O , CH_4 , HNO_3 の分布が、観測された月平均の気候値とよく合致することが確かめられ、また、 NO , NO_2 , N_2O_5 などの短寿命物質の日変動もよく再現されていることが確認された。

本プロジェクトでは、モデルにNAT (Nitric Acid Trihydrate: 硝酸三水和物) と氷粒子の生成/消滅およびその表面上での不均一反応過程を導入し、極域におけるオゾン破壊を計算できるようにした。不均一反応の導入に伴い、塩素系の構成を変更し、 Cl_2O_2 , $ClOO$, $ClNO_2$, Cl_2 を追加した。さらに、地表からのソースガスとして、 $CFC113$, $HCFC22$, CH_3CCl_3 を追加した。また、下部成層圏で起こるオゾンホールをシミュレートするため、この高度域の鉛直分解能を上げ、鉛直34層モデルとした。

これらの大循環化学モデルの開発とは別に、化学輸送モデルの開発も行った。化学輸送モデルにおいては、モデルの大気微量成分分布の計算結果が日々の微量成分観測結果と3次元的に合致することが要求されるので、より高い空間分解能、より詳しい光化学反応を導入することが望ましい。そこで、水平分解能がT21 (5.6°×5.6°)のモデルの他に、高空間分解能のT42 (2.8°×2.8°)モデルを開発した。この高空間分解能モデルによって、極渦周辺の複雑な物質輸送のシミュレーションが可能になった。また、特に、臭素は塩素に比べて大気中の濃度は小さいが、オゾンの多い下部成層圏においても活性種の形で存在する割合が大きい。その結果、 ClO_x や HO_x との相互の反応によって新たなオゾン破壊サイクルを形成するため、臭素系の反応の影響は相乗的なものとなる可能性がある。そこで、1次元光化学-放射結合モデル系で開

発した臭素系物質を含む気相光化学反応スキーム、およびケンブリッジ大学において開発された不均一反応スキーム (Sessler *et al.*¹⁸⁾) を導入した。不均一反応は全部で13種類考慮されているが、そのうち、 $N_2O + H_2O$, $ClONO_2 + H_2O$, $ClONO_2 + HCl$, $HOCl + HCl$, $BrONO_2 + H_2O$, $HOBr + HCl$ が重要な反応である。不均一反応の場となるPSCs (Polar Stratospheric Clouds: 極成層圏雲) は、STS (Supercooled Ternary Solution: $H_2SO_4/HNO_3/H_2O$ からなる液滴のPSCs), NAT, および氷を考えた。

また、化学輸送モデルでは、 N_2O やフロン、ハロンなどの200nm以下の波長でのSchumann-Runge帯による光解離の効果を考慮に入れた。Schumann-Runge帯における放射の計算は、Minschwaner *et al.*¹⁹⁾のパラメタリゼーションを用いた。Schumann-Runge帯による光解離の導入により、紫外域での光解離効果が強化され、対流圏上部から成層圏にかけて、これらの気体の濃度が上層へ向かって急激に減少し始める高度がより低くなり、鉛直分布が観測値とよく合うようになった。

大循環化学モデルを、実際の気象データを用いて走らせる化学輸送モデルにするために、気象データの同化を行うモジュールを大循環化学モデルに結合した。気象データの同化はナッジングという簡便法を用いて行った。ナッジングは、モデルの u (東西風速), v (南北風速), T (気温) を気象データ (NCEP/NCAR再解析データやECMWF再解析データ) のこれらの値に緩和時間1日で近づけることによって行った。すなわち、

$$dx/dt = (x - x_{obs})/t$$

ここで、 $x = u, v, T$, $t = 1$ 日, x はモデルの値, x_{obs} は、再解析データの値である。計算では、ナッジングのタイムスケールを1日とおいたが、このタイムスケールを用いると、オゾン全量をはじめ、日々の微量成分分布がよく再現され、かつ、気温や風速場のもともとのデータ値との違いが小さい状態がモデル内で実現された。また、ナッジングは、6時間ごとの再解析データをモデルのタイムステップに時間に関して線形内挿し、その内挿された値について行った。

2.4.2 亜熱帯域のオゾン変動

(1) 背景

中緯度のオゾン変動は、中緯度での光化学反応によるオゾン破壊の他に、極地でオゾン破壊を生じた空気の中緯度への輸送および混合や、熱帯域、亜熱帯域からの空

気の混合の影響も受ける。Gabriel and Schmitz²⁰⁾やKinnersley and Tung²¹⁾は、北半球中緯度の経度平均したオゾン全量の年々変動は、QBO (Quasi Biannual Oscillation: 赤道大気準2年振動) による循環や、下部成層圏における大気波動によって引き起こされる混合や水平方向の移流の影響を受けることを示した。熱帯と中緯度の間には、オゾン濃度の急勾配があり、中緯度のオゾン変動が熱帯域空気との混合による影響を受けることは容易に想像できる。ここでは、中緯度のオゾントレンドに影響を及ぼす亜熱帯域のオゾン変動について述べる。

熱帯域のオゾン変動については季節変動成分が卓越しており、オゾン全量の最大は9月に起こり、最小は1月に起こることが分かっている。QBO成分、ENSO成分も年々変動に及ぼす影響が大きいことが分かっている。これに対して、熱帯と中緯度帯の境目に位置する亜熱帯域のオゾン変動に関する研究は少ない。亜熱帯域のオゾン変動に関しては、熱帯のオゾン変動にほぼ連動するであろうとも思われるが、一方で、この領域はオゾン全量の緯度勾配が急な領域であり、ほんの少しのオゾン全量の空間パターンの移動が、ある地点の大きなオゾン変動になり得る。したがって、大気の大循環や波動などのちょっとした変化の影響を受けやすい領域と言える。

(2) 化学輸送モデルによる1996年と1997年のオゾン分布の計算

亜熱帯域のオゾンがどのようなメカニズムで年々変動するのかを調べるため、開発した水平分解能T21 ($5.6^\circ \times 5.6^\circ$) のナッジング化学輸送モデルとECMWFデータを用いて、1996年と1997年についてのオゾンのグローバル分布の計算を行った。図38は、1996年12月から1997年2月までの3ヵ月平均のEP-TOMSのオゾン全量分布 (左) と同じ期間の化学輸送モデルによる計算値 (右) である。同様に、図39は1997年12月から1998年2月までの3ヵ月平均のEP-TOMSのオゾン全量分布と化学輸送モデルの計算値である。どちらの年も化学輸送モデルは、EP-TOMSの観測結果を良く再現していることが分かる。すなわち、北半球の高緯度のオゾン全量最大値とその場所、経度方向の等値線のうねり具合、緯度勾配など、特に、北半球でよい一致を示している。亜熱帯西太平洋域のオゾン全量極小域が、1996年は台湾から日本の南部にかけて位置しているのに対して、1997年は赤道東太平洋に移

動していることも、化学輸送モデルの計算で良く再現されている。この2年間の亜熱帯オゾン極小域の位置の違いが、亜熱帯西太平洋域の冬季のオゾン全量の、この2年間の変動を引き起こしていることが分かる。また、このようなオゾン極小位置の年々変動は、QBOやENSOの影響を受けているであろうと推測できる。

1996年と1997年の2年間ではあるが、亜熱帯域のオゾンの年々変動が化学輸送モデルで再現されたので、今後は、90年代初めから現在までのモデルの長期計算を行ってその期間のオゾン分布を計算し、観測結果と比較し、同時にオゾン輸送量やその時の力学場などを詳しく解析することによって、亜熱帯域のオゾンの年々変動とその中緯度への影響を明らかにしていく。

2.4.3 化学気候モデルとCO₂漸増実験

まずCCSR/NIES AGCMを用いた成層圏オゾン濃度分布の再現実験の例について述べる。図40(a)に1990～

1994年の5年間に人工衛星(Nimbus 7およびMeteor 3)に搭載されたTOMSによって観測されたオゾン全量の平均値を経度平均することで得られたオゾン全量の時間-緯度断面を示す。図40(b)には1990年代前半の化学物質濃度を境界条件としてCCSR/NIES AGCMを用いてアンサンブル実験を行った結果の平均値を、実測データと比較する形で時間-緯度断面として示す。両図の比較から分かる様に、CCSR/NIES AGCMの数値実験結果はほぼ全ての緯度帯で、経度平均した実測のオゾン全量の季節進行をほぼ再現していることが分かる。北半球高緯度では4月ごろに420DU(DUはドブソン単位。単位面積当たりの垂直空間柱にあるオゾンの総量を表す単位)程度の極大値をとった後、9月から10月に向かって減少し280DU程度の極小値をとる、と言う実測の季節変動の振る舞いをモデルは良く再現している。また緯度方向に見ても、年間を通じて北緯60度付近がオゾン全量の大きな緯度帯となっていることをTOMSの観測データは物語っ

