

高高度気球BT15による酸素原子・オゾン同時測定

竹川 暢之*・岩上 直幹*・岡林 昌宏**

Simultaneous Measurement of Atomic Oxygen and Ozone Using a High Altitude Balloon BT15

By

Nobuyuki TAKEGAWA*, Naomoto IWAGAMI* and Masahiro OKABAYASHI**

Abstract: We have developed a balloon-borne resonance fluorescence instrument for in-situ measurement of atomic oxygen ($O(^3P)$) in the upper stratosphere. Performance of the instrument was characterized by numerical simulations and laboratory tests. A simultaneous measurement of $O(^3P)$ and ozone (O_3) was carried out using a high altitude balloon BT15, launched from Sanriku (39°N, 142°E), Japan on 9 September 1997. O_3 was measured by a balloon-borne optical sonde developed by Tohoku university. The measured $[O(^3P)]/[O_3]$ ratios are consistent with the calculated values within experimental uncertainties, although the gradient of measured $[O(^3P)]/[O_3]$ ratio profile is different from the calculated. However, a detailed discussion about the discrepancy could not be made due to the insufficient precision and accuracy in the $O(^3P)$ measurement.

概 要

我々は、上部成層圏において酸素原子 $O(^3P)$ の測定を行うために、共鳴蛍光法による気球搭載型 $O(^3P)$ 測定器を開発した。この方法は絶対測定であり、実験室における高精度の較正実験が要求される。我々は、数値シミュレーション計算および室内実験を基に測定器の性能を詳細に調べた。高高度気球 BT15 による $O(^3P)$ とオゾン(O_3)の同時測定は、1997年9月9日正午前後に宇宙科学研究所三陸大気観測所において行われた。 O_3 は同じ気球に搭載された東北大学の光学オゾンゾンデにより測定された。高度 38-44km における測定値とモデル値の比較を行ったところ、両者は誤差の範囲内ではほぼ一致していたが、 $[O(^3P)]/[O_3]$ 比の測定値の傾きとモデル計算値の傾きの間には違いが見られた。しかしながら、 $O(^3P)$ 測定値の精度および確度は充分なものではなく、この傾きの違いに関して詳細な議論を行うまでには至らなかった。

重要語: 酸素原子, オゾン, 共鳴蛍光法, 成層圏光化学

* 東京大学
** 東北大学

1. はじめに

上部成層圏～中間圏(高度 35km～80km)において、酸素原子 $O(^3P)$ はオゾン(O_3)に関わる光化学反応系において重要な役割を果たしている。しかしながら、この領域における $O(^3P)$ の測定は極めて少なく、過去の測定例としては、Harvard 大学の J.G.Anderson らが上部成層圏(～43km)で行った数例しか存在しない(Anderson, 1975; Anderson, 1980)。その理由としては、測定自体の技術的な難しさ以外に、この領域が飛翔体による直接測定の難しい高度範囲であることが挙げられる。

この高度領域では、 $O(^3P)$ と O_3 の交換反応



が他の反応に比べて極めて速いため、定常状態では $O(^3P)$ 数密度と O_3 数密度の間に、

$$\frac{[O(^3P)]}{[O_3]} = \frac{J_{O_3}}{k_{O+O_2}[O_2][M]} \quad (1.1)$$

という簡単な関係が成り立つ。しかしながら、近年、JPL(ジェット推進研究所)が刊行しているデータブック(DeMore *et al.*, 1997)で推奨されている数値を用いて計算した式(1.1)の右辺の値は過大評価されており、これが上部成層圏～中間圏における O_3 消滅率の過大評価につながっている、という説が提唱されている(Eluszkiewicz and Allen, 1993; Siskind *et al.*, 1995)。これは、比較的単純と考えられている上部成層圏～中間圏の O_3 光化学に関する理解が、まだ不完全であることを示唆している。そのような意味で、 $O(^3P)$ と O_3 の同時測定を行うことによって式(1.1)の意味を再検討することは、 O_3 光化学に関する我々の理解を深める上で意義深い研究であるものと考えられる。

2. 酸素原子測定器

2.1 測定器の概要

我々東京大学理学部のグループでは、J.G.Anderson らと同じ共鳴蛍光法を用いて、気球搭載型の $O(^3P)$ 測定器を開発した。図1に示すように、共鳴線ランプ(後述)という特殊な光源から 130nm($^3S \rightarrow ^3P$)の共鳴線を大気に照射し、 $O(^3P)$ による共鳴蛍光を光電子増倍管(PMT)で測定する。PMTの光電面にはヨウ化セシウム(CsI)を用いており、近紫外光および可視光は感じない。しかしながら高度 40km 付近では太陽の中間紫外光のレイリー散乱が無視できないため、それを遮断するための遮光板を取りつけ、さらに同期検波を行って背景光成分を除去する。すなわちランプを 128Hz で点滅させ、共鳴蛍光+背景光のカウント数(点灯時)と、背景光のカウント数(消灯時)の差を取る。この遮光板はまた、光学系の汚染防止の蓋としても利用する。今回の実験では、高高度気球 BT15 によって高度 45km 付近まで到達することを目的としているため、電源を含めた総重量は約 6.0kg に制限されている。

