

光学リモートセンシングによる成層圏

エアロゾルおよびオゾンの研究

—2002年度堀内賞受賞記念講演—

林 田 佐智子*

1. はじめに

この度気象学会から栄誉ある堀内賞をいただきありがとうございます。この受賞は私にとって大きな励みとなりました。ここまでやってこられましたのも多くの人たちの支えがあったからで、気象学会のみならず心から感謝致します。本日は私の研究内容をお話する時間を与えていただきましたので、簡単にこれまでの私の研究について紹介します。

2. ライダーで得られた火山性エアロゾルの質的変動

受賞理由に挙げられた論文リストの最初の論文に掲載されたこの図をまず紹介します(第1図)。この図は当時大学院生として在学中の名古屋大学水圏科学研究所のライダーで得られた観測結果で、後方散乱係数と偏光解消度の時間変化を示したものです。1982年にメキシコで大噴火を起こしたエルチチョン火山の噴火後の成層圏エアロゾルの変化を示しています。よく知られていますように、火山性の成層圏エアロゾルがエルチチョン火山噴火直後に急激に増大し、やがて次第に減少してゆくという過程が見取れます。この図のプロファイルに陰をつけて示したのは偏光解消度です。偏光解消度とはライダーで使用されるレーザー光の偏光の性質が散乱によって解消される割合で、散乱体の非球形性を示す指標としてしばしば使用されます。この図で示されているように、噴火直後には火山から噴出された鉱物粒子が混じっていたために偏光解消度が高くなり、その後それらが重力沈降で除去され

ると共に周囲に硫酸が凝結成長して球形に戻ってゆく過程がみてとれます。

今でこそライダーの偏光解消度観測はポピュラーになっていますが、当時は観測例もまだ少ない時代でした。指導教官の岩坂泰信先生(現:名古屋大学太陽地球環境研究所)の発案で偏光解消度の観測を始めた私達は、このように火山噴火の前後における偏光解消度の時間変化を、世界で初めて系統的に明らかにすることができました。ところが当時私はまだ博士課程の学生で、岩坂先生は南極で越冬中でおられ、今と違って電子メールもない時代でしたから全く議論もできない状況でした。1984年国際地球物理学・測地学連合学会(IUGG)の会議がハンブルグ(ドイツ)で開催され、エルチチョン噴火に関するスペシャルセッションでこの結果を発表し、好評を得ました。ところがその成果をプロシーディングスに投稿したところ出版されたのはメキシコの気象学会誌で、印刷技術がたいそう未熟でこの図表はゆがんでかすれて印刷されてしまい、以来この論文が日の目をみることはありませんでした¹⁾。

それはともかくとして、ここで申し上げたいのは、この図が成層圏エアロゾルの量的な変化だけでなく質的な変化も示していることです。その意味で、私は今もってこの図には自分の原点があると思っています。岩坂先生の教えを受けた大学院時代以来、私が一貫して求めてきたものはエアロゾルにしろ、微量成分にしろ、単に量的な変化や輸送による分布の変化ではなく、質的な変化・化学的な変質、化学的生成・消滅の過程です。これから紹介します一連の研究における問題意識もまさにそこにあります。

* 奈良女子大学理学部情報科学科。

—2003年1月6日受領—

—2003年4月21日受理—

¹⁾ 第1図は「天気」解説からの再掲(林田, 1988)。

3. 成層圏エアロゾル長期変動の衛星データの解析

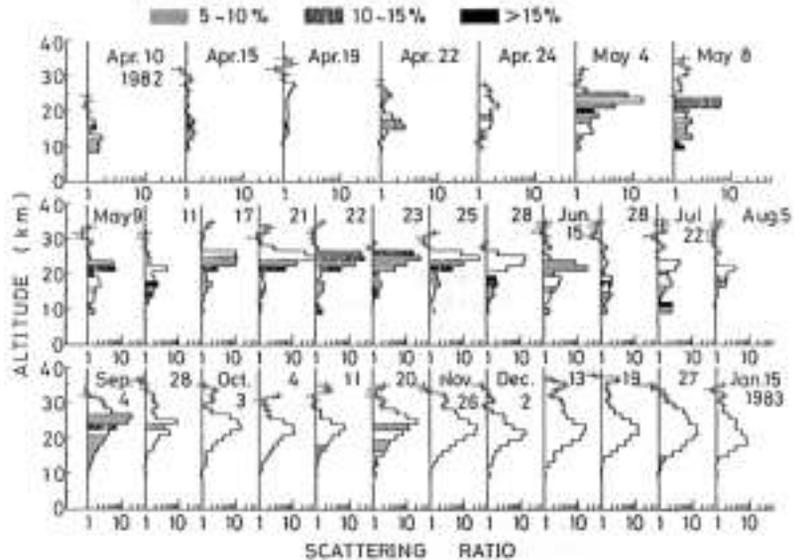
名古屋大学で大学院時代を過ごした後、国立環境研究所に就職し、そこでもライダーで成層圏エアロゾルの観測を続けてきましたが (e.g., Hayashida *et al.*, 1991, Hayashida and Sasano, 1993), それらの内容は省略して最近の研究成果に話を移したいと思います。1994年に奈良女子大学へ移って最初に手がけたのが SAGE II (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II) のデータを使った成層圏エアロゾルの長期変動の解析です。これは本音をいうと他にやれるこ