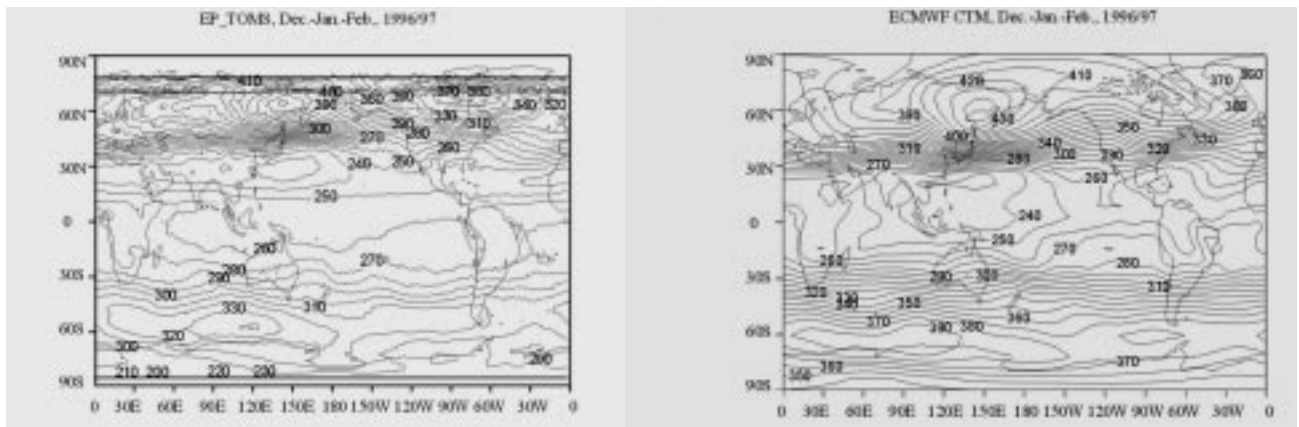


図38 EP-TOMSによるオゾン全量の観測値の1996年12月～1997年2月の平均値(左)と化学輸送モデルによる計算結果(右) 縦軸は緯度、横軸は経度を表す。図中の数値の単位はDU(ドブソンユニット)。

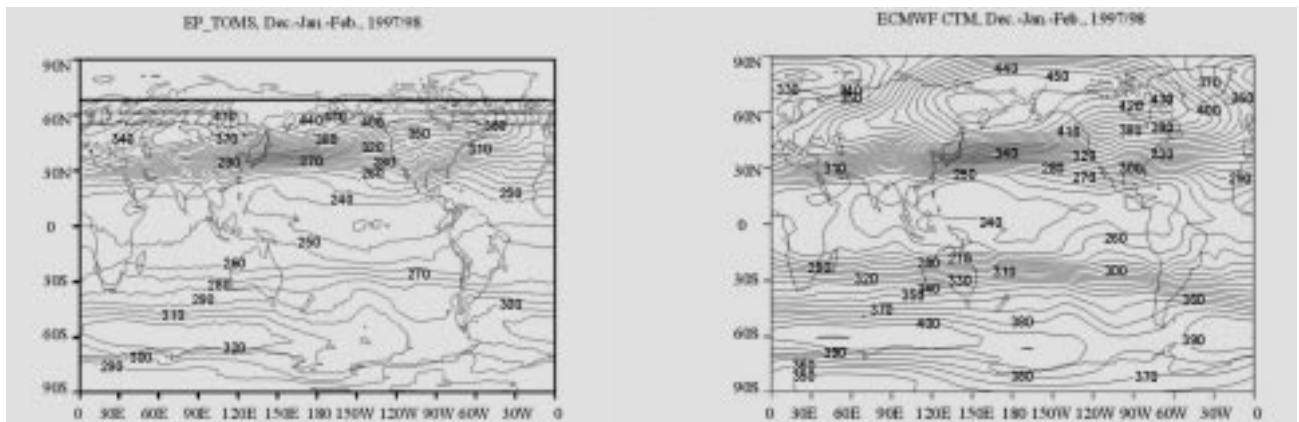


図39 EP-TOMSによるオゾン全量の観測値の1997年12月～1998年2月の平均値(左)と化学輸送モデルによる計算結果(右)

ているが、モデル計算結果もその特徴をよく再現している。北緯30度から南緯30度の熱帯域に関しても、TOMSデータに見られた冬半球でオゾン全量が極小となる極小値の南北移動の様子がモデル計算結果においても同じ様に認められる。南半球の高緯度に関して、オゾン全量の最低値が140DU程度となる様な大規模なオゾン減少をCCSR/NIES AGCMの数値実験結果は示している。この値はTOMSによる観測で示されている最低値（150DU）と良く対応している。ただ、実測のオゾン全量の最低値が9月下旬から10月上旬に観測されているのに対し、モデル計算ではその時期が1ヵ月ほど遅れた10月下旬から11月上旬となっていることが分かる。また、南極域での大規模なオゾン破壊の影響はTOMSの観測結果では12月上旬には認められなくなっているが、モデル計算結果では翌年の1月中旬まで続いており、モデル計算の結果は回復に要する期間がやや長い傾向にある。これらの問題は、

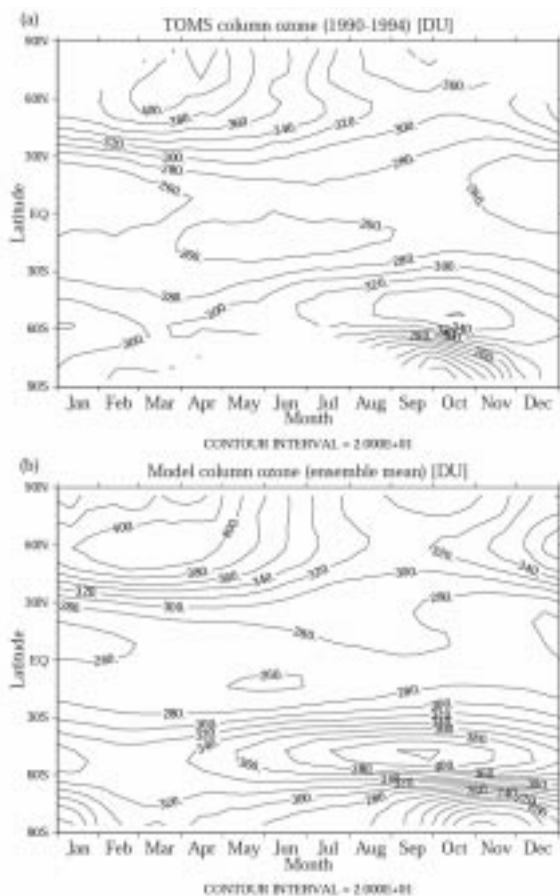


図40 経度平均オゾン全量の時間 - 緯度断面
 (a) TOMSによる5年間(1990年~1994年)の平均値。TOMSの極夜域は空白になっている。
 (b) CCSR/NIES AGCMを用いて行ったアンサンブル実験の平均値。数値計算に用いた化学物質の境界条件としては1990年代初期の値を与えている。図中のコンター間隔は20DU。

主に次の二つの問題に分けて考えることができる。つまり、(1) モデル大気中の南極域でオゾン破壊の可能な期間が実際に比べて持続し過ぎること、(2) 南極オゾンホール形成初期(8月、9月)におけるオゾン破壊率が実際に比べて小さいこと、である。(1)に関しては、多くの中層大気モデルに共通な問題である、持続し過ぎる極渦の影響を受けており(Pawson *et al.*²³)、水平高分解能化や非地形性重力波抵抗のパラメタリゼーションを導入する等の解決策が提案されている(McLandsry²³)。現在CCSR/NIES AGCMにも非地形性重力波抵抗パラメタリゼーションの導入を進めつつある。(2)に関しては、モデル中の光解離率の計算において大気の球面効果を考慮していないために、特に9月の南極域などの薄暮時において計算される光解離率が過小評価されてしまうことが原因の一つと考えられる。球面効果を考慮した光解離率の計算をテストしたところ、確かに9月のオゾン破壊率は大きくなり、南極オゾンホールの開始時期は早まる、という結果を得た。(1)の解決と合わせて、よりもっともらしい南極オゾンホールの再現を目指していきたい。南半球中緯度でのオゾン全量に関して、TOMSデータに現れている夏季~秋季(3月ごろ)にかけて最小値をとり春季(10月上旬)に最大値をとる、と言った季節変動を数値実験で再現している。しかしながら、オゾン全量の絶対値、特に春季の最大値、をモデルが過大評価してしまう傾向にあることが分かった。南半球に見られる観測値とモデル実験値との相違は、今後のモデルの改良における検討課題である。

数値実験に用いているCCSR/NIES AGCMは先に述べた様に、成層圏での化学過程を陽に含み、化学・放射・力学過程がお互いに結合しているのが特徴である(これまでに行われているCO₂増加数値実験では、化学過程が簡略化されすぎている、オゾンの輸送が気温場の変動と結合されていない、など色々な問題点が含まれている場合もあった(例えば、Shindell *et al.*²⁴)。CO₂増加の影響としては、オゾンの減少量の絶対値のみならず、年々変動の変動幅への影響やSST(Sea Surface Temperature: 海面水温)との関連などを調べる必要がある。そのため、現在CCSR/NIES AGCMを用いて、CO₂濃度・SST・ハロゲン化合物、N₂O、CH₄の濃度などの条件を変えたコントロール実験を行っている。

ここではCCSR/NIES AGCMを用いて行った南極オゾンホールの推移に関する数値実験の結果について述べる。

図41 (a) は、CCSR/NIES AGCMで大規模なオゾン破壊が現れる10月20日～11月10日の期間における75°S以南のオゾン全量の平均値の時系列を示した図である。図中、赤の細い実線はハロゲン化合物、 N_2O 、 CH_4 の濃度変化に加え、 CO_2 濃度の増加やSSTの変化も含めてモデル計算を行った結果である。一方、青の細い実線は、比較のため CO_2 濃度およびSSTを固定した条件下でハロゲン化合物、 N_2O 、 CH_4 の濃度変化のみを考慮してモデル計算を行った結果である。また赤および青の太い実線はそれ

