

# エアロゾルゾンデによる極成層圏雲観測 —エアロゾルゾンデ内でのPSC粒子の変質の可能性について—

白石 浩一<sup>1)</sup>・林 政彦<sup>1)</sup>・藤原 玄夫<sup>1)</sup>・柴田 隆<sup>2)</sup>  
渡辺 征春<sup>3)</sup>・岩坂 泰信<sup>4)</sup>・山内 恭<sup>5)</sup>・Roland NEUBER<sup>6)</sup>

(平成 21 年 12 月 18 日受理)

## Balloon-borne Optical Particle Counter Measurement of Polar Stratospheric Cloud —The Possibility of Deterioration of PSC Particle Inside Optical Particle Counter —

Koichi SHIRAISHI<sup>1)</sup>, Masahiko HAYASHI<sup>1)</sup>, Motowo FUJIWARA<sup>1)</sup>, Takashi SHIBATA,  
Masaharu WATANABE, Yasunobu IWASAKA, Takashi YAMANOUCI, and Roland NEUBER

(Received December 18, 2009)

### Abstract

Results of lidar and balloon-borne optical particle counter (OPC) observations at Ny-Aalesund on January 6, 1996 were compared for the study of optical properties of PSCs and background aerosols. Both observations showed a good coincidence in the vertical profiles of backscattering coefficient below 16 km when no PSC appeared. The enhanced liquid PSC with increment of depolarization ratio at bottom and top of the layer were detected in the height range of 17 - 26 km by lidar but the OPC observation showed quite different aspect at 20 km, the height of enhanced

- 
- <sup>1)</sup> 福岡大学理学部地球圏科学科, 〒 814-0180 福岡市城南区七隈 8-19-1  
Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka, 814-0180, Japan
- <sup>2)</sup> 名古屋大学大学院環境学研究科地球環境科学専攻, 〒 464-8601 千種区不老町  
Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8601, Japan
- <sup>3)</sup> 産業技術総合研究所関西センター, 〒 563-8577 大阪府池田市緑ヶ丘  
Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Kansai, Midorigaoka Ikeda, Osaka, 563-8577, Japan
- <sup>4)</sup> 金沢大学自然計測応用研究センター, 〒 920-1192 石川県金沢市角間町  
Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Kakuma Kanazawa, Ishikawa, 920-1192, Japan
- <sup>5)</sup> 国立極地研究所, 〒 190-8518 東京都立川市緑町  
National Institute of Polar Research, Midoricho, Tachikawa, Tokyo, 190-8518, Japan
- <sup>6)</sup> Alfred Wegener Institute for Polar and Marine Research, D-14473 Potsdam, Germany

liquid PSC. The box model simulation for liquid PSC suggested the possibility that the liquid PSC particles detected by OPC might have deteriorated after they were injected into the optical chamber of OPC.

Key Words: polar stratospheric cloud, lidar, opc

## はじめに

冬季極成層圏に発達する極成層圏雲 (Polar stratospheric cloud, 以後 PSC と称す) は, その粒子表面での不均一反応により, 不活性な塩素原子を活性化させ, またその粒子自身の重力沈降により脱窒, 脱水過程等を経て, オゾン破壊に主要な役割を果たしていると考えられている (Solomon, 1999).

近年のフィールド観測や室内実験等の包括的な研究により, PSC の発達過程や組成について, かなり明らかになってきた. PSC はマイクロオーダーの液滴粒子, 固体粒子, もしくはそれらの混合状態として, 出現すると考えられている. 液滴粒子の組成は, 硫酸・硝酸・水からなる三成分系の液滴 (supercooled ternary solutions, STS 粒子) と考えられ, フィールド観測で得られた光学特性やその温度の変化に伴う振舞いはモデルシミュレーション等で上手く説明できている (例えば Daneva and Shibata, 1999). 一方, 固体 PSC の組成は, 三水和硝酸 (NAT) からなると考えられている. 室内実験により NAT は下部成層圏で最も安定に存在すると考えられている (Hanson and Mauersberger, 1988). しかし NAT の核生成バリアーが高いことから, その前駆固体物質として, 二水和硝酸やより高い水和物が生成する可能性も指摘されている (Marti and Mauersberger 1993; Worsnop et al. 1993; Iraci et al. 1994). Voigt et al. (2000) は, 初めて航空機観測により真珠雲の中に  $2\mu\text{m}$  より小さい NAT 粒子を検出した. Fahey et al. (2000) は, SOLVE キャンペーン期間中に,  $1\text{-}10\mu\text{m}$  の非常に大きい NAT 粒子を観測した. また, 北極域の多くのフィールド観測で液滴粒子と固体粒子が外部混合した状態で観測されている. その外部混合した固体粒子と液滴粒子の温度の低下に伴った発達の違いや光学特性の違いは, NAT と STS 粒子の外部混合を想定した BOX モデル等である程度説明されている (例. Shibata, 1999; Biele et al., 2001; Daneva and Shibata, 2003). しかしながら, 固体粒子は近年, 航空機による直接測定により NAT 粒子が検出されているものの, 未だにその組成や生成・発達過程については不明な点が多く, 液滴粒子と固体粒子が共存する場合でも,

固体 PSC が生成・発達する過程での STS 粒子の役割等についてもよく分かっていない.