とがなかったからなのですが、そう言ってしまっはては済みです。一応の研究の動機をお話します。

気球観測で有名なワイオミング大学 (米) の Hofmann (Hofmann, 1990) が、成層圏エアロゾルのバックグラウンドレベルが増加しつつあることを指摘して以来、多くの関心が持たれてきました。彼はエルチヨン火山噴火前の1980年頃とピナツボ火山噴火直前の1990年頃の気球観測データを比較解析し、バックグラウンド時期の値が増加しているという傾向を指摘しました。Hofmann (1991) ではこの原因を航空機からの排ガスであろうと問題提起しました。

一方、Hitchman *et al.* (1994) などを見ると、そもそも成層圏エアロゾルは火山噴火の擾乱のみによって維持されていて、バックグラウンドレベルなどというものは無いという見方もされています。そこで衛星データから成層圏エアロゾルの長期変動を調べようと考えました。しかし、量的な変化だけではおもしろくないので、多波長の消散係数を併せて解析することによって粒径情報も得ようとして解析を始めました。

SAGE II は太陽掩蔽法を用いた衛星センサーです。太陽掩蔽法とは太陽を地球の大気を通して見ることで光路中の吸収物質や散乱体による光の減衰を測定し、それらの量を導出する手法で、それらの高度分布がわかることが利点です。SAGE II では1020, 525, 430,



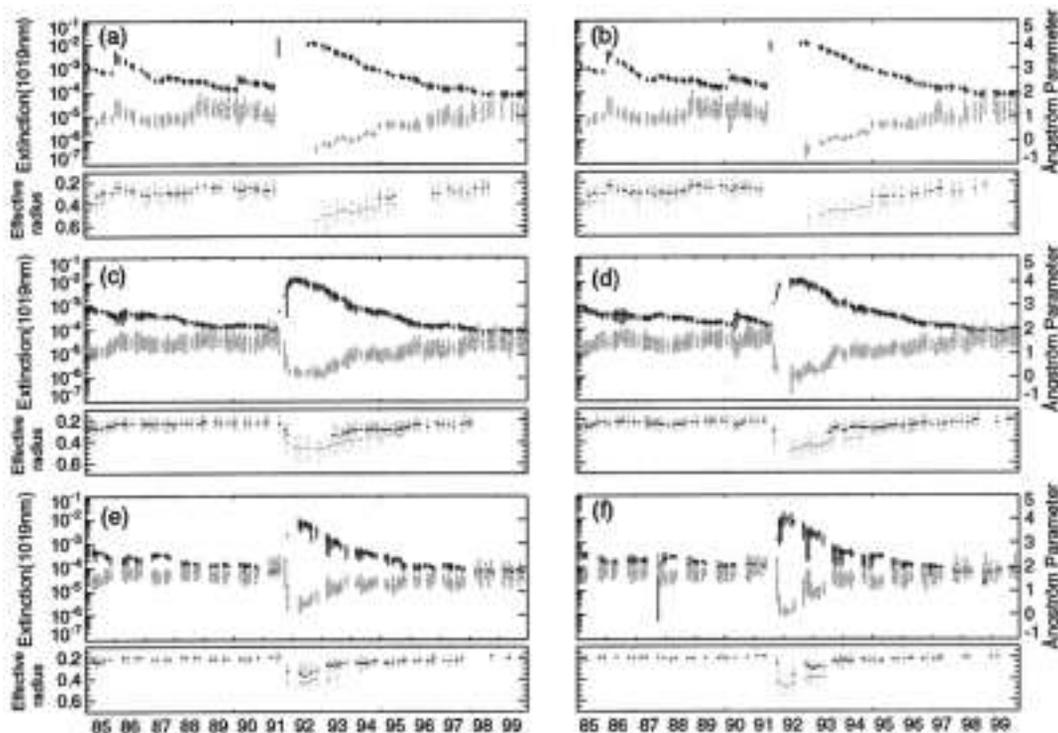
第1図 名古屋大学水圏科学研究所のライダーでとらえられたエルチヨン火山噴火後の成層圏エアロゾルの散乱比プロファイルと偏光解消度の時間変化。横軸は散乱比、陰影は偏光解消度の大きさを表す (オリジナルは Hayashida *et al.*, 1984; 林田 1988より抜粋)。

380 nm ($=10^{-9}$ m) の4波長で消散係数の観測を行っていますから、消散係数 (σ_{ext}) の波長依存性を調べることができます。波長依存性を示すオングストローム指数 (α) は

$$\sigma_{ext}(\lambda) = \sigma^0_{ext} \lambda^{-\alpha}$$

のように定義され (ここで σ^0_{ext} は定数, λ は波長を示す), 大粒子が多ければオングストローム指数は小さく, 小粒子が多ければオングストローム指数は大きいという関係があります。この研究では実際には誤差の大きい380 nmの消散係数は使わず, 他の3波長の消散係数からオングストローム指数を求めました。また, データは月毎・緯度5度毎に平均しています。