ぞれ5年の移動平均を取ったものである。赤の実線で示した南極オゾンホールが起こる典型的な期間でのオゾン全量の計算結果は、1986年から2000年にかけて、年々の変動はあるものの全体としては減少傾向を示しており、この期間の実測のオゾン全量の推移とほぼ対応するものとなっている。また2000年以降のオゾン全量の推移に関しては、モデル計算されたオゾン全量はそれまでの減少傾向が止まり、2000年から2015年頃まではむしろ一定状況で推移しており、さらにその後はほぼ単調な回復傾向になることを示している。またオゾンホールの目安である220DU以上にまで回復する時期は、年々変動を別にすれば、2030年代半ばと予想される。一方、青の実線で示した CO_2 の増加やSSTの変化を考慮せずに行った数値実験でのオゾン全量の変化の様子は、 CO_2 やSSTの変化を考慮した赤線で示した結果と基本的にはほぼ同じ振る舞いをしている。このことは、図41 (b) に示した75°S以南で平均した60hPaの気温の時系列からも分かる様に、 CO_2 の増加やSSTの変化を考慮に入れた数値実験（赤線）と考慮に入れない場合（青線）との間で気温変動傾向に関してほとんど違いが認められないことに対応している。すなわち、オゾンホール内でのオゾン分解に重要な役割を果たすPSCの生成量やPSC上での不均一反応の確率は気温に依存するが、その気温が CO_2 やSSTの変化に鈍感な状況にある。その結果、オゾン全量はハロゲン濃度に最も強く影響され、 CO_2 やSSTの変化にほとんど依存しない結果となったものと推定できる。

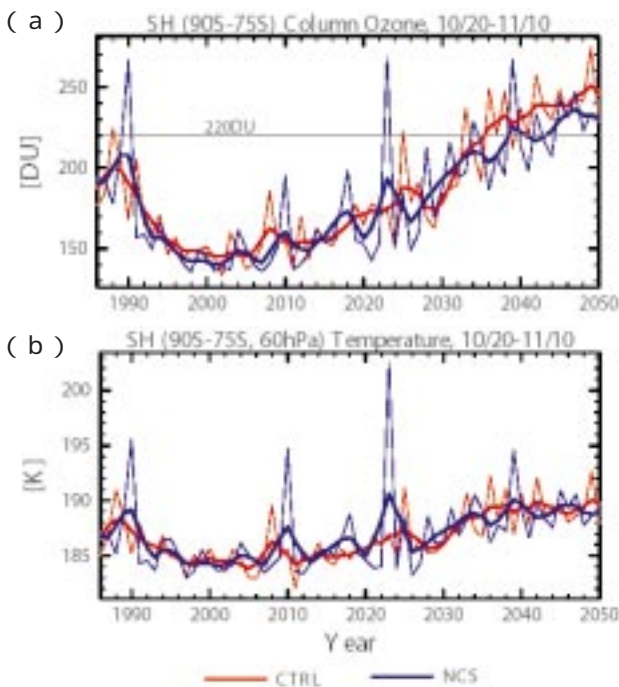


図41 南緯75度以南の10月20日～11月10日で平均した (a) オゾン全量および (b) 60hPaでの気温の経年変化。細線は各年の値、太線は5年の移動平均を取ったもの。赤線はハロゲン濃度、 CO_2 濃度、海面水温の全てを変化させたもの。青線はハロゲン濃度の変化のみ考慮した場合の数値実験結果。

図42は、図41 (a) に示した南極域におけるオゾン全量経年変化の特徴的な年代における、オゾン全量の水平面図である。高緯度でのオゾン全量の非常に小さい領域が2000～2004年にかけて拡大し、その後オゾン全量最

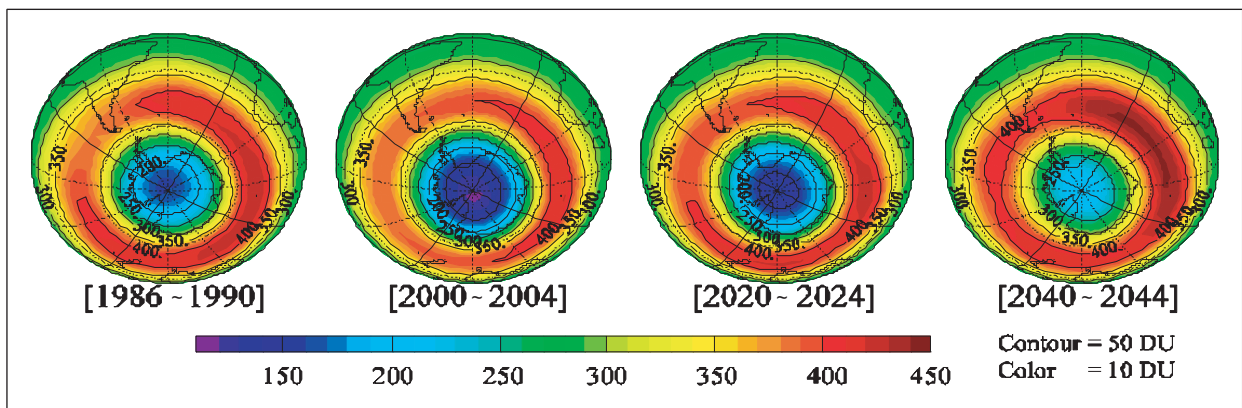


図42 GSF実験で計算された、10月20日～11月10日で平均した南半球オゾン全量水平面図。左から1986～1990年、2000～2004年、2020～2024年、2040～2044年の各5年間の平均。

小値の回復に合わせて縮小してゆく様子分かる。2040～2044年の平均図では220DUを下回る領域は無くなり、この時期には南極上空のオゾンホールが消滅しているという計算結果になった。

実測からは北極域の春季においても、成層圏オゾンに減少傾向のあることが報告されている(WMO²⁵⁾)。今回の計算でもCO₂濃度の増加やSSTの変化も含めた計算の方では、北極成層圏オゾンの減少傾向が春季(3月)に若干見られたが、統計的な有意性は低かった。

今回の数値実験の結果についてオゾンホールの回復の観点から考えれば、成層圏のハロゲン濃度の減少をもたらすこれまでのオゾン層保護対策は有効に働く可能性の高いことを示唆している。しかしながらオゾンの長期変動予測について統計的な優位性をもっと詳しく議論するためには、今後さらに数メンバーのアンサンブル長期実験を行うことが必要であろう。また、後で述べる成層圏水蒸気の変動など、今回の長期数値実験では考慮に入れていない要因の影響を検討してみることも必要であろう。

引用文献

- 1) von der Gathen, P., *et al.* (1995) : Observational evidence for chemical ozone depletion over the Arctic in the winter 1991-92. *Nature*, **375**, 131-134.
- 2) Rex, M., *et al.* (1999) : Chemical ozone loss in the arctic winter 1994/95 as determined by the Match technique, *J. Atmos. Chem.*, **32**, 35-59.
- 3) Sasano, Y., *et al.* (2000) : ILAS observations of chemical ozone loss in the Arctic vortex during early spring 1997, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 213-216.
- 4) Terao, Y., *et al.* (2002) : Stratospheric ozone loss in the 1996/1997 Arctic winter : Evaluation based on multiple trajectory analysis for double-sounded air parcels by ILAS, *J. Geophys. Res.*, **10**.1029/2001JD000615.
- 5) Sugita, T., *et al.* (2002) : Int. Symp. Stratospheric Variations and Climate.
- 6) Knudsen, B. M., *et al.* (1998) : Ozone depletion in and below the Arctic vortex for 1997, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 627-630.
- 7) Ehhalt, D. G., E. P. Roth, and U. Schmidt (1983) : On the temporal variance of stratospheric gas concentrations, *J. Atmos. Chem.*, **1**, 27-51.
- 8) Hess, P. G., and J. R. Holton (1985) : The origin of temporal variance in long-lived trace constituents in the summer stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, **42**, 1455-1463.
- 9) Hess, P. G. (1990) : Variance in trace constituents following the final stratospheric warming, *J. Geophys. Res.*, **95**, 13765-13779.
- 10) Hess, P. G. (1991) : Mixing processes following the final stratospheric warming, *J. Atmos. Sci.*, **48**, 1625-1641.
- 11) Minschwaner, K., R. J. Salawitch, and M. B. McElroy (1993) : *J. Geophys. Res.*, **98**, 10543-10561.
- 12) Akiyoshi, H., S. Sugata, T. Sugita, H. Nakajima, H. Hayashi, J. Kurokawa, and M. Takahashi (2002) : Low-N₂O air masses after the breakdown of the Arctic polar vortex in 1997 simulated by the CCSR/NIES nudging CTM, *J. Meteor. Soc. Japan*, **80**, 451-463.
- 13) Newman, P. A., M. R. Schoeberl, and R. A. Plumb (1986) : Horizontal mixing coefficients for two-dimensional chemical models calculated from National Meteorological Center Data, *J. Geophys. Res.*, **91**, 7919-7924.
- 14) Plumb, R. A. and J. D. Mahlman (1987) : The zonally averaged transport characteristics of the GFDL General Circulation/Transport Model, *J. Atmos. Sci.*, **44**, 298-326.
- 15) Haynes, P. and E. Shuckburgh (2000) : Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport 1. Stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **105**, 22777-22794.
- 16) Ausin, J., N. Burchart, and K. P. Shine (1992) : Possibility of an Arctic ozone hole in a doubled-CO₂ climate, *Nature*, **360**, 221-225.
- 17) Shindell, D. T., D. Rind, and P. Lonergan (1998) : Increased polar stratospheric ozone losses and delayed eventual recovery owing to increasing greenhouse-gas concentrations, *Nature*, **392**, 589-592.
- 18) Sessler, J., P. Good, A. R. MacKenzie, and J. A. Pyle (1996) : What role do type I polar stratospheric cloud and aerosol parameterizations play in modelled lower stratospheric chlorine activation and ozone loss?, *J. Geophys. Res.*, **101**, 28817-28835.
- 19) Minschwaner, K., R. J. Salawitch, and M. B. McElroy (1993) : Absorption of solar radiation by O₂ : Implications for O₃ and lifetimes of N₂O, CFC_{1,2}, and