我々は, 極成層圏雲の空間分布や生成・発達過程を調べるために, 1993 年 9 月にノルウェイ, ニーオルスンにライダー観測基地を設置し, 毎冬観測してきた. また散発的にエアロゾルゾンデ (Optical Particle Counter, 以後 OPC と称す) による粒径分布観測も行ってきた. 1996 年 1 月 6 日は, ニーオルスン上空の成層圏温度が非常に低温になり, 高度  $20\text{km}$  付近の液滴層を上方と下方の固体層が挟み込むようなサンドイッチ状の鉛直構造の PSC を観測した (Shibata et al, 1997; Daneva et al., 2003). また同日, エアロゾルゾンデによる粒径分布観測も行われていた (Watanabe et al., 2004). 本論分では, それらの比較解析を行った結果について詳細を述べる.

## 測定

観測に使用した OPC は, 光源に半導体レーザー ( $780\text{nm}$ ) を利用した前方散乱型エアロゾルゾンデである (Hayashi et al., 1998). エアロゾルゾンデは, 光学チャンバー内に取り込んだサンプリング空気に含まれるエアロゾル粒子にレーザー光を照射し, フォトダイオードにより検出した散乱光強度から粒径, 個数濃度を計測する. 粒径は, 球形で屈折率 1.4 のエアロゾル粒子の等価粒径として決定し,  $5\text{ch}$  (半径  $r > 0.15, 0.25, 0.4, 0.6, 3.6\mu\text{m}$ ) の数居粒径で分級し, 粒子数濃度を計測している. OPC の統計誤差は, ポアソン統計により粒子カウント数の平方根で与えられる. 粒径分布を導出するときに各チャンネルで計測された粒子数濃度は高度  $1\text{km}$  ごとに平均される. 気球の上昇速度は約  $4\sim 5\text{m/s}$  であり, これは高度分解能  $80\sim 100\text{m}$  に相当する. またサンプリング空気の流量は約  $3\ell/\text{min}$  である. 高度  $1\text{km}$  ごとの平均は, 約 10 個の数濃度データを平均することを意味しており, OPC で計測できる最小可測数濃度は, 全てのチャンネルに対して,  $0.1\text{個}/\ell$  になる.

ライダーシステムは, 光源に Nd:YAG レーザーを使用し,  $1064\text{nm}$ ,  $532\text{nm}$  の 2 波長に対して観測を行った. 受信には, 口径  $35\text{cm}$  のシュミットカセグレ

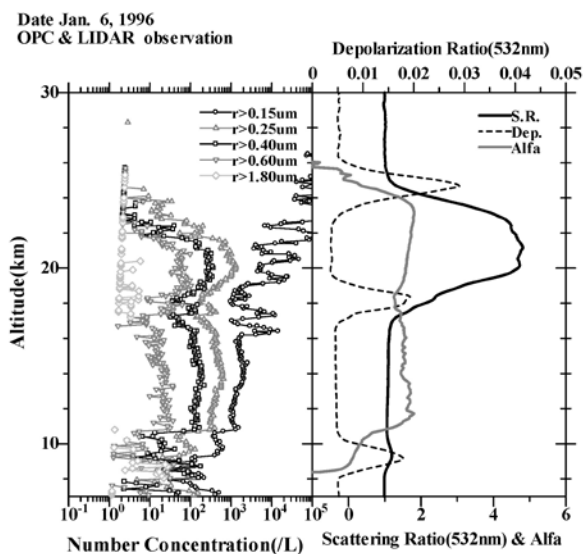


Fig. 1 Vertical profile of (a) size-integrated particle concentration for five channels observed by OPC, and (b) 532nm scattering ratio, depolarization, Ångstrom coefficient.