2.2 共鳴線ランプ

共鳴線ランプについて詳しくは、Zuber (1989)にまとめられている。ここではその内容について簡単に説明する。共鳴線ランプは、放電により特定の原子・分子の共鳴線を強く放射するようなランプである。今回の実験で用いられる $O(^3P)$ の共鳴線ランプはカナダの Resonance 社製のもので、放電管内に封入された過マンガン酸カリウム($KMnO_4$)の粉末をヒーターで加熱して O 原子を遊離させ、高周波放電により共鳴放射を得る仕組みになっている。

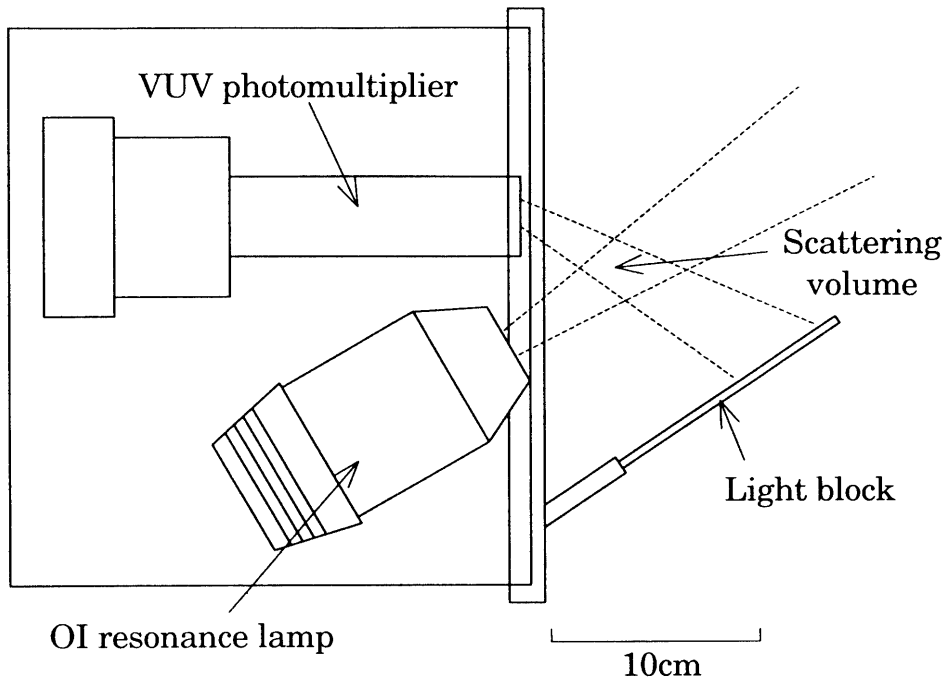


図1. O(³P)測定器の構成.

O(³P_J)(J=0,1,2)の130.5nmの共鳴線は3本の輝線から成る. Jenkins *et al.* (1985)によれば, 励起過程の違いによって共鳴放射を起こすO(³S₁)の約15%が5,000(±500)Kの並進温度を持ち, 残りの85%が350(±30)Kの並進温度になることが知られている. このため, 放射される共鳴線は2つの異なるドップラー幅をもつスペクトルとなる. Jenkinsのモデルによれば, 各輝線に対して波数 ν から $\nu+d\nu$ の間の放射スペクトル $I_j(\nu)d\nu$ [photons/s]は, 単一散乱による自己減衰効果を考慮して,

$$I_j(\nu)d\nu = \frac{1 - \exp(-\sigma_j^0(\nu)N_j^0L)}{\sigma_j^0(\nu)N_j^0} \times \frac{N}{\sqrt{\pi}} \frac{g_j}{\sum g_j} \left[\frac{B}{\Delta\nu_{Cj}} \exp\left\{-\left(\frac{\nu - \nu_{0j}}{\Delta\nu_{Cj}}\right)^2\right\} + \frac{1-B}{\Delta\nu_{Dj}} \exp\left\{-\left(\frac{\nu - \nu_{0j}}{\Delta\nu_{Dj}}\right)^2\right\} \right] d\nu \quad (2.1)$$

と表される. ここに,

N : 単位時間・単位長さ当たりの遷移原子数	$g_j = 2J+1$: 統計重率
B : 温度5000K($\equiv T_c$)をもつ原子の割合(0.15)	$1-B$: 温度350K($\equiv T_D$)をもつ原子の割合(0.85)
ν_{0j} : 各輝線の中心波数	$\Delta\nu_{Cj}, \Delta\nu_{Dj}$: 各輝線,各温度のドップラー半幅
L : ランプ発光部長さ(~2cm)	

(2.2)

である. また, N_j^0 はランプ内のO(³P_J)数密度であり, ランプ内のO(³P)の総数を N^0 として,

$$N_j^0 = \frac{r_j^D}{\sum r_j^D} N^0 \quad (2.3)$$

$$r_J^D = g_J \exp\left(-\frac{\Delta E_J}{k_B T_D}\right) \quad (2.4)$$

で与えられる。また、 $\sigma_J^0(\nu)$ [cm²]は各輝線の吸収断面積で、

$$\sigma_J^0(\nu) = \frac{\pi e^2}{mc^2} f \frac{1}{\Delta \nu_J} \exp\left[-\left(\frac{\nu - \nu_{0J}}{\Delta \nu_J}\right)^2\right] = (2.498 \times 10^{-14}) \frac{1}{\Delta \nu_J} \exp\left[-\left(\frac{\nu - \nu_{0J}}{\Delta \nu_J}\right)^2\right] \quad (2.5)$$