- CF2Cl₂, J. Geophys. Res., **98**, 10543-10561.
- 20) Gabriel, A., and G. Schmitz (2002) : Dynamical components of northern hemispheric zonal mean total ozone changes during 1979-93, Geophys. Res. Lett., **29**, 10.1029/2002GL015358.
- 21) Kinnersley, J. S., and K.-K. Tung (1998) : Modeling the global interannual variability of ozone due to the equatorial QBO and to extratropical planetary wave variability, J. Atmos. Sci., **55**, 1417-1428.
- 22) Powson, S., K. Kodera, K. Hamilton, *et al.* (2000) : The GCM-reality intercomparison project for SPARC (GRIPS) : Scientific issues and initial results, Bull. Amer. Met. Soc., **81**, 781-796.
- 23) McLandress, C. (1998) : On the importance of gravity waves in the middle atmosphere and their parameterization in general circulation models, J. Atmos. Sol.-Terr. Phys., **60**, 1357-1383
- 24) Shindell, D. T., D. Rind, and P. Lonergan (1998) : Increased polar stratospheric ozone losses and delayed eventual recovery owing to increasing greenhouse-gas concentrations, Nature, **392**, 589-592.
- 25) WMO (World Meteorological Organization) (1999) : Scientific Assessment of Ozone Depletion : 1998, Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 44, Geneva, Switzerland.

[資 料]

研究の組織と研究課題の構成

1 研究の組織

[A 研究担当者]

成層圏オゾン層変動研究プロジェクトグループ		
プロジェクトグループリーダー	笹野泰弘	
サブリーダー	今村隆史	
衛星観測研究チーム		
総合研究官	中島英彰	
	杉田考史	
	神沢 博 (併)	
	横田達也 (併)	
NIESポスドクフェロー	林 寛生	(平成13年度)
	入江仁士	(平成14年度)
	江尻 省	(平成14年度)
科学技術特別研究員	佐藤佳宏	(平成13～14年度)
EFフェロー	Emmanuel Riviere	(平成13年度)
JSPSフェロー	Farahnaz Khosrawi	(平成14年度)
地上リモートセンシング研究チーム	中根英昭 (併)	
NIESポスドクフェロー	長濱智生	
オゾン層モデリング研究チーム	今村隆史 (併)	
	秋吉英治	
JSPSフェロー	Zhou Libo	(平成14年度)
大気圏環境研究領域		
上席研究官	中根英昭	
大気物理研究室	神沢 博	
NIESポスドクフェロー	永島達也	(平成13～14年度)

[B 客員研究官]

小林博和 ((財)電力中央研究所狛江研究所) (平成14年度)

2 研究課題と担当者 (*客員研究官)

特に明確に研究課題を区分していないので、研究テーマと担当者を明記する。

(1) オゾン層の監視

中島英彰・杉田考史・神沢 博・横田達也・林 寛生・入江仁士・江尻 省・佐藤佳宏・Emmanuel Riviere・Farahnaz Khosrawi・小林博和*・中根英昭・長濱智生

(2) オゾン層破壊の機構解明

中島英彰・杉田考史・神沢 博・横田達也・林 寛生・入江仁士・江尻 省・佐藤佳宏・Emmanuel Riviere・Farahnaz Khosrawi・小林博和*・中根英昭・長濱智生・今村隆史・秋吉英治

(3) オゾン層のモデリング

中島英彰・杉田考史・神沢 博・今村隆史・秋吉英治・Zhou Libo・永島達也

研究成果発表一覧

1 誌上发表

発表者・題目・掲載誌・巻(号)・頁・刊年

Irie H., Koike M., Kondo Y., Bodeker G. E., Danilin M. Y., Sasano Y. : Redistribution of nitric acid in the Arctic lower stratosphere during the winter of 1996-1997, *J. Geophys. Res.*, **106** : 23139-23150, 2001

Schulz A., Rex M., Harris N. R. P., Braathen G. O., Reimer E., Alfier R., Kilbane-Dawe I., Eckermann S., Allaart M., Alpers M., Bojkov B., Cisneros J., Claude H., Cuevas E., Davies J., De Backer H., Dier H., Dorokhov V., Litynska Z., Mikkelsen I. S., Molyneux M. J., Murphy G., Nagai T., Nakane H., O'Connor F., Parrondo C., Schmidlin F. J., Skrivankova P., Varotsos C., Vialle C., Viatte P., Yushkov V., Zerefos C., von der Gathen P. : Arctic ozone loss in threshold conditions : Match observations in 1997/1998 and 1998/1999, *J. Geophys. Res.*, **106** : 7495-7503, 2001

Inomata S., Bridier I., Furubayashi M., Imamura T., Inoue G., Yamaguchi M., Washida N. : Laser-induced Fluorescence of the CHCICHO radical and reaction of oxygen atoms with halogenated ethylenes, *J. Phys. Chem. A*, **105** : 7559-7568, 2001

Terao Y., Tanaka H. L., Yasunari T., Sasano Y. : Analysis of chemical perturbation of stratospheric air parcel along the trajectory during the Arctic winter of 1996/1997 using ILAS data, *Proc. SPIE*, **4150** : 31-41, 2001

Hayashida S., Saitoh, N., Horikawa M., Amemiya Y., Brogniez C., Deshler T., Sasano Y. : Stratospheric background aerosols and polar stratospheric clouds observed with satellite sensors - inference of particle composition and sulfate amount -, *Proc. SPIE*, **4150** : 76-86, 2001

Sasano Y., Yokota T., Nakajima H., Sugita T., Kanzawa H. : ILAS-II instrument and data processing system for stratospheric ozone layer monitoring, *Proc. SPIE*, **4150** : 106-114, 2001

Sugita T., Yokota T., Nakajima T., Nakajima H., Waragai K., Suzuki M., Matsuzaki A., Itou Y., Saeki H., Sasano Y. : Temperature and pressure retrievals from O2 A-band absorption measurements made by ILAS : Retrieval algorithm and error analyses, *Proc. SPIE*, **4150** : 94-105, 2001

Nakajima H., Kuze A., Sugita T., Yokota T., Sasano Y. : Solar-Occultation FTS for Inclined-orbit Satellite (SOFIS) : Scientific requirements and current status of development, *Proc. SPIE*, **4150** : 165-173, 2001

Uemura N., Yokota T., Nakajima H., Sasano Y., Yoshigahara C., Uehara Y. : A preliminary study on data processing algorithms for SOFIS, *Proc. SPIE*, **4150** : 174-187, 2001

Kanzawa H., Camy-Peyret C., Nakajima H., Sasano Y. : A plan for ILAS-II correlative measurements with emphasis on a validation balloon campaign at Kiruna-ESRANGE, *Proc. 15th ESA Symp. Eur. Rocket & Balloon Programmes & Relat. Res.*, **ESA SP-471** : 305-308, 2001

Akiyoshi H., Takigawa M., Nagashima T., Kurokawa J., Sugata S., Takahashi M., Nakane H. : Development of CCSR/NIES nudging CTM and ozone simulation, Present and future of modeling global environmental change : Toward integrated modeling, *TER-RAPUB.* : 383-390, 2001

Yushkov V., Dorokhov V., Lukyanov A., Nakane H., Akiyoshi H., Sasano Y., Ogawa T., Hayashi M. : Balloon-borne regular and correlative measurements of ozone, water vapor, aerosol and ground-based reference total ozone observation at Yakutsk (62N, 130E) station, Summary Report of ADEOS PI Scientific Achievement : 33-44, 2001