ン望遠鏡を利用し、2波長の後方散乱係数を計測している。532nmについては、射出したレーザー光の偏光面に対して、平行成分と垂直成分に分けて計測した。データ計測は、フォトンカウント計測を行った。得られたデータからエアロゾルの後方散乱係数を導出する。1064nm, 532nmのエアロゾルの後方散乱係数の導出は、Hirono et al. (1985)の反復法を利用した。ライダーの解析パラメータとして、波長1064nmと532nmでの散乱比R, 532nmでの偏光解消度 $\delta$ 、及びオングストローム係数 $\alpha$ を使用した。

散乱比Rは、 $R = (\beta_R + \beta_M) / \beta_R$ と定義され、ここでの $\beta_R$ と $\beta_M$ は空気分子とエアロゾルの後方散乱係数である。R-1はエアロゾルの体積混合比におおよそ比例する(Pinnick et al., 1976)。また、偏光解消度 $\delta$ は、 $\delta = \beta_{\perp} / (\beta_{\perp} + \beta_{\parallel})$ と定義され、 $\beta_{\perp}$ と $\beta_{\parallel}$ は射出したレーザーの偏光面に対する垂直と平行な成分の後方散乱係数である。大気分子の偏光解消度 $\delta_{air}$ は0.05と仮定し、Adachi et al. (2001)の方法により補正を行った。 $\delta$ は粒子の非球形度を表し、散乱体がSTS液滴のような球形粒子からなる場合には0を示す。また、氷粒子のような非球形粒子の場合、高い値を示す。オングストローム係数 $\alpha$ は1064nmと532nmの2波長のエアロゾル後方散乱係数 $\beta_{M1064}$ ,  $\beta_{M532}$ を用いて、 $\alpha = -\ln(\beta_{M1064} / \beta_{M532}) / \ln(1064 / 532)$ で定義され、エアロゾル後方散乱係数 $\beta_M$ が $\lambda^{-\alpha}$ ( $\lambda$ :波長)に比例するという仮定のもとで、相対的な粒子の大きさの指標を表している。

1つの鉛直プロファイルは、レーザーパルス72,000ショットの測定カウントの積算で得られる。これは、約2時間の時間分解能に相当する。高度分解能は900mである。散乱比の誤差は、PSC未検出状態時の高度25kmで、532nmで2%、1064nmで15%になる。偏光解消度の誤差は15%以下である。

## 測定結果

1996年1月6日のOPCとライダーで得られた観測結果を示す。極渦は発達し、ライダー観測基地のあるニーオルスンは、極渦の中心付近に位置していた。気温は、高度21km付近で最も低くなり、氷の霜点温度まで達し、発達したPSCを検出していた。高度17kmから26kmにかけてPSCを検出している。高度19kmから22.5kmにかけて散乱比が高く偏光解消度が低い液滴層を検出している。また、その層の下方(17-19km)と上方(23-26km)に偏光解消度の高い固体粒子からなる層が観測されている。このような液滴の層を上方と下方から固体の層が挟むサンドイッチ状の鉛直構造したPSCについては、Shibata (1999)やDaneva and Shibata (2003)により、ボックスモデルを使った詳細な解析が行われ、観測されたPSCが固体粒子(NAT)と液滴粒子(STS)粒子の外部混合からなること、温度の低下に伴った固体粒子と液滴粒子の成長速度の違いにより検出したPSCの光学特性が生じること等がよく説明されている。OPCの粒子数濃度は、ライダーで液滴粒子が観測されている高度域で粒径 $r > 0.25\mu\text{m}$ から $r > 0.6\mu\text{m}$ のチャンネルの数濃度で対応した増加が見られた。一番小さい粒子を計測するチャンネル( $r > 0.15\mu\text{m}$ )は、16kmよりも高い高度で頻繁に不自然なノイズらしいカウントを計測していた(Watanabe et al., 2004)。

## 粒径分布関数のフィッティング

ライダー観測で得られたエアロゾル後方散乱係数と比較するため、OPCの測定結果に、粒径分布として二山の対数正規分布を用いてフィッティングを行い、後方散乱係数の導出を試みた。OPCは、計測粒径(半径)0.15 $\mu\text{m}$ から1.8 $\mu\text{m}$ の数濃度を5チャンネルで計測する。2山の対数正規分布を得るためには、OPCの計測粒径の範囲(0.15 $\mu\text{m}$ ~1.8 $\mu\text{m}$ )やチャンネル数(5ch)は十分ではない。そのため、今回の解析では、第1モード(小さいモード)の総粒子数と中心半径は、Deshler and Oltmans (1998)のスウェーデンキルナでの粒径分布観測の結果を参考にした。第1モードの総粒子数は、 $10^5$ 個/cm<sup>3</sup>~ $2 \times 10^6$ 個/cm<sup>3</sup>の範囲で

20 分割し, 中心半径は,  $0.01\mu\text{m} \sim 0.1\mu\text{m}$  の範囲で 20 分割した. 第 1 モードの総粒子数と中心半径の組み合わせで  $20 \times 20 = 400$  組の仮定を行い, 最小自乗法によりフィッティングを行った.