第2図は1985年から99年までの, 高度20 km における消散係数 (黒) とオングストローム指数 (灰色) の時間変化を緯度帯毎に示しています (Hayashida and Horikawa, 2001)。一見して明らかなように, 消散係数とオングストローム係数の間に負相関の関係, すなわち, エアロゾル量が増えれば粒径が大きくなる, という関係のみてとることができます。それぞれの図の下には NASA の研究者の方式 (Yue, 1999) を使って求めた有効半径 (effective radius) を比較のために示していますが, オングストローム指数とよく対応しており, オングストローム指数が粒径のよい指標である



第2図 SAGE IIで観測された消散係数(黒)の時間変化。緯度毎に示す。灰色でオングストローム係数を併せて示す。下のパネルはYue (1999)の方法で求めた粒径分布から決めた有効半径(Hayashida and Horikawa, 2001)。

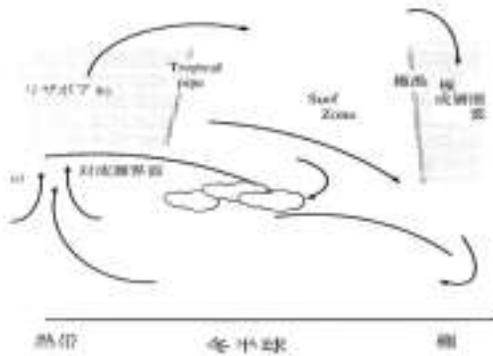
ことを裏付けています。有効半径の計算方法には粒径分布型(mono-modalかbi-modalか)の仮定が必要ですが、オングストローム指数はもっと直接的な指標です¹²。

第2図をみると1990年頃にはそれまでの火山の擾乱がある程度おさまっているようにみえます。1991年のピナツボ火山噴火で再び成層圏は大きな擾乱期となり、その回復に7年くらいを要しています。再びバックグラウンドと呼べる時期がきたのは1999年頃です。ただし、その時にはバックグラウンドレベルは1990年時期よりも下がっています。この2つの時期の比較からHofmann (1990)の指摘したバックグラウンドレベルの増加傾向は明瞭に否定できます。1990年頃はネバデルルイツ火山などの影響が残っており、実際にはバックグラウンド状態と呼べる状態になかったと考えられます。このこと自体はThomason *et al.* (1997)

¹² Yueの方法ではmono-modalとbi-modalのいずれかの仮定が必要なので、mono-modalとbi-modalの両者の場合が描いてあるため線が2重に見える。

がすでに報告していますが、我々の解析は単に消散係数が低い(エアロゾル量が少なくなっている)というだけでなく、粒径も1999年のほうが小さいことを明らかにすることができました。これによって、1990年時点がバックグラウンドと呼べる状況になく、それ以前の火山噴火の影響下にあったことを重ねて明らかにしました。また、バックグラウンド時期においても消散係数(エアロゾル量)はゼロではなく、何らかのソースによってバックグラウンドレベルが維持されていると見るのが妥当であると思います。

一方、緯度高度分布から消散係数とオングストローム指数の相関関係をみてみますと、時系列のみならず空間分布にも同様の負相関関係がみられるということがわかりました。ピナツボ火山で成層圏に発生した粒子は熱帯で大きく成長し、中高緯度にむかって輸送されるにつれてどんどん小さくなる(やせてゆく)という変化をしています。この傾向は火山噴火直後の擾乱期には顕著に見られ、第2図で示したように、ある緯度帯だけを取り出したときの時系列の負相関として現れます。しかし緯度高度分布からは、火山噴火の擾乱



第3図 成層圏エアロゾルのライフサイクル。
Hamill (1997) を元に作成。

が収まった期間についても、空間的な両者の負相関をみることができます。このことはバックグラウンドエアロゾルの一生を考えると、輸送と粒子成長の関係を示しているものとして注目できます¹³。

第3図は米国サンノゼ大学の Hamill (1997) のレビューを基に作成したのですが、成層圏エアロゾルは熱帯圏界面から成層圏に流入したエアロゾルの起源となる気体 (カルボニルサルファイドやジメチルサルファイドなど) と核になるエイトケン粒子 (半径0.1ミクロン以下の微小粒子) から生成され、中緯度で凝結成長しながら極向きに輸送され、最後は極に到達して沈降し対流圏に戻るよう描かれています。ここでは子午面輸送につれて粒子成長が進むように考えられていますが、我々の解析結果では粒子は熱帯で成長し、中・高緯度に進むにつれて、成長すると言うよりはむしろ小さくなってゆくように見えています。現在私の研究グループでは卒業研究生が SAGE II の最新バージョン (version 6) を使って再解析を行っているところです¹⁴ので、近いうちにこの結果をもう少し定量的にまとめることができると思います。成層圏エアロゾルのライフサイクルは私のライフワークとも言える仕事で、これからも地道に取り組んでゆきたいと思っています。