笹野泰弘 : 2. ILASによる極域成層圏衛星観測プロジェクトの10年, *天気*, **48** : 12-20, 2001

- 中島英彰, 入江仁士, 池田 響 : SOLVE/THESEO 2000 Science Team Meeting 参加報告, 天気, 48 : 33-36, 2001
- 小川利紘, 小池 真, 栗原徹也, 渡辺真吾, 河本 望, 松川茂久, 宮崎雄三, 寺尾有希夫, 笠井康子, 長濱智生, 杉田孝史, 須藤健吾, 香川亜紀子, 滝川雅之, 永島達也, 宮内正厚, 中島英彰, 入江仁士, 白井知子, 藤原正智, 柴崎和夫 : 国際オゾンシンポジウム-Sapporo 2000-報告, 天気, 48 : 561-576, 2001
- 中島英彰, 笹野泰弘 : 環境省の衛星利用大気観測の現状と将来計画, ATMOS-C1 Workshop 2001 報告書, 75-79, 2001
- Pan L. L., Randel W. J., Nakajima H., Massie S. T., Kanzawa H., Sasano Y., Yokota T., Sugita T., Hayashida S., Oshchepkov S. : Satellite observation of dehydration in the Arctic polar stratosphere, Geophys. Res. Lett., 29 : 1184, 2002
- Oshchepkov S., Sasano Y., Yokota T. : New method for simultaneous gas and aerosol retrievals from space limb-scanning spectral observation of the atmosphere, Appl. Opt., 41 : 4234-4244, 2002
- Takigawa M., Takahashi M., Akiyoshi H. : Simulation of stratospheric sulfuric acid aerosol using a Center for Climate System Research / National Institute for Environmental Studies atmospheric GCM with coupled chemistry : Part I, nonvolcanic simulation, J. Geophys. Res., 107 : 2002
- Zhao Y., Strong K., Kondo Y., Koike M., Matsumi Y., Irie H., Rinsland C. P., Jones J. B., Suzuki K., Nakajima H., Nakane H., Murata I. : Spectroscopic measurements of tropospheric CO, C₂H₆, C₂H₂, and HCN in northern Japan, J. Geophys. Res., 107 : 4343, 2002
- Irie H., Kondo Y., Koike M., Danilin M. Y., Camy-Peyret C., Payan S., Pommereau, J. P., Goutail F., Oelhaf H., Wetzel G., Toon G. C., Sen B., Bevilacqua R. M., Russell III J. M., Renard J. B., Kanzawa H., Nakajima H., Yokota, T., Sugita T., Sasano Y. : Validation of NO₂ and HNO₃ measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) with the version 5.20 retrieval algorithm, J. Geophys. Res., 107 : 8206, 2002
- Pan L. L., Randel W. J., Massie S. T., Kanzawa H., Sasano Y., Nakajima H., Yokota T., Sugita T. : Variability of polar stratospheric water vapor observed by ILAS, J. Geophys. Res., 107 : 8214, 2002
- Kanzawa H., Schiller C., Ovarlez J., Camy-Peyret C., Payan S., Jeseck P., Oelhaf H., Stowasser M., Traub W. A., Jucks K. W., Johnson D. G., Toon G. C., Sen B., Blavier J.-F., Park J. H., Bodeker G. E., Pan L. L., Sugita T., Nakajima H., Yokota T., Suzuki M., Shiotani M., Sasano Y. : Validation and data characteristics of water vapor profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with version 5.20 algorithm, J. Geophys. Res., 107 : 8217, 2002
- McKenna D. S., Groß J.-U., Günther G., Konopka P., Müller R., Carver G., Sasano Y. : A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 2. Formulation of chemistry scheme and initialization, J. Geophys. Res., 107 : 4256, 2002
- Danilin M. Y., Ko M. K. W., Froidevaux L., Santee M. L., Lyjak L. V., Bevilacqua R. M., Zawodny J. M., Sasano Y., Irie H., Kondo Y., Russell III J. M., Scott C. J., Read W. G. : Trajectory hunting as an effective technique to validate multiplatform measurements : Analysis of the MLS, HALOE, SAGE-II, ILAS, and POAM-II data in October - November 1996, J. Geophys. Res., 107 : 4420, 2002
- Sasano Y. : Preface of ILAS special section, J. Geophys. Res., 107 : 8204, 2002
- Saitoh N., Hayashida S., Sasano Y., Pan L. L. : Characteristics of Arctic polar stratospheric clouds in the winter of 1996/1997 inferred from ILAS measurements, J. Geophys. Res., 107 : 8205, 2002
- Jucks K. W., Johnson D. G., Chance K. V., Traub W. A., Margitan J. M., Stachnik R., Sasano Y., Yokota T., Kanzawa H., Shibasaki K., Suzuki M., Ogawa T. : Validation of ILAS v5.2 data with FIRS-2 balloon observations, J. Geophys. Res., 107 : 8207, 2002
- Choi W., Kim S., Grant W. B., Shiotani M., Sasano Y., Schoeberl M. R. : Transport of methane in the stratosphere associated with the breakdown of the Antarctic polar vortex, J. Geophys. Res., 107 : 8209, 2002
-

Toon G. C., Sen B., Blavier J. F., Sasano Y., Yokota T., Kanzawa H., Ogawa T., Suzuki M., Shibasaki K. : Comparison of ILAS and MkIV profiles of atmospheric trace gases measured above Alaska in May 1997, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8211, 2002

Sugita T., Yokota T., Nakajima H., Kanzawa H., Nakane H., Gernandt H., Yushkov V., Shibasaki K., Deshler T., Kondo Y., Godin S., Goutail F., Pommereau J.-P., Camy-Peyret C., Payan S., Jeseck P., Renard J.-B., Bosch H., Fitzenberger R., Pfeilsticker K., von Konig, M., Bremer H., Kullmann H., Schlager H., Margitan J. J., Stachnik B., Toon G. C., Jucks K., Traub W. A., Johnson D. G., Murata I., Fukunishi H., Sasano Y. : Validation of ozone measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8212, 2002

Takahashi K., Taniguchi N., Sato Y., Matsumi Y. : Nonthermal steady state translational energy distributions of O(¹D) atoms in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **107** : 4290, 2002

Terao Y., Sasano Y., Nakajima H., Tanaka H. L., Yasunari T. : Stratospheric ozone loss in the 1996/1997 Arctic winter : Evaluation based on multiple trajectory analysis for double-sounded air parcels by ILAS, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8210, 2002

Wood S. W., Bodeker G. E., Boyd I. S., Jones N. B., Connor B. J., Johnson P. V., Matthews W. A., Nichol S. E., Murcray F. J., Nakajima H., Sasano Y. : Validation of version 5.20 ILAS HNO₃, CH₄, N₂O, O₃, and NO₂ using ground-based measurements at Arrival Heights and Kiruna, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8208, 2002

Nakajima H., Suzuki M., Matsuzaki A., Ishigaki T., Waragai K., Mogi Y., Kimura N., Araki N., Yokota T., Kanzawa H., Sugita T., Sasano Y. : Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in orbit, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8213, 2002

Nakajima H., Suzuki M., Yokota T., Sugita T., Itou Y., Kaji M., Araki N., Waragai K., Yamashita H., Kanzawa H., Sasano Y. : Tangent height registration for the solar occultation satellite sensor ILAS : A new technique for version 5.20 products, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8215, 2002

Yokota T., Nakajima H., Sugita T., Tsubaki H., Itou Y., Kaji M., Suzuki M., Kanzawa H., Park J. H., Sasano Y. : Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) data retrieval algorithm for Version 5.20 gas profile products, *J. Geophys. Res.*, **107** : 8216, 2002

Nagashima T., Takahashi M., Takigawa M., Akiyoshi H. : Future development of the ozone layer calculated by a general circulation model with fully interactive chemistry, *Geophys. Res. Lett.*, **29**(8) : 3-1-3-4, 2002

Akiyoshi H. : Chemistry and temperature perturbations calculated by a chemical-radiative coupled 1-D model due to Pinatubo aerosols, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **80** : 361-385, 2002

Akiyoshi H., Sugata T., Sugita H., Nakajima Hayashi H., Kurokawa J., Takahashi M. : A low-N₂O air mass simulated by the CCSR/NIES nudging CTM and observed by ILAS in 1997, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, **80** : 451-463, 2002

Austin J., Shindell D., Beagley S. R., Bruhl C., Dameris M., Manzini E., Nagashima T., Newman P., Pawson S., Pitari G., Rozanov E., Schnadt C., and Shepherd T. G. : Uncertainties and assessments of chemistry-climate models of the stratosphere, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **2** : 1097-1130, 2002

Kuze A., Nakajima H., Suzuki M., Sasano Y. : Measurement of greenhouse gases from space with a SWIR FTS, *Proc. SPIE*, **4485** : 69-80, 2002

Kuze A., Nakajima H., Tani, J., Sasano Y. : Instrumentation and laboratory model test result of Solar Occultation FTS for Inclined-orbit Satellite (SOFIS) on GCOM-A1, *Proc. SPIE*, **4486** : 356-365, 2002

Akiyoshi H., Nagashima T., Kurokawa J., Sugata S., Takigawa M., Takahashi M. : A study of future ozone trend and N₂O distribution in the high latitudes by CCSR/NIES 3-D chemical models, CGER's Supercomputer Activity Report, 9 : 3-10. 2002

中根英昭 : 環境問題における大気化学 , 天気 , 49 : 23-28, 2002

永島達也 , 高橋正明 : 成層圏オゾン層の将来見通し 化学気候モデルを用いた評価 , 天気 , 49 : 937-944 , 2002

Kanzawa H. *et al.* : Correction to " Validation and data characteristics of water vapor profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with the version 5.20 algorithm " by H. Kanzawa *et al.* : J. Geophys. Res., 108 : 8218, 2003

Tilmes S., Müller R., Grooß J.-U., McKenna D. S., Russell III J. M., Sasano Y. : Calculation of chemical ozone loss in the Arctic winter 1996 - 1997 using ozone-tracer correlations : Comparison of Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and Halogen Occultation Experiment (HALOE) results, J. Geophys. Res., 108 : 4048, 2003

Kondo Y., Toon O. B., Irie H., Gamblin B., Koik, M., Takegawa N., Tolbert M. A., Hudson P. K., Viggiano A.A., Avallone L.M., Hallar A. G., Anderson B. E., Sachse G. W., Vay S. A., Hunton D. E., Ballenthin J. O., Mille, T. M. : Uptake of reactive nitrogen on cirrus cloud particles in upper troposphere and lowermost stratosphere, Geophys. Res. Lett., 30 : 1154, 2003

Irie H., Kondo Y. : Evidence for the nucleation of polar stratospheric clouds inside liquid particles, Geophys. Res. Lett., 30 : 1189, 2003

Shine K. P., Bourqui M. S., Forster P. M. de F., Braesicke P., Langematz U., Grewe V., Schnadt C., Smith C., Haigh J. D., Randel W. J., Portmann R. W., Solomon S., Ramaswamy V., Schwarzkopf M. D., Shindell D., Austin J., Butchart N., Nagashima T. : A comparison of model-predicted trends in the stratospheric temperature, Q. J. R. Meteor. Soc., (in press)

Kanzawa H., Sugita T., Nakajima H., Bodeker G. E., Oelhaf H., Stowasser M., Wetzell G., Engel A., Schmidt U., Levin I., Toon G.C., Sen B., Blavier J.-F., Aoki S., Nakazawa T., Jucks K. W., Johnson D. G., Traub W. A., Camy-Peyret C., Payan S., Jeseck P., Murata I., Fukunishi H., von Koenig M., Bremer H., Kullmann H., Park J. H., Pan L. L., Yokota T., Suzuki M., Shiotani M., Sasano Y. : Validation and data characteristics of nitrous oxide and methane profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with the Version 5.20 algorithm, J. Geophys. Res., (in press)