OPC の敷居粒径は, 屈折率 1.4 のエアロゾル粒子の等価粒径として決定している. エアロゾルの組成, 組成比が変われば, 屈折率も変わり, 敷居粒径も変動する. 粒径分布関数のフィッティングを行う前に, 液滴エアロゾルの組成を推定し, 対応する屈折率を決定して敷居粒径は補正を行った. PSC が観測されない温度 (196K 以上) では Steel and Hamill (1981) の硫酸液滴のモデルを利用し, 硫酸エアロゾルの組成, 屈折率を求めた. PSC 出現時には, STS 粒子を仮定した Carslaw et al. (1995) と Krieger et al. (2000) 等のモデルを用いて, 組成及び屈折率を求めた. 大気中の水蒸気, 硝酸蒸気濃度は, 5ppmv, 10ppbv を仮定した.

### 議論 OPC とライダーで得られた 後方散乱係数の比較

OPC で得られた積分粒子数濃度は, 高度 1km ごとに平均化し, 粒径分布関数のフィッティングを行った. OPC の一番小さい粒径の測定チャンネルでは, 高度 16km より高い高度で頻繁にノイズらしい不自然な数濃度の増加を観測した. これらの不自然な数濃度の増加 (ノイズ) を取り除き, 取り除いた積算粒子数濃度の鉛直分布に対して内挿することにより, ノイズにより欠損したデータを補間した. 導出した粒径分布と, OPC の敷居粒径を修正するときに用いた屈折率を利用し, エアロゾルが球形であることを仮定して, Mie 散乱理論からエアロゾル後方散乱係数を導出した. 図 2 に OPC から導出したエアロゾル後方散乱係数とライダーにより得られたエアロゾル後方散乱係数の比較の結果を示す. 高度 10-14km の PSC が検出されていないバックグラウンドの硫酸エアロゾルが観測されている高度域では, OPC とライダーのエアロゾル後方

散乱係数はよく一致していた. 今回のフィッティング解析では, 第一モードの総粒子数と中心半径は, 近年の in situ 観測の結果 (Deshler and Oltmans, 1998) を参考にしている. この方法による二山分布のフィッティングは妥当な結果を示していると考えられる. 近年の粒径分布の直接観測や衛星観測から, 1999 年の終わりまでは成層圏にピナトゥボ火山起源のエアロゾルの影響が残っていると報告され (Watanabe et al., 2004; Hayashida and Horikawa, 2001), 火山起源エアロゾルの影響下では, 成層圏エアロゾルは明確な二山分布の粒径分布を示すことが報告されている (Russell et al., 1996; Deshler et al., 2006).

PSC が検出されている 17-25km の高度域では, OPC とライダーから得られた後方散乱係数に大きな違いが見られた. とりわけ, 散乱比のピーク高度 20km では, ライダーで測定したエアロゾル後方散乱係数の方が OPC で見積もった後方散乱係数よりも 5, 6 倍大きい値を示した. 図 2 に示したライダーの 532nm と 1064nm のエアロゾル後方散乱係数は, 900m の高度分解能を持ち, 2 時間の積算で導出している. 高度 20km での両波長の後方散乱係数の誤差は, 1.7 ~ 2.0% 程度である. 一方, 高度 1km 毎に平均している OPC の粒子数濃度の統計誤差は, 一番大きな敷居粒径の  $1.8\mu\text{m}$  の数濃度で 3% より小さい. それ故に OPC とライダーの測定誤差で, 後方散乱係数の大きな違いを説明することはできない.

この大きな違いの要因として, 1. いくつかの仮定を行い導出した OPC 観測から導出した後方散乱係数の不確定さ, 2. OPC とライダーで各々光学特性の異なった PSC を観測している可能性, 3. OPC での計測中に測器外の大気から OPC 内部へ取り込むサンプリング空気に含まれる PSC の変質の可能性, などが考えられる.

OPC の粒子数濃度から後方散乱係数を導出するとき, 水蒸気 5ppmv, 硝酸蒸気 10ppmv の蒸気混合比を仮定していた. 蒸気混合比を仮定することによる不確定さを調べるため, 水蒸気混合比 4.0 ~ 5.5ppmv, 硝酸蒸気混合比 1 ~ 15ppbv をそれぞれ仮定し, 水蒸気混合比と硝酸蒸気の色々な組み合わせに対して屈折率を求め, 敷居粒径を補正して, エアロゾル後方散乱係数を導出した. 結果として, 得られた 532nm と 1064nm の後方散乱係数は, 最大で 40% 程度の変動を示した. この結果でも OPC とライダーの後方散乱係数の違いを十分に説明することはできない.