4. 衛星からみた極成層圏雲の発生とその組成推定

第3図で示されるように、成層圏エアロゾルは最終的には極域で沈降して対流圏へ輸送されることになっ

ています。しかし、冬季極域では Polar Stratospheric Cloud (PSC) と呼ばれる雲が発生し、重力落下することが知られており、エアロゾルの下向き輸送は大きくなります。PSC の重力落下によって成層圏が冬季後半から春季にかけてきれいになる効果は “cleansing effect” として知られています。PSC の中に含まれる硝酸や水が大気中から失われることは脱窒・脱水として知られていますが、同時に硫酸も失われているわけで、PSC の落下は物質循環という立場から見て、これらの微量成分すべてにとって大きな下向きのポンプであるといえます。一方、オゾン破壊という観点からみれば、脱窒は活性塩素の不活性化を抑え¹⁵オゾン破壊を促進する大きな要素です。

現在 PSC の組成として考えられているのは Super-cooled Ternary Solution (STS) と呼ばれる硝酸・硫酸・水の3成分の液滴粒子や、硝酸三水和物 (あるいは二水和物) の NAT/NAD¹⁶ です。さらに低温になるといわゆるタイプ2と呼ばれる氷粒子が成長します。STS は硫酸エアロゾルの連続的な熱力学成長から生成されるので粒径は比較的小さく、重力沈降するまでに至るとは考えられません。一方、飛行機観測ではかなり大きな NAT 粒子の存在が報告されており (Fahey *et al.*, 2001), 何らかのメカニズムで選択的な粒子成長が引き起こされて巨大 NAT ができ、重力落下によって脱窒を起こすと考えられています。このように PSC の組成を明らかにすることは脱窒を起こすかどうかを決める重要な要素であり、現在多くの研究者の関心を集めています。

私は ADEOS (Advanced Earth Observing Satellite) に搭載されたセンサーの1つである ILAS (Improved Limb Atmospheric Spectrometer) のサイエンスチームに参加し、エアロゾルの検証解析チーフとして780-nm の消散係数データの検証 (Burton *et al.*, 1999; Hayashida *et al.*, 2000b) とその科学的利用を中心に活動をしてきました (Hayashida *et al.*, 2000a)。この活動を通して PSC の発生頻度とその組成推定、気相中の硝酸量との対応などを調べることができました。この一連の研究は国立環境研究所の ILAS プロジェクトチーム並びにサイエンスチームメンバーとの

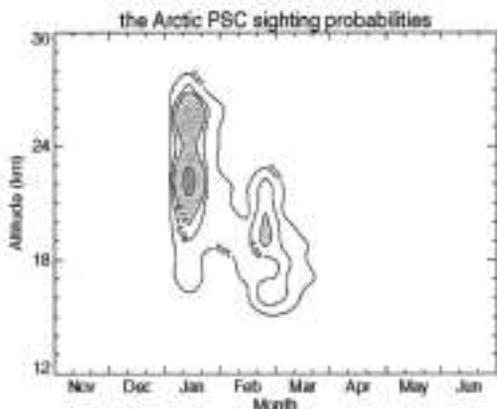
¹⁵ $\text{ClO} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{ClONO}_2$ の反応が抑えられる。

¹⁶ Nitric Acid Trihydrate/Nitric Acid Dihydrate

¹⁷ ILAS の成果については笹野 (2001) に詳しい解説がある。

¹³ 緯度高度分布の図表は未投稿につき割愛しました。

¹⁴ 古谷望, 2002年度卒業論文, 奈良女子大学。庭野政則氏 (京都大学学振特別研究員) の協力による。



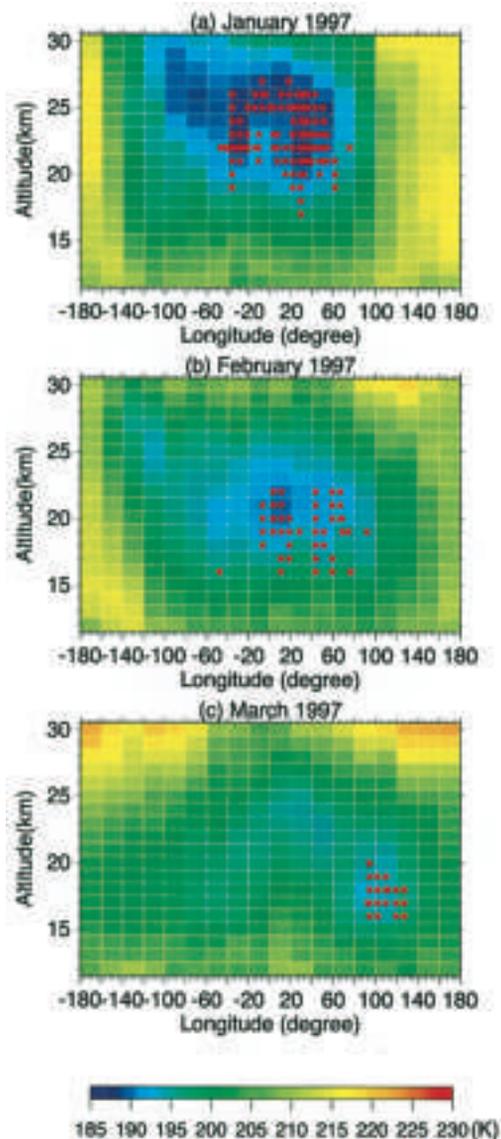
第4図 1997年1月から3月にILASで観測された北極上空のPSCの発生頻度 (Hayashida *et al.*, 2000a).