Lukyanov A. N., Nakane H., Yushkov V. A. : Lagrangian Estimations of Ozone Loss in the Core and Edge Region of the Arctic Polar Vortex 1995/1996 : Model Results and Observations, J. Atmos. Chem., 44 : 191-210, 2003

Imamura T., Chono H., Shibuya K., Washida N. : Rate constant for the reaction of CCl₃ radicals with ozone, Int. J. Chem. Kinet., (in press)

Akiyoshi H., Takigawa M., Kurokawa J., Sugita T., Kanzawa H., Takahashi M. : Study on ozone layer variation using the CCSR/NIES AGCM with coupled chemistry and the CCSR/NIES nudging CTM, CGER's Supercomputer Act. Rep., 10 : 3-11. 2003

Lefevre F., Nakajima H. : Stratospheric denitrification and composition of Polar Stratospheric Clouds inferred from 3D simulations and ILAS data, CGER'S Supercomputer Act. Rep., 10 : 47-54, 2003

Nagashima T., Takahashi M., Takigawa M., Akiyoshi H. : An estimation of the future development of the ozone layer by a coupled chemistry-climate model, CGER's Supercomputer Act. Rep., 10 : 23-29. 2003

中島英彰 (竹内均監修) : 衛星センサーによるオゾン層破壊関連分子の観測 (調査事例) , 地球環境調査計測辞典, 第1巻 陸域編 1 , 431-434, 2003

2 口頭発表

発表者・題目・学会等名称・開催都市名・年月

秋吉英治, 滝川雅之, 永島達也, 黒川純一, 菅田誠治, 高橋正明, 中根英昭: CCSR/NIESナudgingCTMによる1997年の化学微量成分分布のシミュレーション, 第11回大気化学シンポジウム研究集会, 豊橋, 2001.1

雨宮百合子, 斎藤尚子, 林田佐智子, 林 政彦, 白石浩一, 柴田 隆, 岩坂泰信, 山内 恭, 平沢尚彦, 笹野泰弘: ILAS及びライダーデータを用いた極域成層圏雲の解析, 第11回大気化学シンポジウム研究集会, 豊橋, 2001.1

杉田考史, 中島英彰, 河本 望, 秋吉英治, 神沢 博, 横田達也, 笹野泰弘: ILASで観測された北極極渦 消滅後の微量成分分布, 第11回大気化学シンポジウム研究集会, 豊橋, 2001.1

河本 望, 中島英彰, 笹野泰弘: 1996年南半球冬と1996/97年北半球の極渦崩壊について, 第11回大気化学シンポジウム研究集会, 豊橋, 2001.1

中島英彰, 河本 望, 神沢 博, 笹野泰弘: ILASが観測した極渦崩壊時における微量成分分布について(その1), 第11回大気化学シンポジウム研究集会, 豊橋, 2001.1

佐藤佳宏, 中島英彰, 横田達也, 笹野泰弘: ILASにより観測された極域中間圏雲について, 第11回大気化学シンポジウム研究集会, 豊橋, 2001.1

秋吉英治, 黒川純一, 菅田誠治, 滝川雅之, 永島達也, 高橋正明, 中根英昭: CCSR/NIESナudgingCTMによる1997年の大気微量成分分布の計算 - PSC依存性, ナudging緩和時間依存性, 気象データ依存性, 及び臭素系物質依存性, 特定領域研究 B 成層圏力学過程とオゾンの変動およびその気候への影響, 平成12年度公開シンポジウム, 京都, 2001.2

秋吉英治: CCSR/NIESナudgingCTMによる1997年の大気微量成分分布の計算 - 北極渦周辺の物質分布, 臭素系物質によるオゾン破壊, ATMOS-C1 Workshop 2001, つくば, 2001.2

入江仁士, 小池 真, 近藤 豊, Bodeker G.E., Danilin M.Y., 笹野泰弘: 1996-1997年冬季の北極下部成層圏における硝酸の再分配, 特定領域研究 B 成層圏力学過程とオゾンの変動およびその気候への影響, 平成12年度公開シンポジウム, 京都, 2001.2

齋藤尚子, 林田佐智子, 笹野泰弘: ILASデータによるPSCsの化学組成推定-粒子の流跡線を考慮して-, 特定領域研究B成層圏力学過程とオゾンの変動およびその気候への影響, 平成12年度公開シンポジウム, 京都, 2001.2

寺尾有希夫, 笹野泰弘: 1996-1997年冬期北極域における成層圏オゾン減少の定量化: ILASデータと多重流跡線解析に基づくSatellite-Match解析, 特定領域研究B成層圏力学過程とオゾンの変動およびその気候への影響, 平成12年度公開シンポジウム, 京都, 2001.2

中島英彰, 河本 望, 神沢 博, 笹野泰弘: ILASデータで見た極渦崩壊時の微量気体成分の子午面輸送について, 特定領域研究 B 成層圏力学過程とオゾンの変動およびその気候への影響, 平成12年度公開シンポジウム, 京都, 2001.2

河本 望, 中島英彰, 笹野泰弘: 極渦崩壊時における力学場について-1996年南半球冬と1996/97年北半球冬の極渦崩壊-, 特定領域研究B成層圏力学過程とオゾンの変動およびその気候への影響, 平成12年度公開シンポジウム, 京都, 2001.2

横田達也, 笹野泰弘, 椿 広計, 杉田考史, 中島英彰: ADEOS衛星搭載センサーILASのデータ処理における誤差評価(その5), (社)日本リモートセンシング学会第30回学術講演会, 143-144, 東京, 2001.4

秋吉英治, 黒川純一, 菅田誠治, 中根英昭, 滝川雅之, 永島達也, 高橋正明: CCSR/NIES nudging CTM による1997年の大気微量成分分布の計算 - 臭素系物質によるオゾン破壊と北極渦周辺の物質分布, 日本気象学会2001年春季大会, 79, 東京, 2001.5

杉田考史, 中島英彰, 河本 望, 寺尾有希夫, 秋吉英治, 横田達也, 神沢 博, 笹野泰弘: ILASにより測定された北半球春期 - 初夏にかけての高緯度成層圏におけるオゾン, 窒素酸化物およびレーザー物質の挙動(2), 日本気象学会2001年春季大会, 264, 東京, 2001.5

Kanzawa H., Camy-Peyret C., Nakajima H., Sasano Y. : A plan for ILAS-II correlative measurements with emphasis on a validation balloon campaign at Kiruna-ESRANGE, 15th ESA Symp. Eur. Rocket and Balloon Programmes and Related Res., Biarritz, France, 2001.6

Yokota T., Sugita T., Nakajima H., Sasano Y., Kaji M., Itou Y. : ILAS data retrieval status and radiative transfer calculation, Atmos. Transm. and Radiation Models, Boston, 2001.6

Akiyoshi H., Sugata S., Nakane H., Kurokawa J., Takigawa M., Nagashima T., Takahashi M. : Ozone destruction by bromine species and transport of Arctic polar airmass to the midlatitudes calculated by the CCSR/NIES nudging CTM, 8th Sci. Assembly of IAMAS, Innsbruck, 2001.7

Terao Y., Sasano Y., Nakajima H., Tanaka H.L., Yasunari T. : Stratos. ozone loss and chemical perturbation of the air parcel in the 1996/1997 Arctic winter as evaluated by the Satellite-Match approach using ILAS data, 8th Sci. Assembly of IAMAS, Innsbruck, 2001.7

Nakajima H., Kawamoto N., Kanzawa H., Sasano Y. : Meridional mixing of minor species observed by satellite sensor ILAS, 8th Sci. Assembly of IAMAS, Innsbruck, 2001.7

Nagashima T., Takahashi M., Takigawa M., and Akiyoshi H. : On the variabilities of lower stratosphere in a general circulation model with interactive chemistry, 8th Sci. Assembly of IAMAS, Innsbruck, 2001.7

Inomata S., Zils R., Imamura T., Washida N. : Equilibrium between Resonance-Stabilized Radicals, O₂, and RO₂ : Implication in Photooxidation of Aromatics, SPARC/IGAC Workshop on Laboratory Studies of Upper Troposphere / Lower Stratosphere Processes, Brecknridge, USA, 2001. 7

神沢 博: ILAS-II 関連ゾンデ観測, 南極大気・物質循環観測に関する研究小集会, 東京, 2001.9

神沢 博: 衛星センサーILASによる極域成層圏の観測結果とILAS-IIによる観測計画, 南極大型レーダー計画との接点に着目して, 南極大型レーダー計画 北極EISCATレーダーおよびグローバルレーダー網との連携による極域大気環境の総合観測に関する研究小集会, 東京, 2001.9

Sugita T., Yokota T., Nakajima H., Kanzawa H., Nakane H., Gernandt H., Yushkov V., Shibasaki K., Deshler T., Kondo Y., Godin S., Goutail F., Pommereau J. -P., Camy-Peyret C., Payan S., Jeseck P., Renard J. -B., Bosch H., Fitzenberger R., Pfeilsticher K., von Konig M., Bremer H., Kullmann H., Schlanger H., Margitan J. J., Stachnik B., Toon G. C., Jucks K., Traub W. A., Johnson D. G., Murata I., Fukunishi H., Sasano Y. : Validation of ozone measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS), Network for the Detection of Stratos. Change 2001 Symp. , Arcachon, France, 2001.9