Shibata et al., (1999) and Daneva et al., (2003) はこの日, 高度 20km で観測した PSC について, PSC のボックスモデルを使って, STS 液滴粒子と NAT のような固体粒子の外部混合からなることを述べた. 彼

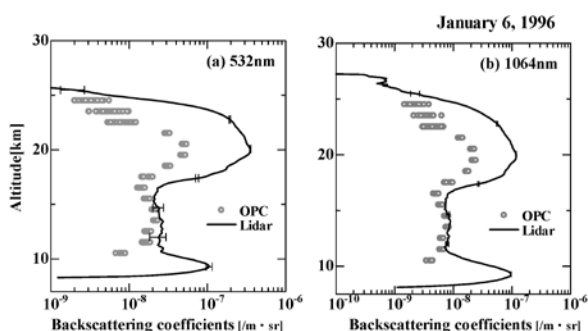


Fig. 2 Comparison of the aerosol backscattering coefficients derived from the OPC with those derived from the lidar.

等の研究によれば、高度 20km での固体粒子 (NAT) の粒子数濃度は  $10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ cm}^{-3}$  のオーダーであると推定される。この数濃度は、STS 粒子の粒子数濃度 (約  $1 \sim 10 \text{ 個 cm}^{-3}$ ) と比較してきわめて小さい。それ故に固体粒子による後方散乱係数は小さく、数パーセント程度であると推測される。OPC の測定データから後方散乱係数を導出するとき、検出したエアロゾルが全て球形粒子であるという仮定を行い計算しているが、非球形粒子の散乱を考慮していない影響はほとんど受けないと考えられる。

OPC とライダーで各々光学特性の異なった PSC を観測している可能性について検討してみると、観測を行った 1996 年 1 月 6 日は、極渦は非常に安定し、ニーオルスンはその中心におおよそ位置していた。また、この日ライダーで検出した PSC は時間的空間的に変動が少なかった。気象庁の客観解析データを用いて、気球の上昇時の OPC を含む空気塊のトラジェクトリー解析を行った。その結果、OPC が高度 20km に到達したとき、ライダーの観測基地からおおよそ 300km 南東に位置することが分かった。極渦の中心にニーオルスンが位置し、ライダーで観測した PSC の時間変動が少ないこと、OPC が高度 20km に到達したときライダー観測基地からあまり離れていないことなどから、ライダーと OPC で異なった光学特性を持つ PSC を検出した可能性も低いと考えられる。

最後に、OPC の内部に PSC を含むサンプリング空気を取り込んだ時の PSC の変質の可能性について検討した。OPC の測定時、OPC 内部の温度とサンプリング空気を排気する時の温度も、OPC 外部の大気温度と一緒に測定している。排気温度はサンプリング

空気が光学チャンバーを通過した後測定される。OPC の光学系の構成については、Tsuchiya et al., (1996) や Hayashi et al., (1998) により述べられている。図 3 に、1996 年 1 月 6 日の OPC 観測時に同時に測定された気温、サンプリング空気の排気温度、OPC の内部温度の鉛直分布を示す。高度 20km での気温は  $-85^{\circ}\text{C}$  であり、その時の OPC の内部温度と排気温度は、それぞれ  $4^{\circ}\text{C}$  と  $7^{\circ}\text{C}$  であった。OPC の内部温度と排気温度は、外の気温に比べて非常に高い。OPC の測定時、温度のほかにも、サンプリング空気を OPC 内部に吸引するために使われるギアポンプの回転数もモニタリングされており、計測時の流量も算出することができる。1996 年 1 月 6 日高度 20km 付近では、OPC サンプリング流量は  $1.44 \sim 1.56 \text{ l/min}$  であり、大気中のサンプリング空気が OPC 内部に入り、レーザービームの照射スポットに到達するまでに要する時間は約 0.29 秒と推測された。これらの条件下で観測した液滴 PSC 粒子の粒径分布と組成がどの程度変化するか検討した。

液滴 PSC 粒子の粒径分布と組成を推定するにあたって、Daneva and Shibata (2001) による液滴 (STS) PSC のボックスモデルを利用した。彼等のモデルは、液滴 PSC (STS) と固体粒子 (NAT) が共存した PSC を仮定し、温度の変化に伴う各々粒子の凝結・蒸発過程の計算をラグランジェ的に行うモデルである。STS と NAT 粒子は、均一な球形粒子を仮定し、各々の PSC のタイプに対して各粒径の粒子ごとに、蒸気の拡散方程式から、気相と凝結相間の質量の変化を計算する。我々の計算では、PSC は液滴 STS からなると仮定し、粒径区分は  $0.01\mu\text{m}$  から  $0.1\mu\text{m}$  ま