である。ただし、 k_B はボルツマン定数、 e は電気素量、 m は電子の質量、 c は真空中の光速、 f は共鳴線の振動子強度である。なお、これらの計算に使用する各定数の数値は以下の通りである。

$$\begin{aligned} \nu_{0J} &= 76567.9, 76636.6, 76794.9 \text{ cm}^{-1} \quad (J=0,1,2) \\ \Delta \nu_J &= (1.075 \times 10^{-7}) \nu_{0J} \sqrt{T} \text{ cm}^{-1} \\ \Delta E_J &= 226.5, 158.5, 0 \text{ cm}^{-1} \quad (J=0,1,2) \\ f &= 0.053 \pm 0.003 \end{aligned} \quad (2.6)$$

測定器の較正実験を行うためには、 $J=0,1,2$ の各輝線の強度比を知る必要がある。この強度比を精確に知るためには、各輝線を分離できるような高分解能の真空紫外分光器が必要である。このため、共鳴線ランプのスペクトル測定を高エネルギー加速器研究機構所有の真空紫外分光器(6VOPE)を用いて行った。その測定スペクトルを図2に示す。6VOPEは直入射型の回折格子分光器で、130nm付近では最大で0.8pmもの波長分解能を持つ。しかし、ランプの明るさが不足していたためにスリット幅を限界(最大分解能が得られる幅)よりかなり広げて測定した。したがって、図2の測定スペクトルの形は装置関数を表すことになる。

いま、各輝線の積分強度 s_J ($J=0,1,2$)を、

$$s_J = \int_{\text{line}} I_J(\nu) d\nu \quad (2.7)$$

と定義すると、測定値から求めた輝線強度比は、

$$s_0 : s_1 : s_2 = 1 : 2.86(\pm 0.02) : 4.08(\pm 0.03) \quad (2.8)$$

である。ランプ内のO(³P)コラム量 N^0L をパラメータとして、(2.8)の輝線強度比を再現するように最小2乗法で決めた理論スペクトルの輝線強度比は、

$$s_0^{\text{cal}} : s_1^{\text{cal}} : s_2^{\text{cal}} = 1 : 2.84 : 4.08 \quad (2.9)$$

となり、測定値との間にわずかに違いがあるが、これは測定誤差の範囲内である。この違いが較正結果に及ぼす影響は1%以下である。

較正実験および気球実験では、波長130.5nmのスペクトル強度は、共鳴線ランプから同時に放射される波長777.4nmの光によってモニターする。ただし、ランプのフッ化マグネシウム(MgF₂)窓が汚染された場合には、実際に放射される強度に関して正しいモニターを与えないために、光学窓の扱いには特に注意を要する。130.5nmと777.4nmの定量的な関係は単純ではないが、Zuber(1989)によれば、KMnO₄の温度が130°C~140°C(通常の使用範囲)では両者の関係はほぼ線型であり、777.4nmの強度が1%変化すると、130.5nmの強度は約2%変化する。較正実験ではKMnO₄のヒーター温度も同時にモニターしたが、波長777.4nmの強度、ヒーター温度ともにドリ

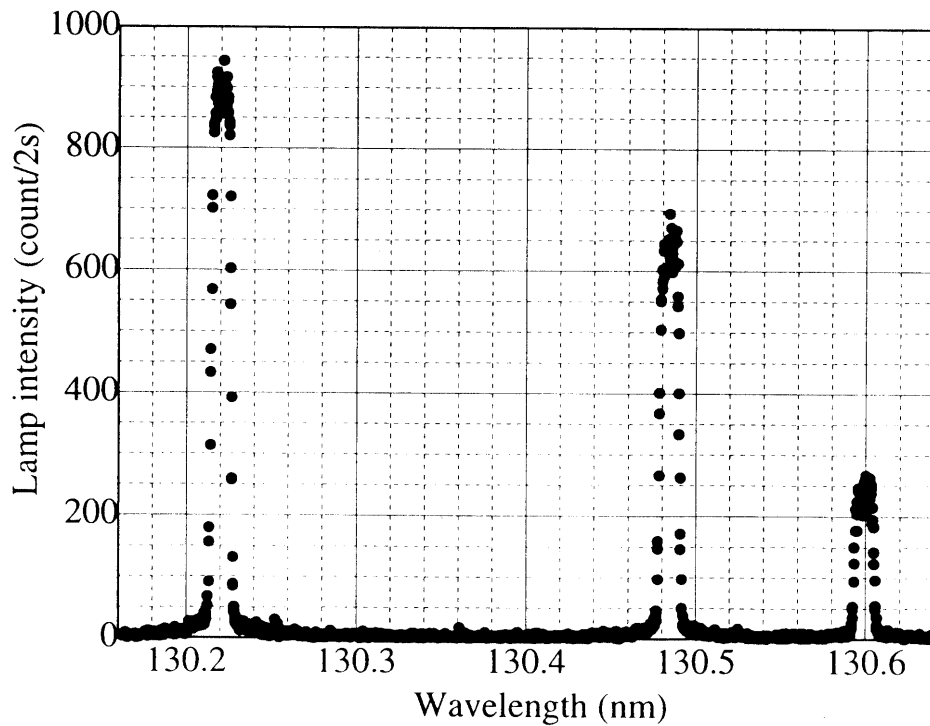


図 2. 共鳴線ランプのスペクトル.

フトは 1%以下であった.