齋藤尚子, 林田佐智子, 笹野泰弘: 流跡線解析を用いた極成層圏雲の化学組成の考察, 日本気象学会2001年秋季大会, 189, 岐阜, 2001.10

佐藤佳宏, 中島英彰, 横田達也, 笹野泰弘: ILASにより観測された極域中間圏雲の粒径推定, 日本気象学会2001年秋季大会, 239, 岐阜, 2001.10

林 寛生, 中島英彰, 神沢 博, 杉田考史, 笹野泰弘: ILASによる観測からみた南半球極域の下部成層圏における下降流について, 日本気象学会2001年秋季大会, 235, 岐阜, 2001.10

永島達也, 高橋正明, 滝川雅之, 秋吉英治: 北半球高緯度春季下部成層圏の低温下傾向について - 化学大循環モデル実験を通じた考察 -, 日本気象学会2001年秋季大会, 岐阜, 2001.10

Nakajima H.: Current status of the Solar-Occultation FTS for Inclined-orbit (SOFIS) hardware development, 10th ASSFTS, Ventura, 2001.10

Uemura N., Yokota T., Nakajima H., Sugita T., Sasano Y.: Software development status for SOFIS, 10th ASSFTS, Ventura, 2001.10

藁谷克則, 荒木信博, 山下 博, 中島英彰, 横田達也, 杉田考史, 笹野泰弘: 衛星センサILAS-IIの赤外装置関数の最適化, 第27回リモートセンシングシンポジウム, 東京, 2001.10

Nakane H., Lukyanov A., Nagahama T., Akiyoshi H., Yamazaki I., Nakagawa K., Saigo K., Furuhashi N., Kurokawa J., Ikeuchi I.: Variability of polar vortex and its effects on ozone, Network for the Detection of Stratos. Change 2001 Symp., Arcachon, France, 2001.10

秋吉英治, 黒川純一, 菅田誠治, 杉田考史, 中島英彰, 林 寛生, 高橋正明: CCSR/NIESナッジング化学 - 輸送モデルによってシミュレートされた1997年北極渦崩壊後の低濃度 N_2O 空気塊の挙動, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

今村隆史: 硫酸エアロゾルへのギ酸の取り込み過程, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

神沢 博: 成層圏水蒸気の分布と長期変動, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

河本 望, 神沢 博, 塩谷雅人: ILASデータにもとづく下降速度の見積もり, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

齋藤尚子, 林田佐智子, 笹野泰弘: 衛星データを用いた北極および南極初期PSCsの形成過程とその組成について, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

濱村 翠, 香川晶子, 林田佐智子, 笹野泰弘: 衛星データを用いた極域成層圏のOHの見積もり, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

杉田考史, 秋吉英治, 中島英彰, 林寛生: ILASで観測された初夏の北半球中高緯度成層圏におけるオゾンの挙動, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

渡辺 猛, 長澤佳克, 佐保良次, 森山正人, 森田 健, 樋渡史子, 松見 豊, 中島英彰, 横田達也: ガス吸収パラメータ測定用低温多重反射セルの製作, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: SFIT2を用いた地上赤外分光観測からの大気微量成分高度分布の導出, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

山崎郁夫, 中川正道, 中根英昭, Yushkov V.: 後方流跡線と渦位解析を組み合わせた手法による成層圏オゾンの変動, 第12回大気化学シンポジウム, 10-13, 豊橋, 2001.12

シンジャワ, 巻出義紘, 中根英昭, 青木周司, 中澤高清, 神沢 博, 笹野泰弘: 1997年5月三陸大気球およびILASによって観測された極渦由来気塊の渦位/トラジェクトリー解析, 第12回大気化学シンポジウム, 豊橋, 2001.12

池内和泉, 古橋規尊, 中根英昭, 向井人史, 勝本正之, 藤沼康実: トラジェクトリ解析における三次元型モデル導入の検討, 第12回大気化学シンポジウム, 202-203, 豊橋, 2001.12

- Hayashi H., Nakajima H., Kanzawa H., Sugita T., Sasano Y. : Downward motions in the Antarctic polar vortex as seen in the ILAS N₂O data, AGU 2001 Fall Meet., San Francisco, 2001.12
- Nakajima H., Kawamoto N., Kanzawa H., Sasano Y. : Mixing of minor species across the polar vortex boundary at the time of polar vortex breakup observed by satellite sensor ILAS, AGU 2001 Fall Meet., San Francisco, 2001.12
- Sato Y., Nakajima H., Yokota T., Sasano Y. : Polar mesospheric clouds observed with the Improved Limb Atmospheric Spectrometer in the southern hemisphere, AGU 2001 Fall Meet., San Francisco, 2001.12
- Nagashima T., Takahashi M., Takigawa M., Akiyoshi H. : An estimation of the future development of the ozone layer by a coupled chemistry-climate model, AGU 2001 Fall Meet., San Francisco, 2001.12
- 秋吉英治, 菅田誠治, 杉田考史, 中島英彰, 黒川純一, 林 寛生, 高橋正明: CCSR/NIES ナッジング化学輸送モデルでシミュレートされた1997年北極渦崩壊後の低濃度N₂O空気塊, 特定領域研究 B 成層圏変動と気候, 第3回シンポジウム, 東京, 2002.2
- 林 寛生, 中島英彰, 神沢 博, 杉田考史, 笹野泰弘: ILASによって観測された南半球極渦内の下降流について, 特定領域研究 B 成層圏変動と気候, 第3回シンポジウム, 東京, 2002.2
- 村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: フーリエ分光計を用いた赤外分光観測による大気微量成分高度分布観測, 特定領域研究 B 成層圏変動と気候, 第3回シンポジウム, 東京, 2002.2
- Uemura N., Nakajima H., Yokota T., Sugita T., Sasano Y. : Status of software development for SOFS, 6th Workshop on Infrared Emission Measurements by FT-IR, Proc. Workshop on Infrared Emission Measurements by FT-IR, 20, Quebec, 2002.2
- Nakajima H., Sasano Y., Kuze A., Tani J. : Current status of the Solar-Occultation FTS for Inclined-orbit Satellite (SOFIS) hardware development, 6th Workshop on Infrared Emission Measurements by FT-IR, Proc. Workshop on Infrared Emission Measurements by FT-IR, 19, Quebec, 2002.2
- Kanzawa H., Nakajima H. : Present status of ILAS-II validation plan, 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- Kawamoto N., Kanzawa H., Shiotani M. : Descent rate in the Antarctic vortex and its relation to dynamical field, The 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- Sato Y. : Particles characteristics from the spectra PMCs, 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- Sugita T. : Temperature and pressure retrievals : toward ILAS-II, 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- Nakajima H. : Assessment of uncertainties in trajectory calculations using different Meteorol. datasets and different analysis models, 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- Nakajima H. : Hardware development status of the ILAS-II instrument, 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- Hayashi, H. : Downward motions in the southern polar vortex, 4th ILAS-II Sci. Team Meet., Osaka, 2002.3
- 神沢 博: 陸域生態系による二酸化炭素の吸収量排出量の評価, 大気組成モニタリングへの衛星観測の貢献シンポジウム, 東京, 2002.3
- 杉田考史: 温室効果ガス・オゾン層大気微量成分の観測, 大気組成モニタリングへの衛星観測の貢献シンポジウム, 東京, 2002.3
- Terao Y., Sasano Y., Nakajima H. : Stratos. ozone loss in the 1997 Arctic winter as evaluated by the Satellite-Match analysis using ILAS data, Arctic Ozone Loss Workshop, Potsdam, Germany, 2002.3
-

村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: フーリエ分光計を用いた赤外分光観測による大気微量成分高度分布観測, 第16回大気圏シンポジウム, 豊橋, 2002.3

小林展隆, 村田 功, 福西 浩, 中根英昭: 赤外分光観測による大気微量成分全量導出の高精度化, 第16回大気圏シンポジウム, 豊橋, 2002.3

秋吉英治, 今村隆史, 黒川純一, 中根英昭, 高橋正明: 臭素系物質による北極域オゾン破壊の極渦崩壊時期による影響, 日本気象学会, 大宮, 2002.5

黒川純一, 秋吉英治, 永島達也, 中根英昭, 増永浩彦, 中島映至, 高橋正明: CCSR/NIES成層圏ナッジング化学輸送モデル及び光化学結合モデルへの大気球面効果の導入, 日本気象学会, 大宮, 2002.5

永島達也, 高橋正明, 滝川雅之, 秋吉英治: 大循環化学結合モデルによって計算された将来の成層圏オゾン層, 日本気象学会, 大宮, 2002.5

池内和泉, 古橋規尊, 中根英昭, 菅田誠二, 向井人史, 勝本正之, 藤沼康実: 三次元流跡線モデルの導入検討, 日本気象学会, 大宮, 2002.5

杉田考史, 中島英彰, 林 寛生, 笹野泰弘: 極域オゾン破壊に及ぼす成層圏脱硝過程の影響, 日本気象学会2002年度春季大会, さいたま, 2002.5

寺尾有希夫, 笹野泰弘, 中島英彰, 田中 博, 安成哲三: ILASとPOAMデータを用いたSatellite-Match解析による成層圏オゾン減少量の定量化, 日本気象学会2002年度春季大会, さいたま, 2002.5

中島英彰, 杉田考史, 松園 正, 福田友紀子: トラジェクトリー解析モデルの比較検証, 日本気象学会2002年度春季大会, さいたま, 2002.5

入江仁士, 近藤 豊, 小池 真, 中島英彰, 笹野泰弘: 冬季の極域成層圏における固体粒子の核形成メカニズム, 第8回大気化学討論会, 洞爺, 2002.6

Sasano Y., Yokota T., Nakajima H., Sugita T., Kanzawa H. : ILAS achievements and ILAS-II Sci. plan, 2002 IEEE Int. GeoSci. and Remote Sensing Symp., Toronto, Can., 2002.6