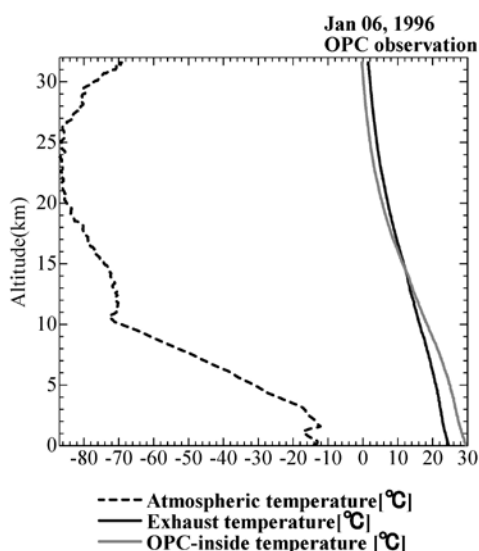


Fig. 3 Vertical distribution of atmospheric temperature, exhaust temperature of OPC, OPC-inside temperature.

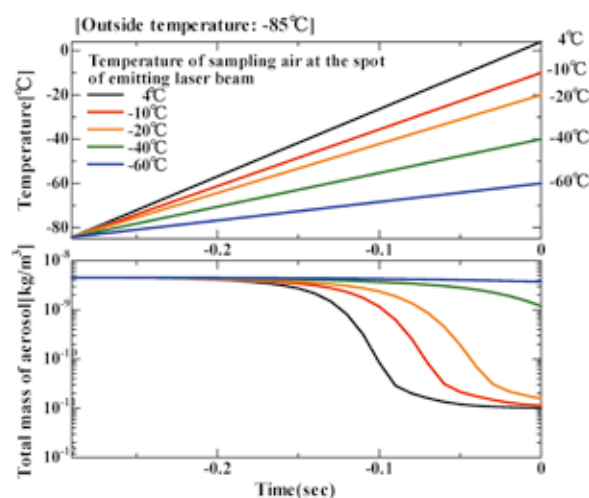


Fig. 4 Time evolution of (a) temperature, (b) total mass of liquid aerosol along path for the sampling air to pass from outside to the spot of emitting laser beam.

を30に分割し計算を行った。初期条件として、液滴PSCの粒径分布と組成は、高度20kmでの気象条件(温度, 気圧)下で、水蒸気5ppmv, 硝酸蒸気10ppbvを仮定し、水蒸気, 硝酸蒸気と各粒径区域のSTS粒子が平衡状態になるような組成, 粒径分布を仮定した。さらに、ライダーで得られた532nmと1064のエアロゾル後方散乱係数と一致するように仮定した。また、サンプリング空気がOPC内部のレーザー照射スポットを通過するときの温度は、4度から-60度の範囲で仮定し、OPC外部の大気からレーザー照射スポットの位置までサンプリング空気が経験する温度は、線形で変化すると仮定した。

図4は、サンプリング空気がOPC内部に入ってからレーザー照射スポットに到達するまでの(a)温度変化, (b)液滴PSCの全質量の時間変化を示している。レーザー照射スポットの位置でのサンプリング空気の温度が-60°Cの場合、液滴粒子の全質量はそれほど変化しない。しかしレーザー照射スポットの位置での温度が-40°Cと-20°Cの場合には、液滴粒子の全質量は26%と0.3%まで急激に減少する。

図5は、サンプリング空気がレーザー照射スポットに到達したときの(a)粒径分布, (b)積分粒子数濃度の粒径分布を示している。さらに(a)にはOPC外の大気中の液滴粒子の粒径分布を、(b)にはOPCの5つチャンネルで測定された積分粒子数濃度も同時に示している。温度が-60°C, -40°Cの場合、エアロ