共同研究であり、ここにあらためて謝意を表します¹⁷。

ILASはSAGE IIと同様太陽掩蔽法の観測センサーで1996年11月から1997年6月まで観測を行い、780 nm 消散係数のほか、オゾン、硝酸、水蒸気など主要微量成分を観測することに成功しました (e.g., Sasano *et al.*, 1998)。ADEOSは極軌道衛星ですので観測点は両半球の高緯度に限られますが、極域の継続的な観測が可能でした。1997年冬季には北極上空でオゾン破壊が顕著におこっていましたので、私たちはオゾン破壊との関連に注目して1997年1月から3月の北極のPSC解析を行いました。

第4図は北極上空の1996・97年の冬季についてPSCの出現頻度の高度分布を描いたものです。また第5図は1997年の1月から3月の各月のPSC発現の全イベントの経度高度分布を赤丸で示したものです (Hayashida *et al.*, 2000a)。この図においては、各月の最低気温分布がカラーで示してあります。この年の極渦、低温領域の発達は始まりはやや遅めですが比較的長く持続したことで知られています。低温の出現領域でPSCが顕著に発生していることがわかります。

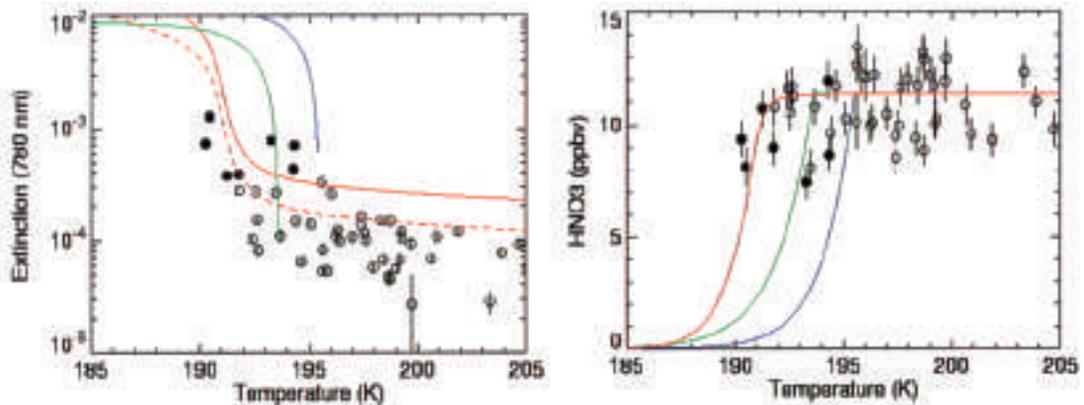
このようにPSCがいつどこでどこに発生していたかについてはある程度の情報が得られた訳ですが、これらのPSCの組成については消散係数の大小だけではわかりません。そこでILASで観測された消散係数と硝酸のデータを気温ごと整理し、熱力学平衡の理論と比較しました (Hayashida *et al.*, 2000b)。STSについては熱力学平衡モデル (Carslaw *et al.*, 1995) から理論的に気温に対する粒子体積の計算を行いました。詳細は省略しますが、与える環境条件など



第5図 1997年1月、2月、3月のILASで観測されたPSCイベントの緯度高度断面図。赤は全PSCイベントを示す。背景は各月の最低気温をUKMO (United Kingdom Meteorological Office) データを元に描いたもの (Hayashida *et al.*, 2000a)。

をできるだけILASの観測値を用いて現実的に与えました¹⁸。NAT/NADについては同様に熱力学平衡の式

¹⁸ 推定に必要な硝酸全量、硫酸全量などをできるだけILASの観測値を用いて現実的に推定する工夫をしている。詳細はHayashida *et al.* (2000a, b) や Saitoh *et al.* (2002) などを参照されたい。