2.3 測定器出力のシミュレーション

O_2 の吸収および $O(^3P)$ の自己吸収を考慮すると, 測定器の理論出力(共鳴蛍光カウント数) $C_{cal}[\text{cps}]$ は,

$$C_{cal} = A \times \iiint_D dx dy dz \frac{1}{L^2} \frac{1}{L'^2} \sum_{J=0}^2 \int_{\text{line}} n_J^O \sigma_J^O(\nu) I_J(\nu) \tau_J^O(\nu) \tau^{O_2}(\nu) d\nu \quad (2.10)$$

$$\tau_J^O(\nu) = \exp\left[-n_J^O \sigma_J^O(\nu)(L+L')\right], \quad \tau^{O_2}(\nu) = \exp\left[-n^{O_2} \sigma^{O_2}(\nu)(L+L')\right] \quad (2.11)$$

と表すことができる. ただし,

$$\begin{aligned} L &: \text{散乱領域とランプとの距離} & L' &: \text{散乱領域と PMT との距離} \\ n_J^O &: \text{散乱領域の } O(^3P_J) \text{ 数密度} & n^{O_2} &: \text{散乱領域の } O_2 \text{ 分子数密度} \\ \sigma^{O_2} &: O_2 \text{ 分子の吸収断面積} & D &: \text{散乱体積 (} dx dy dz \text{ は微小体積要素)} \end{aligned} \quad (2.12)$$

であり, その他の文字の定義は 2.2 節に従うものとする. また, A は検出器の有効面積や窓の透過率などを含む定数であり, 理論計算だけで正確に知ることは事実上不可能である. そこで, 実際に $O(^3P)$ を生成して較正実験を行い, $O(^3P)$ 数密度と共鳴蛍光強度の関係を調べる必要がある. 実験室内で $O(^3P)$ を生成する方法には 2 通り考えられる. 1 つは放電によって O_2 を直接解離させる方法であり, $O(^3P)$ 数密度を決定するために吸光法などを用いる必要がある. もう 1 つは, 放電によって N 原子を発生させ, NO 標準ガスを付加して $N+NO \rightarrow N_2+O$ の反応により既知量の $O(^3P)$ を発生させる方法である. 後に示すように今回の実験では前者の方法を用いる.

2.4 較正実験

較正実験は宇宙科学研究所の 600mm ϕ 真空チャンバーを用いて行った. 図 3 は較正装置の略図である. O_2 と Ar の混合気体に高周波放電を施して $O(^3P)$ を生成し, $O(^3P)$ 数密度と共鳴蛍光強度との関係を調べた. 真空槽

内の $O(^3P)$ 数密度は、別系統の共鳴線ランプと VUV 検出器(phototube)を用いた吸光法により決定した。すなわち、 $O(^3P)$ による吸収がないときの VUV 検出器出力を V_0 とし、吸収があるときの出力を V_1 とすると、

$$\frac{V_1}{V_0} = \frac{\sum_{J=0}^2 \int_{\text{line}} I_J(\nu) \exp(-n_J^O \sigma_J^O(\nu) l) d\nu}{\sum_{J=0}^2 \int_{\text{line}} I_J(\nu) d\nu} \quad (2.13)$$

の関係が成り立つ。ただし、 l は光路長であり、その他の文字の定義は 2.2 および 2.3 節に従うものとする。なお、光路上の $O(^3P)$ の一様性に関しては、以前に行われたロケット測定での較正実験において確かめられている(Kita *et al.*, 1996)。

較正実験は圧力 0.1 Torr、温度 295 K の条件下で行われた。このときの $O(^3P)$ 数密度と共鳴蛍光強度の関係を図 4 に示す。実線は測定器の出力曲線 C_{cal} であり、較正データ(黒丸)にフィットすることにより定数 A を決定した。さらに、式(2.10)に CIRA86 の圧力および温度を適用することにより得られた、測定器の感度係数の高度変化を図 5 に示す。高度 40 km における感度係数は約 1.7×10^{-7} cps/(atoms \cdot cm $^{-3}$) であるから、この高度での $O(^3P)$ 数密度を 1×10^9 cm $^{-3}$ とすると、蛍光カウント数は 170 cps 程度となることが分かる。