ゾル粒径分布は、大気中の粒径分布とそれほど変わっていない。しかし、-20°Cの場合には、0.1 $\mu$ mより大きい粒子での蒸発による縮退が著しく、粒径分布が大きく変化していた。また、モデルによって再現した積分粒子数濃度の粒径分布とOPCで計測した積分粒子数濃度との比較から、レーザー照射スポットでの温度が-37°Cのときに、モデルで予測した積分粒子数濃度とOPCの測定結果が一致することが分かった。液滴粒子の成長速度は、固体粒子と比べて非常に早い(Shibata et al., 1999; Daneva and Shibata, 2001)。この結果は、OPC内部での液滴PSCの変質の可能性が高いということを示している。OPCで計測した最も大きい粒子の測定チャンネル( $r > 1.8\mu$ m)の数濃度だけは、レーザー照射スポットでの温度が-37°Cのときに推測した値と一致せず、6倍大きい値を示した。OPCの最も粒径の大きいチャンネルでは、固体粒子を観測していた可能性がある。Daneva and Shibata (2003)は、高度20kmで観測した散乱比の大きいPSCは、多量の液滴粒子と少量の固体粒子からなり、固体粒子(NAT)の数濃度は、OPCで測定した1.8 $\mu$ mより大きい粒子の数濃度と対応していることを示していた。

## まとめ

1996年1月6日ニーオルスン上空でOPCとライダーにより検出した極成層圏雲の光学特性の比較解析を行った。OPC測定から導出したエアロゾル後方散乱係数は、PSCを観測していない10km~16kmの高度域ではライダーにより得られた後方散乱係数と良く合っていた。しかしPSCが観測された高度域では、大きな違いが見られた。高度20kmでは、散乱比が高く偏光解消度が低い液滴PSCが観測されていた。ここでは、ライダーの後方散乱係数の方が6倍ほど大きい値を示していた。OPCとライダーの後方散乱係数の違いを調べるために、PSCのボックスモデルを用いて、PSC粒子がOPC内部に取り込まれた時の変質の可能性について調べた。その結果、液滴PSCがOPC内部で蒸発し、変質した可能性が示された。

## 参考文献

Adachi, H., T. Shibata, Y. Iwasaka and M. Fujiwara, Calibration method for the lidar observed stratospheric depolarization ratio in the presence of liquid aerosol particles, *Applied Optics*, 40, 6587-6595, (2001).  
 Biele, J., A. Tsias, B. P. Luo, K. S. Carslaw, R.

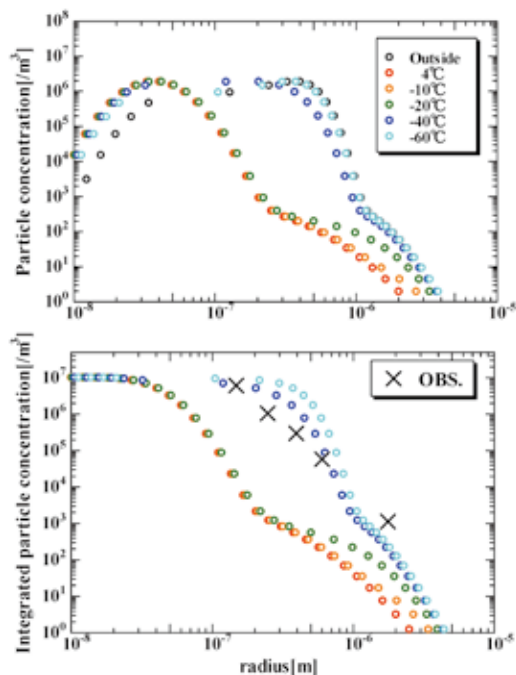


Fig. 5 Time evolution of (a) size distribution, (b) integrated size distribution of liquid aerosol at the spot of emitting laser beam.