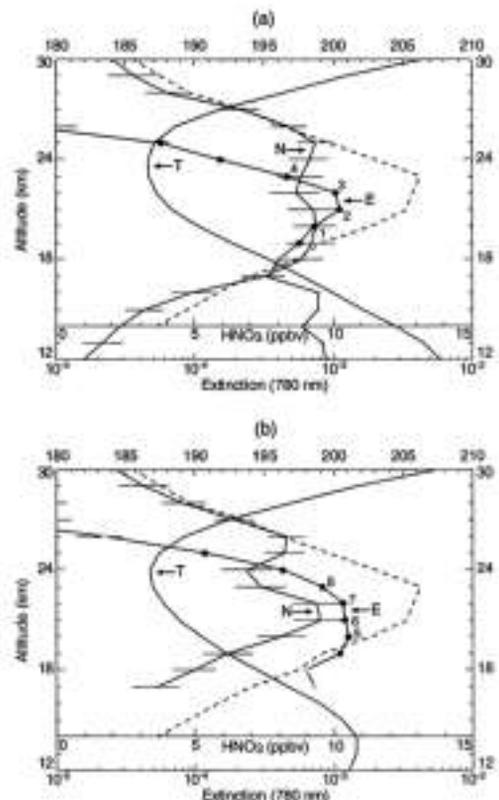


第6図 1997年1月中旬に観測された780-nm 消散係数(左)と気相中硝酸(右)の高度の20 kmでの散布図。赤線はSTS, 緑はNAD, 青はNATの粒子成長の理論的予測曲線を気温に対して描いたもの。赤線には実線と破線が描いてあるが、体積を消散係数に換算する際の粒径分布の仮定の違いである。低温では実線、高温(バックグラウンド条件下)では破線で解釈されるべきである(詳細は Hayashida *et al.*, 2000 bを参照)。黒丸はPSC イベント, 白丸はバックグラウンドエアロゾルに対応している。

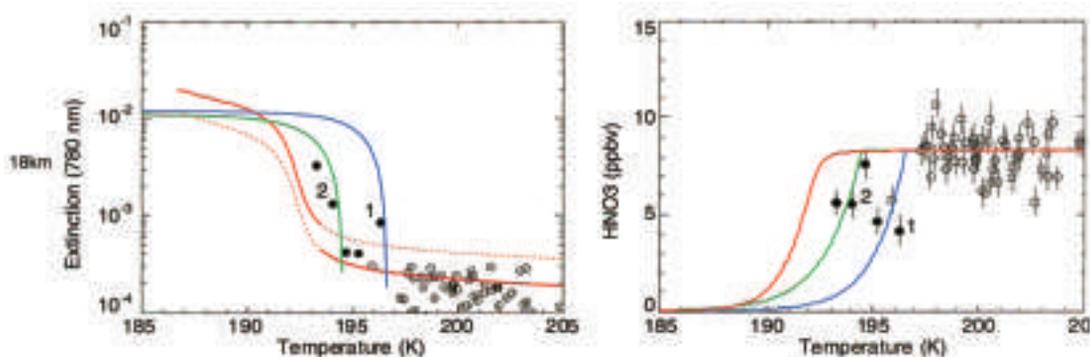
を与え(Hanson and Mauersberger, 1988)て理論的な値を求めました。細かいところでSTSの場合とやや手法が異なりますが、基本的な考えは同じです。このようにして各高度における気温と粒子成長の関係および気相中の硫酸濃度との関係を、第6図のように組成ごとに線で表すことができます。図中、赤はSTS, 緑はNAD, 青はNATをそれぞれ示しています。観測データをこの理論曲線と比較することで、観測されたPSCの組成を推定できます(Hayashida *et al.*, 2000 a, b; Saitoh *et al.*, 2002)。

1997年の1月に観測されたPSCの多くは、このような解析によってその組成がSTSであったであろうと推定できました。そのようなPSCプロファイルを見てみると第7図のように消散係数の増大している高度で気相中の硝酸濃度が減少するという明瞭な対応がしばしばみられ、気相中の硝酸が粒子中に取り込まれていることが示されました。

このようにPSCの組成解析を進めていくうち、一方で1月の結果の中にはSTSではなく氷粒子があったと指摘する研究がILASサイエンスチームのメンバーである米国大気科学研究センター(NCAR)のPan博士から出されました(Pan *et al.*, 2001)。彼女はILASの水蒸気データは北極の1月後半から顕著な脱水を示しており、脱水の契機になったのは1月後半に発生した氷粒子であろうという推論を導きました。しかし、ILASの水蒸気データには、PSCイベントの時には大きなバイアスが含まれることが知られており(Yokota



第7図 PSC イベントの高度プロファイルの事例。780-nm 消散係数と硝酸濃度を併せて描いた。T: 気温, N: 硝酸, E: 消散係数, (a)1997年1月19日(65.8°N, 21.6°E), (b)1997年1月20日(65.9°N, 28.9°E), (Saitoh *et al.*, 2002)。



第8図 1997年3月上旬に高度18 kmで観測された図6と同様の図で、左は780-nm 消散係数、右は気相中硝酸を示す。

et al., 2002), 取り扱いには十分な注意が必要です。私は2001年9月に NCAR を訪問し、彼女と饒々の議論を展開したのですが、結局1月にみられた PSC イベントのいくつかは STS と氷との mixture であったであろう、という結論に落ち着きました。彼女が発表した論文 (Pan *et al.*, 2001) は北極で脱室に先だって脱水が観測されたという論議を呼ぶ結果を導いています。ここで内容の詳細を議論することはできませんが、これに関する一連の討議の中で、我々は観測データの見方や研究に対する姿勢について多くを学ぶことができましたと感じています。