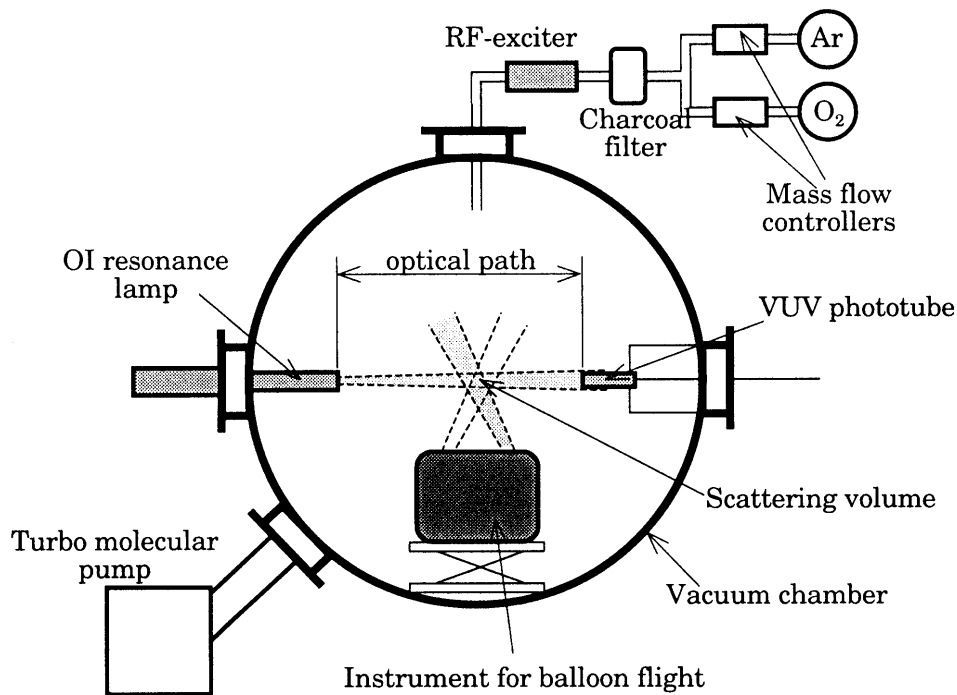


図 3. $O(^3P)$ 測定器の較正装置.

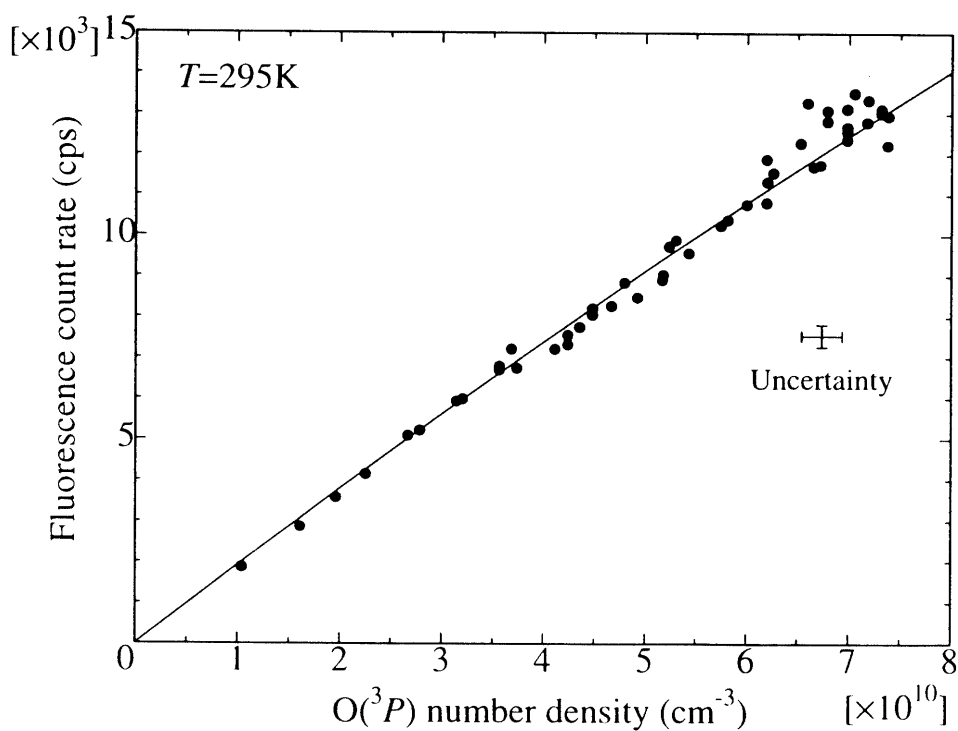


図4. 測定器の較正曲線(圧力 0.1Torr, 温度 295K).

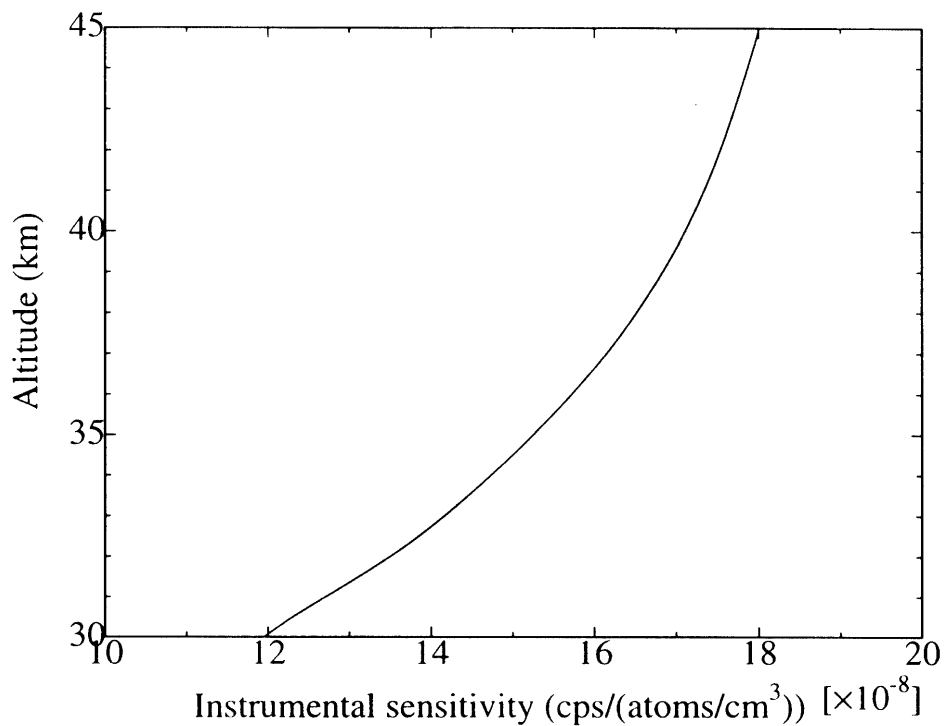


図5. 測定器の感度係数の高度変化.