- Neuber, G. Beyerle and T. Peter, Nonequilibrium coexistence of solid and liquid particles in Arctic stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, 106, 22991-23007, (2001).
- Carslaw, K. S., B. Luo and T. Peter, An analytic expression for the composition of aqueous  $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4$  stratospheric aerosols including gas phase removal of  $\text{HNO}_3$ , *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1877-1880, (1995).
- Daneva, D. and T. Shibata, On the mixing state of Polar Stratospheric clouds particles in "sandwich structure" observed by lidar: 2. Numerical simulations of the optical properties of the liquid and solid particles with external mixture of STS and NAT particles, *J. Meteor. Soc. Japan*, 81, 759-777, (2003).
- Daneva, D. and T. Shibata, Behavior of externally mixed, liquid and solid polar stratospheric particles in a numerical box model under temperature decrease, *Polar Meteorology and Glaciology*, 15, 32-42, 2, (2001).
- Deshler, T., and Oltmans, S. J., Vertical profiles of volcanic aerosol and polar stratospheric clouds above Kiruna, Sweden: Winter 1993 and 1995, *J. Atmos. Chem.*, 30, 11-23, (1998).
- Deshler, T., R. A. Sprenger, H. Jäger, J. Barnes, D. J. Hofmann, B. Clemesha, D. Simonich, M. Osborn, R. G. Grainger, and S. G. Beekmann, Trends in the nonvolcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971-2004, *J. Geophys. Res.*, 111, D01201, doi:10.1029/2005JD006089, (2006).
- Fahey, D. W., R. S. Gao, K. S. Carslaw, J. Kettleborough, P. J. Popp, M. J. Northway, J. C. Holecek, S. C. Ciciora, R. J. McLaughlin, T. L. Thompson, R. H. Winkler, D. G. Baumgardner, P. O. Wennberg, S. Dhaniyala, K. McKinney, Th. Peter, R. J. Salawitch, T. P. Bui, J. W. Elkins, C. R. Webster, E. L. Atlas, H. Jost, J. C. Wilson, R. L. Herman, A. Kleinbohl, M. von König, The detection of large  $\text{HNO}_3$ -containing particles in the winter Arctic stratosphere, *science*, 291, 1026-1031, (2001).
- Hanson, D. and K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-858, (1988).
- Hayashi, M., Y. Iwasaka, M. Watanabe, T. Shibata, M. Fujiwara, H. Adachi, T. Sakai, M. Nagatani, and M. Tsuchiya, Size and number concentration of liquid PSCs: Balloon-borne measurements at Ny-Aalesund, Norway in the winter of 1994-1995, *J. Meteor. Soc. Japan*, 76, 549-560, (1998).
- Hirono, M., N. Fujiwara, M. Fujiwara and T. Shibata, Comparative study of the aerosol properties measured by two-wavelength lidar and detector on balloon. *J. Meteor. Soc. Japan*, 63, 2, 294-302, (1985).
- Iraci, L. T., A. M. Middlebrook, M. A. Wilson and M. A. Tolbert, Growth of nitric acid hydrates on thin sulfuric acid films, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 867-870, (1994).
- Krieger, U.K., J.C. Moessinger, B. Luo, U. Weers and T. Peter, Measurement of the refractive indices of  $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-HNO}_3\text{-H}_2\text{O}$  solutions to stratospheric temperatures, *Appl. Opt.*, 39, 3691-3703, (2000).
- Marti, J. and K. Mauersberger, Laboratory simulations of PSC particle formation. *Geophys. Res. Lett.*, 20, 359-362, (1993).
- Russell, P. B., J. M. Livingston, R. F. Pueschel, J. J. Bauman, J. B. Pollack, S. L. Brooks, P. Hamill, L. W. Thomason, L. L. Stowe, T. Deshler, E. G. Dutton, and R. W. Bergstrom, Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses, *J. Geophys. Res.*, 101, D13, 17845-18763, (1996).
- Shibata, T., On the lidar observed sandwich structure of polar stratospheric clouds (PSCs) 2. Numerical simulations of externally mixed PSC particles, *J. Geophys. Res.*, 104, 21613-21619, (1999).
- Shibata, Y. Iwasaka, M. Fujiwara, M. Hayashi, M. Nagatani, K. Shiraishi, H. Adachi, T. Sakai, K. Susumu and Y. Nakura, Polar stratospheric clouds observed by lidar over Spitsbergen in the winter 1994/1995: Liquid particles and vertical "sandwich structure", *J. Geophys. Res.*, 102, 10829-10840, (1997).
- Solomon, Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history. *Rev. Geophys.*, 37, 275-316, (1999).
- Steele, H. M., and Hamill, P., Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulphuric acid-water droplets in the stratosphere, *J. Aerosol Sci.*, 12(6), 517-528, (1981).
- Tsuchiya, M., Kasai, T., Hayashi, M., Iwasaka, Y., Takami, K., Development of aerosol counter for balloon observation. *Keisoku Jido Seigyo Gakkai Ronbunshu*, 32 (3) , 290- 296, (1996).

Voigt, C., J. Schreiner, A. Kohlmann, P. Zink, K. Mauersberger, N. Larsen, T. Deshler, C. Kroeger, J. Rosen, A. Adriani, F. Cairo, G. D. Donfrancesco, M. Viterbini, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. David and A. Doernbrack, Nitric acid trihydrate (NAT) in polar stratospheric clouds, *Science*, 290, 1756-1758, (2000).

Watanabe, M., Iwasaka, Y., Shibata, T., Hayashi,

M., Fujiwara, M., Neuber, R., The evolution of Pinatubo aerosols in the Arctic stratosphere during 1994-2000, *Atmospheric Res.*, 69, 199-215, (2004).

Worsnop, D. R., L. E. Fox, M. S. Zahniser and S. C. Wofsy, Vapor pressures of solid hydrates of nitric acid: Implications for polar stratospheric clouds, *Science*, 259, 71-74., (1993).