Irie H., Kondo Y., Koike M., Nakajima H., Sasano Y. : An evidence for the nucleation of polar Stratos. clouds from liquid particles, 6th Eur. Symp. Stratos. Ozone, AGöteborg, Sweden, 2002.9

Davies S., Mann G. W., Carslaw K. S., Chipperfield M. P., Kettleborough J., Fahey D. W., Northway M. J., Oelhaf H., Sasano Y., Santee M. L., Wetzell G. : Comparison of a 3-D microphysical denitrification model with in-situ and remote observations for the cold Arctic winters of the 1990, 6th Eur. Symp. Stratos. Ozone, Göteborg, Sweden, 2002.9

von der Gathen P., Halk C., Handorf D., Rex M., Lehmann R., Bevilacqua R., Sasano Y. : Connections between tropospheric climate and Stratos. ozone distributions, 6th Eur. Symp. Stratos. Ozone, Göteborg, Sweden, 2002.9

Sugita T., Nakajima H., Hayashi H., Sasano Y. : The effect of Stratos. denitrification on ozone loss observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in the 1997 Arctic polar vortex, 6th Eur. Symp. Stratos. Ozone, Göteborg, Sweden, 2002.9

Riviere E. D., Terao Y., Nakajima H., Lefevre F. : Lagrangian modeling of denitrification observed by ILAS over the Arctic and Antarctica, 6th Eur. Symp. Stratos. Ozone, Göteborg, Sweden, 2002.9

Nakajima H., Sugita T., Yokota T., Kobayashi H., Sasano Y. : Current status of Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) onboard the ADEOS-II satellite, 9th Int. Symp. Remote Sensing, Crete, Greece, 2002.9

中根英昭, 長浜智生, 福井康雄, 水野 亮: 超伝導ミリ波受信機を用いた成層圏オゾン及びClO鉛直分布の測定, 第6回分析化学東京シンポジウム2002機器分析東京討論会, 千葉, 2002.9

秋吉英治, 杉田考史, 神沢 博, 河本 望: NO_xサイクルとプラネタリー波による夏の高緯度下部成層圏の低オゾン域, 日本気象学会, 札幌, 2002.10

秋吉英治, 周 立波, 川平浩二: 台湾近辺の12月と1月のオゾン全量の年々変動, 日本気象学会, 札幌, 2002.10

入江仁士, 近藤 豊, 小池 真, 中島英彰, 笹野泰弘: 冬季の極域成層圏における固体粒子の核形成メカニズム, 日本気象学会2002年度秋季大会, Sapporo, 2002.10

江尻 省, 中島英彰, Meier A., Blumenstock T.: キルナFTIRスペクトルのSFIT2による解析とILASから得た大気微量成分の高度分布の比較, 日本気象学会2002年度秋季大会, 札幌, 2002.10

河本 望, 神沢 博, 塩谷雅人: ILASにもとづく下降速度の見積もり, 日本気象学会2002年度秋季大会, 札幌, 2002.10

齋藤尚子, 林田佐智子, 笹野泰弘: 97年冬季南極で観測された極成層圏雲の特徴について, 日本気象学会2002年度秋季大会, 札幌, 2002.10

杉田考史, 中島英彰, 林 寛生: 極域オゾン破壊に及ぼす成層圏脱硝過程の影響(2), 日本気象学会2002年度秋季大会, 札幌, 2002.10

中島英彰, 入江仁士, 杉田考史, 笹野泰弘: ILASによるClONO₂の観測, 日本気象学会2002年度秋季大会, 札幌, 2002.10

Park C. B., Nakane H., Sugimoto N., Matsui I., Sasano Y., Fujinuma Y., Ikeuchi I., Kurokawa J., Huruhashi T.: Measurements of Stratospheric ozone, aerosol and temperature vertical profiles during 1988-2001 over Tsukuba with NIES Lidar, 日本気象学会, 札幌, 2002.10

池内和泉, 古橋規尊, 福井康雄, 水野 亮, Lukaynov A., 中根英昭, 秋吉英治: 渦位予報システムおよび酸化塩素濃度予報システムの構築, 日本気象学会, 札幌, 2002.10

長浜智生, 中根英昭: SEASCRAPEを用いたつくばFTIRデータの解析による対流圏・成層圏微量分子の鉛直分布, 日本気象学会, 札幌, 2002.10

Irie H., Kondo Y., Koike M., Nakajima H., Sasano Y.: Relationship between denitrification and hydrate saturations, SPIE 's Third Int. Asia-Pacific Environmental Remote Sensing Symp. 2002, Remote Sensing of the Atmos., Ocean, Environ., Space, Hangzhou, China, 2002.10

Sugita T., Yokota T., Nakajima H., Sasano Y.: Progress in the temperature and pressure retrievals from ILAS, SPIE's Third Int. Asia-Pacific Environmental Remote Sensing Symp. 2002, Remote Sensing Atmos., Ocean, Environ., Space, Hangzhou, China, 2002.10

Yokota T., Nakajima H., Sugita T., Usami M., Kawasaki H., Sasano Y.: Data retrieval simulation of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) aboard the ADEOS-II satellite, SPIE's Third Int. Asia-Pacific Environmental Remote Sensing Symp. 2002, Remote Sensing Atmos., Ocean, Environ., Space, Hangzhou, China, 2002.10

岩澤利幸, 藁谷克則, 木村教夫, 荒木信博, 仙福 明, 茂木勇治, 石垣武夫, 中島英彰, 杉田考史, 神沢 博, 横田達也, 小林博和, 笹野泰弘: 改良型大気周縁赤外分光計II型(ILAS-II)の開発, 第46回宇宙科学技術連合講演会, 小金井, 2002.10

Akiyoshi H., Sugata S., Sugita T., Nakajima H., Hayashi H., Kanzawa H., Kurokawa J., Kawamoto N., and Takahashi M.: A study on transport and chemistry in the summer lower stratosphere using CCSR/NIES nudging CTM and the ILAS observation, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.11

Zhou L., Akiyoshi H., and Kawahira K. : A CTM simulation of year-to-year variation of total ozone over subtropical western Pacific, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.11

Takigawa M., Takahashi M., and Akiyoshi H. : Simulation of Stratos. sulfuric acid aerosol using CCSR/NIES AGCM with coupled chemistry : The impact of Pinatubo aerosol on climate, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.11

Kondo Y., Irie H., Koike M. : Denitrification in the Arctic stratosphere -Observations and suggested mechanism-, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.11

Irie H., Kondo Y., Koike M., Nakajima H., Sasano Y. : Denitrification in the Antarctic stratosphere in early winter, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.1

Kawamoto N., Kanzawa H., Shiotani M. : Time Var. of the descent rate in the Antarctic vortex during the early winter of 1997, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, , Fukuoka, 2002.11

Sugita T., Nakajima H., Hayashi H., Sasano Y. : The effect of Stratos. denitrification on ozone loss as observed by ILAS in the 1997 Arctic polar vortex, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.11

Nagashima T., Takahashi M., Takigawa M., and Akiyoshi H. : An estimation of the future development of the ozone layer by a coupled chemistry-climate model, Int. Symp. Stratos. Var. Climate, Fukuoka, 2002.11

江尻 省, 中島英彰, Meier, A., Blumenstock, T. : キルナFTIRスペクトルのSFIT2による解析とILASから得た大気微量成分の高度分布の比較, 第112回地球電磁気・地球惑星圏学会講演会, 東京, 2002.11.

Kawamoto N., Kanzawa H., Shiotani M. : Descent rate in the Antarctic vortex estimated by ADEOS/ILAS trace gases and its relation to dynamical fields, 12th Conf. Middle Atmos. (Am.n Meteorol. Soc.), San Antonio, TX, USA, 2002.11

秋吉英治, 杉田考史, 神沢 博, 河本 望, ナッジングCTMとILASデータを用いた夏の下部成層圏のオゾン変動に関する研究 - N₂Oの変動との比較, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

入江仁士, 近藤 豊, 中島英彰: 1997年初冬における南極成層圏の脱室, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

杉田考史: 衛星による大気観測とその役割について, 平成14年度地球環境研究総合推進費公開シンポジウム, 東京, 2002.12

杉田考史, 横田達也, 中島英彰, 入江仁士, 神沢 博, 小林博和, 笹野泰弘: ILAS最新バージョン6.0のデータ質, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

中島英彰, 入江仁士, 杉田考史, 横田達也, 笹野泰弘: ILAS Version 6.0によるClONO₂及びN₂O₅の観測, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

中島英彰, 杉田考史: ILAS-II/SOFIS, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

村田 功, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: 地上赤外分光観測より導出したオゾン高度分布の精度, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

深堀正志, 青木忠生, 渡辺 猛: ILAS-IIのチャンネル2領域におけるN₂O及びCO₂の低温スペクトル測定, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

Zhou L., Akiyoshi H., and Kawahira K. : Analysis of year-to-year ozone variation over the subtropical western Pacific region using ozone observation data and CCSR/NIES nudging CTM, 第13回大気化学シンポジウム, 豊川, 2003.1

REPORT OF SPECIAL RESEARCH FROM
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

国立環境研究所特別研究報告
SR - 55 - 2003

平成15年11月28日発行

編 集 国立環境研究所 編集委員会
発 行 独立行政法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16番2
電話 029-850-2343 (ダイヤルイン)

印 刷 朝日印刷株式会社
〒309-1117 茨城県真壁郡協和町向川澄82-1

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan
November 2003

無断転載を禁じます