3. 気球測定

3.1 測定の概要

高高度気球 BT15 (15,000m³) による測定は、1997年9月9日に宇宙科学研究所三陸大気球観測所 (39.16°N, 141.83°E) において行われた。放球時刻は10:50JST で、約5 m/s の一定速度で上昇した後、時刻13:00JST に最高高度43.7km に到達した。この間、有効なデータが得られたのは12:30~13:00(高度38~43km の上昇時)および13:00~13:40(高度43.7km の水平浮遊時)であった。なお、上昇時にデータを得る場合には、気球が観測領域に及ぼす影響が考えられるが、これに関しては3.3節で述べる。

また、我々の酸素原子測定器の下方には東北大学の光学式オゾンゾンデ(岡林 他, 1995)が吊り下げられ、O₃ の同時観測を行った。なお、光学ゾンデは原理的には遠隔測定であるが、気球の上昇を利用してO₃ コラム量の高度方向差分を得ることによりO₃ 数密度を求めるので、今回の測定の条件下(太陽天頂角~38°)では、測定領域は直接測定に近いと考えてよい。

3.2 O(³P)とO₃の測定結果

気球上昇時に求められた O(³P)数密度の高度分布(38km~44km)を図6に示す。黒丸に付属している誤差棒はランダム誤差(precision)を表し、右脇に記してある誤差棒は系統誤差(accuracy)を表す。ランダム誤差の主な要因は、背景光すなわち太陽の中間紫外光のレイリー散乱であり、系統誤差の主な要因は、較正誤差およびバックグラウンドの補正誤差である。ここで言うバックグラウンドとは、同期検波で除去できない成分、すなわち共鳴線ランプ光のレイリー散乱、およびランプ光によるO₂の光解離の影響である。これらの誤差は光学系の改良によって改善することができるはずであり、今後の課題である。

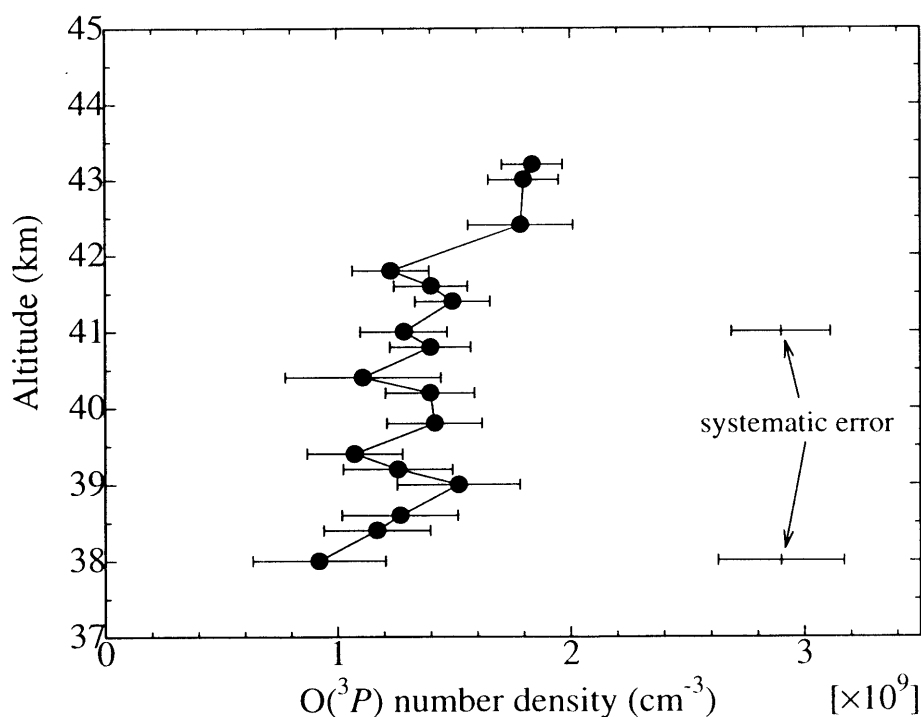


図6. 気球観測により得られた高度38~44kmにおけるO(³P)の高度分布。太陽天頂角は約38°

光学オゾンゾンデによって導出された O_3 の高度分布を図7に示す. この高度範囲における光学ゾンデの誤差は10%程度である. 図6の $O(^3P)$, 図7の O_3 の高度分布を比較すると, 高度40km付近を除いて凹凸構造がほぼ対応していることが分かる.

3.3 測定値とモデル値の比較

$[O(^3P)]/[O_3]$ の測定値を r_{obs} とし, モデル計算値を r_{model} とする. すなわち,

$$r_{obs} = \frac{[O(^3P)]_{obs}}{[O_3]_{obs}}, \quad r_{model} = \frac{J_{O_3}}{k_{O+O_2}[O_2][M]} \quad (3.1)$$

とおく. ただし, $[O(^3P)]_{obs}$, $[O_3]_{obs}$ はそれぞれ $[O(^3P)]$, $[O_3]$ の測定値を表すものとする. これらを比較したものを図8に示す. ただし, 図8で黒丸に付属している誤差棒は, 95%の信頼限界($\sim 2\sigma$)を表している. また, r_{model} の光解離係数 J_{O_3} および反応速度係数 k_{O+O_2} の計算には JPL97 のデータ (DeMore *et al.*, 1997) を用いており, 温度 T , $[O_2]$, $[M]$ の値は CIRA86(40°N, 9月)のデータを用いている.