一方で硝酸を解析したグループの結果 (Kondo *et al.*, 2000; Irie *et al.*, 2002) では、2月中旬から顕著な脱室があったことが明らかにされています。このような脱室が引き起こされたのは、NAT などの固体粒子が成長し、重力落下によって大気中から除かれたためではないかと考えられます。第8図は2月中旬に得られた先ほどと同様の気温と消散係数の散布図、および気温と気相中の硝酸濃度の散布図です。この図をみると明らかにさきほどの1月中旬とは様相が異なり、NAD/NAT の形成が示されています。これらの気温履歴を調べてみますと、いわゆる氷の飽和温度 (Tice) より低温にはなっておらず、氷を核とした不均一核生成 (heterogeneous nucleation) の可能性は否定できません。さらに調べてみますと NAT 飽和温度をやや下回るあたりの低温を比較的長時間にわたって経験していたことがわかりました。Tabazadeh *et al.* (2001) は NAT が液滴粒子から均一核生成 (homogeneous nucleation) で NAT に成長するという理論を示しています。この解析で得られた結果はこの理論と整合しており、均一核生成による NAT の成長を支持している

ようにみられます。ただし我々の解析後、Tabazadeh *et al.* (2001) 均一核生成理論に反論 (Knopf *et al.*, 2002) が出来た、これに対する新たな理論も提唱されるなど (Tabazadeh *et al.* 2002), NAT/NAD 生成過程は未解決の問題として現在も論議をよんでいます。

PSC の組成は特に脱室の進行状況と関連して重要であり、NAT の生成は結果としてオゾン破壊量を左右します。ILAS のオゾンデータから Sasano *et al.* (2000) や Terao *et al.* (2002) はオゾンの化学的破壊量の推定を行っており、PSC や脱室の進行状況との比較解析が現在も進められています。我々のグループではデータ解析だけでなく化学反応モデルを使った研究も開始しています¹⁹。今後は化学反応モデルと衛星データ解析を総合的に進めることで、PSC の発生と脱室、それらの化学的オゾン破壊過程への影響評価を行うことができると考えています。

5. おわりに

以上が私がこれまで行ってきた主な研究成果です。奈良女子大学での研究は、研究室の学生達と共同して行ったものです。今春 (2002年) 化学モデルの研究で博士号をとった香川晶子さん、PSC の解析研究をしている博士後期課程の斎藤尚子さん、雨宮百合子さん、博士前期課程の河瀬祥子さん、蒲生京香さん、芝田由香里さん、池田奈生さんや卒業研究生、SAGE II の解

¹⁹ Kagawa, A. and S. Hayashida, Analysis of ozone loss in the Arctic stratosphere during the late winter and spring of 1997, using the Chemical Species Mapping on Trajectories (CSMT) technique, *J. Geophys. Res.* 2003.

析を手がけた堀川真理子さんら卒業生の多くがこれら一連の研究を支えてきました。今日の受賞は彼女たちと一緒に受けた賞であることを申し添えたいと思います。

また私がここまでやってこれたのは大学院の指導教官である岩坂泰信先生、気象学会会長の廣田 勇先生、笹野泰弘さんをはじめとする国立環境研究所のライダグループ、ILAS プロジェクトチーム、そして海外の研究者も含めた ILAS サイエンスチームの方々、EORC の小川利紘先生、そしてお一人お一人のお名前を書き連ねることはとてもできませんが、数え切れない多くの暖かな、本当に暖かな皆様の支えがあつてのことです。心から感謝いたします。ありがとうございました。