図8から分かるように, r_{obs} と r_{model} は誤差の範囲内ではほぼ一致しているものの, 高度40km以下では r_{obs} は r_{model} に対して系統的に大きく, 高度41km以上では逆に小さい, すなわち, r_{obs} の傾き(高度に対する変化率)は r_{model} の傾きに比べて小さい傾向がある. そこで, r_{model} を可能な範囲(J_{O_3} や k_{O+O_2} の不確定性の範囲)でいろいろ変えてみたが, r_{obs} の傾きを再現することはできなかった. このことは, (もし O_3 の測定値に系統誤差がないとすれば) $O(^3P)$ の測定値の傾きが予想される値より小さい(上空ほど $O(^3P)$ が少ない)ことを表している.

この原因としては, 式(1.1)の理解に何らかの誤りがある可能性も考えられるが, 今回の測定結果からそれを積極的に主張することは難しい. 測定時の条件を考慮すると, 測定自体に問題があった可能性も考えられる. すなわち, 光学窓の汚染に伴う透過率の低下により蛍光強度が減少し, $O(^3P)$ 数密度を本来より過小評価してしまった可能性がまず考えられる. あるいは, 気圧の低下とともに気球表面からの放出ガス(outgas)が増加し, それが $O(^3P)$ と一部反応したために, 上空ほど $O(^3P)$ が少なく観測されてしまった可能性がある. 今回の実験では, なるべく高高度で測定を行うことを最重要に考え, パラシュート落下時の測定ではなく上昇時の測定を選択したが, これは必ずしも適切な選択ではなかった. 今後は, より最適な測定方法を検討する必要があるものと思われる.

4. ま と め

成層圏 O_3 光化学に関する我々の理解を深めるには, $O(^3P)$ と O_3 の同時測定が重要な意味を持っている. 我々は, 上部成層圏において $O(^3P)$ を測定するために, 共鳴蛍光法による気球搭載型 $O(^3P)$ 測定器を開発し, 数値シミュレーションおよび較正実験によってその性能を詳細に調べた. そして, 1997年9月9日に三陸上空の高度38~44kmにおいて $O(^3P)$ および O_3 の同時測定を行い, 測定値とモデル計算値の比較を行った. 今回の実験は測定器開発の第一段階ということもあり, 測定精度は決して充分なものではなかったが, 今後の測定器改良に向けて様々な知見を得ることができた. これらを早急に実現させて行くことがこれからの課題である. また, 機能を強化しつつ装置を軽量化して, より高い高度まで上昇できるようにすることも目標の一つである. 今回の実験で使用した高高度気球 BT15 よりさらに大型の高高度気球 BT120 は, 約10kgの測定器を搭載して高度50kmまで到達できるため, 将来的にはこの気球を用いて高度40~50kmにおける $O(^3P)$ と O_3 (さらには放射強度や温度)の同時測定を行うことができれば, 世界的にも例のない非常に貴重なデータが得られるであろう.

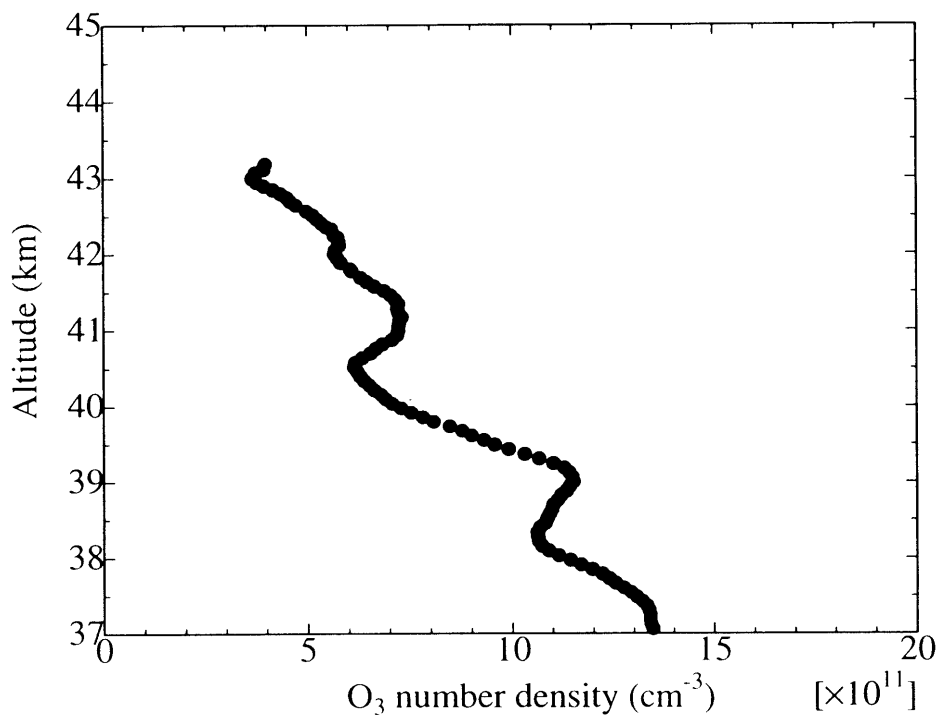


図7. 気球観測により得られた高度35~44kmにおけるO₃の高度分布.

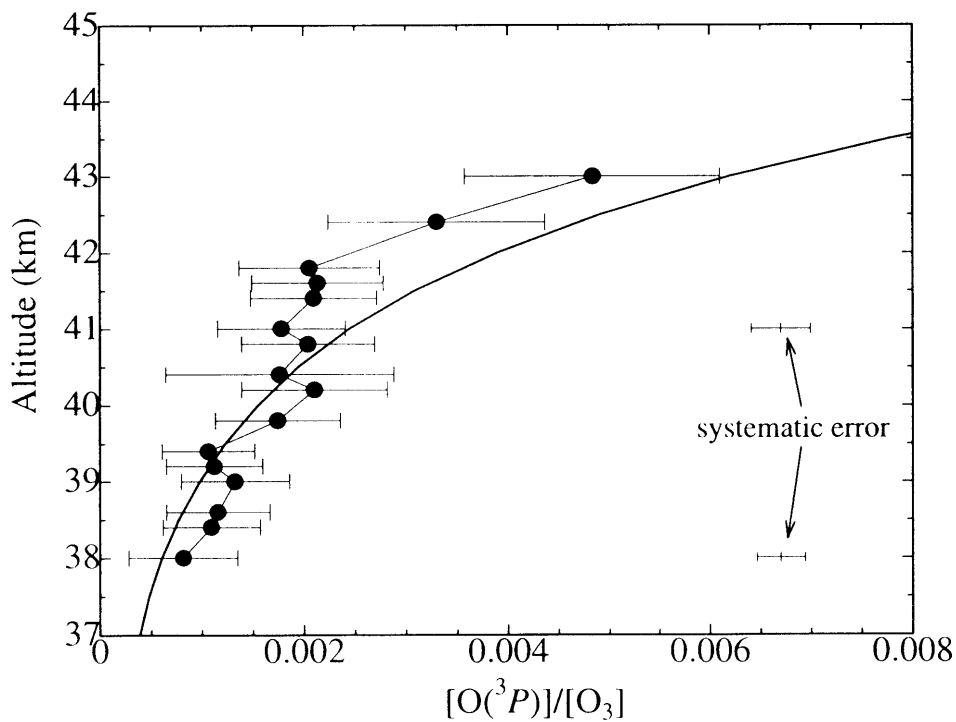


図8. 気球観測により得られた $[O(^3P)]/[O_3]$ 比と、モデル計算により得られた $[O(^3P)]/[O_3]$ 比との比較. 黒丸と細実線が観測値 r_{obs} , 太実線がモデル計算値 r_{model} を表す.

謝 辞

測定器開発および較正実験の全般に渡り、Resonance Ltd.の W.H.Morrow 氏、及び東京大学理学部の北助手の御協力を頂いたことに謝意を表す。真空チェンバーにおける較正実験では宇宙科学研究所の中村助教授と相原技官、またランプスペクトル測定では高エネルギー加速器研究機構の伊藤助教授の御助力を得た。さらに、三陸での気球実験では、宇宙科学研究所の山上助教授、松坂氏を初めとする大気球実験グループの方々、及び三陸大気球実験所の方々の御協力を頂いた。ここに感謝の意を表す。

参 考 文 献

- Anderson, J. G., The absolute concentration of O (3P) in the earth's stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *2*, 231-234, 1975.
- Anderson, J. G., H. J. Grassl, R. E. Shetter, and J. J. Margitan, Stratospheric free chlorine measured by balloon-borne in situ resonance fluorescence, *J. Geophys. Res.*, *85*, 2869-2887, 1980.
- CIRA:1986, COSPAR International Reference Atmosphere, Edited by D. Rees, J. J. Burnett and K. Labitzke, *Adv. Space Res.*, *10(12)*, 336-339, 1990.
- DeMore, W. B., S. P. Sander, D. M. Golden, R. F. Hampson, M. J. Kurylo, C. J. Howard, A. R. Ravishankara, C. E. Kolb, and M. J. Molina, Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling, Evaluation No.12, *JPL Pub.* 1997
- Eluszkiewicz, J and M. Allen, A global analysis of the ozone deficit in the upper stratosphere and lower mesosphere, *J. Geophys. Res.*, *98*, 1069-1082, 1993.
- Jenkins, D. B., G. Watkin, Wareing, G. H. C. Freeman, P. H. G. Dickinson, and D. J. Mackinnon, Resolved line profiles of atomic oxygen resonance lamps used in the upper atmosphere, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, *34*, 123-132, 1985.
- Kita, K., T. Imamura, N. Iwagami, W. H. Morrow, T. Ogawa, Rocket observation of atomic oxygen and night airglow : Measurement of concentration with an improved resonance fluorescence technique, *Ann. Geophysicae*, *14*, 227-237, 1996.
- 岡林 昌宏, 田口 真, 岡野 章一, 福西 浩, 高高度気球搭載光学センサーによる成層圏オゾンの観測, 宇宙科学研究所報告特集, 第32号, 105-111, 1995.
- Siskind, D. E., B. J. Connor, R. S. Eckman, E. E. Remsberg, J. J. Tsou, and Alan Parrish, An inter-comparison of model ozone deficits in the upper stratosphere and mesosphere from two data sets, *J. Geophys. Res.*, *100*, 11,191-11,201, 1995.
- Zuber, A., Resonance light sources and their use in atmospheric research, Department of Meteorology, University of Stockholm, 1989.