参 考 文 献

- Burton, S. P., L. W. Thomason, Y. Sasano and S. Hayashida, 1999 : Comparison of aerosol extinction measurements by ILAS and SAGE II, *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 1719-1722.
- Carlsaw, K. S., B. Luo and T. Peter, 1995 : An analytic expression for the composition of aqueous $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4$ stratospheric aerosols including gas phase removal of HNO_3 , *Geophys. Res. Lett.*, **22**, 1877-1880.
- Hamill, P., E. J. Jensen, P. B. Russell, J. J. Bauman, 1997 : The Life Cycle of Stratospheric Aerosol Particles, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **78**, 833-838.
- Hanson, D., and K. Mauersberger, 1988 : Laboratory studies of the nitric acid trihydrate : Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 855-858.
- 林田佐智子, 1988 : エルチチョン火山噴火に関連した成層圏エアロゾルの研究, *天気*, **35**, 215-230.
- Hayashida, S., Y. Iwasaka and A. Kobayashi, 1984 : Lidar measurements of stratospheric aerosol content and depolarization ratio after the eruption of El Chichon volcano : measurements at Nagoya, Japan., *Geophysical International, Spec. Issue*, **23-2**, 277-288.
- Hayashida, S., Y. Sasano and Y. Iikura, 1991 : Volcanic disturbances in the stratospheric aerosol layer over Tsukuba, Japan, observed by the National Institute for Environmental Studies Lidar from 1982 through 1986, *J. Geophys. Res.* **96**, 15469-15478.
- Hayashida, S., and Y. Sasano, 1993 : Stratospheric aerosol change in the early stage of volcanic disturbance by the Pinatubo eruption observed over Tsukuba, Japan, *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 575-578.
- Hayashida, S., N. Saitoh, A. Kagawa, T. Yokota, M. Suzuki, H. Nakajima and Y. Sasano, 2000a : Arctic polar stratospheric clouds observed with the improved limb atmospheric spectrometer during winter 1996/1997, *J. Geophys. Res.* **105**, 24715-24730.
- Hayashida, S., N. Saitoh, M. Horikawa, Y. Amemiya, C. Brogniez, T. Deshler and Y. Sasano, 2000b : Stratospheric background aerosols and polar stratospheric clouds observed with satellite sensors-Inference of particle composition and sulfate amount-, *Soc. Photo Opt. Instrum. Eng.*, **4150**, 76-86.
- Hayashida, S. and M. Horikawa, 2001 : Anti-correlation between the extinction and the Ångström parameter of the stratospheric aerosol based on the multiple wavelength measurements with SAGE II - as a characteristic of the decay period following major volcanic eruptions-, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 403-406.
- Hitchman, M. H., M. McKay and C. R. Trepte, 1994 : A climatology of stratospheric aerosol, *J. Geophys. Res.*, **99**, 20689-20700.
- Hofmann, D. J., 1990 : Increase in the stratospheric background sulfuric acid aerosol mass in the past 10 years, *Science*, **248**, 996-1000.
- Hofmann, D. J., 1991 : Aircraft sulphur emissions, *Nature* **349**, 659.
- Irie, H., M. Koike, Y. Kondo, G. E. Bodeker, M. Y. Danilin and Y. Sasano, 2001 : Redistribution of nitric acid in the Arctic lower stratosphere during the winter of 1996-97, *J. Geophys. Res.*, **106**, 23139-23150.
- Knopf, D. A., T. Koop, B. P. Luo, U. G. Weers and T. Peter, 2002 : Homogeneous nucleation of NAD and NAT in liquid stratospheric aerosols : insufficient to explain denitrification, *Atmos. Chem. Phys.*, **2**, 207-214.
- Kondo, Y., H. Irie, M. Koike and G. E. Bodeker, 2000 : Denitrification and nitrification in the Arctic stratosphere during the winter of 1996-1997, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 337-340.
- Pan, L. L., W. J. Randel, H. Nakajima, S. T. Massie, H. Kanzawa, Y. Sasano, T. Yokota, T. Sugita, S. Hayashida and S. Oshchepkov, 2002 : Satellite Observation of Dehydration in the Arctic Polar Stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, (29), 2001 GL014147.

- Sasano, Y., M. Suzuki, T. Yokota, H. Kanzawa, H. Nakajima, H. Nakane, M. Shiotani, Y. Kondo and S. Hayashida, 1998 : Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) : Validation and preliminary scientific results, *Optical remote sensing of the Atmosphere and Clouds, Soc. Photo Opt. Instrum. Eng.*, **3561**, 61-71.
- Sasano, Y., Y. Terao, H. L. Tanaka, T. Yasunari, H. Kanzawa, H. Nakajima, T. Yokota, H. Nakane, S. Hayashida and N. Saitoh, 2000 : ILAS observations of chemical ozone loss in the Arctic vortex during early spring 1997, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 213-216.
- 笹野泰弘, 2001 : 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**, 452-460.
- Tabazadeh, A., E. J. Jensen, O. B. Toon, K. Drdla and M. R. Schoeberl, 2001 : Role of the stratospheric polar freezing belt in denitrification, *Science*, **291**, 2591-2594.
- Tabazadeh, A., Y. S. Djikaev, P. Hamill and H. Reiss, 2002 : Laboratory evidence for surface nucleation of solid polar stratospheric cloud particles, *J. Phys. Chem.*, **106**, 10238-10246.
- Terao, Y., Y. Sasano, H. Nakajima, H. L. Tanaka and T. Yasunari, 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.*, doi : 10. 1029/2001JD000615.
- Thomason, L. W., L. R. Poole and T. Deshler, 1997 : A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from stratospheric aerosol and gas experiment II measurements : 1984-1994, *J. Geophys. Res.*, **102**, 8967-8976.
- Yokota, T., Nakajima H., Sugita, T., Tsubaki H., Itou Y., Kaji M., Suzuki M., Kanzawa H., Park J. H. and Sasano Y., 2002 : Improved Limb Atmospheric Spectro-meter (ILAS) data retrieval algorithm for Version 5.20 gas profile products, *J. Geophys. Res.*, **107**, D24, 8216, 10.1029/2001JD000628.
- Yue, G. K., 1999 : A new approach to retrieval of aerosol size distributions and integral properties from SAGE II aerosol extinction spectra, *J. Geophys. Res.*, **104**, 27491-27506.

Study on Stratospheric Aerosol and Ozone with Optical Remote Sensing
—Memorial lecture of Horiuchi Award in 2002—

Sachiko Hayashida

Faculty of Science, Nara Women's University, Kita-uoya Nishi-machi, Nara, 630-8263 Japan.

(Received 6 January 2003 ; Accepted 21 April 2003)
