

ASTAR 2000/2004, AAMP 2002 キャンペーンの航空機観測で
得られた北極域対流圏における春季エアロゾルの散乱係数,
粒径分布および輸送形態

山形 定^{1*}・原圭一郎^{2,3}・松木 篤⁴

Scattering coefficient, size distribution and the transport process of
tropospheric aerosol in the Arctic region observed with
an aircraft during ASTAR 2000/2004 and
AAMP 2002 campaign in spring

Sadamu Yamagata^{1*}, Keiichiro Hara^{2,3} and Atsushi Matsuki⁴

(2010年2月12日受付; 2010年3月6日受理)

Abstract: Airborne aerosol measurements of the Arctic haze were carried out during three campaigns, Arctic Study of Tropospheric Aerosol and Radiation 2000 (ASTAR 2000), the Arctic Airborne Measurement Program 2002 (AAMP 2002) and ASTAR 2004. Aircraft used for the campaigns were Dornier for ASTAR 2000/2004 and Gulfstream II for AAMP 2002. For all measurements aerosol particles were introduced into the cabin through stainless inlets and distributed to several instruments via a diffuser. Scattering coefficient of aerosol particles measured with an integrating nephelometer during the Arctic haze period showed a distinct difference between the lower, i.e. up to around 4000 m, and higher troposphere. Meanwhile, scattering coefficients in higher troposphere during the Arctic haze were in the same degree with those after the Arctic haze. Size distribution obtained from the data of a particle counter indicates that aerosol particles in accumulation mode during the Arctic haze have larger geometric mean diameter than those after the haze season, which reflects the aged air mass in the Arctic haze.

¹ 北海道大学大学院工学研究院, Faculty of Engineering, Hokkaido University, Kita-13, Nishi-8, Kita-ku, Sapporo, Hokkaido 060-8628.

² (現所属 present affiliation): 福岡大学理学部地球圏科学科, Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180.

³ 情報・システム研究機構国立極地研究所, National Institute of Polar Research, Research Organization of Information and Systems, Midori-cho 10-3, Tachikawa, Tokyo 190-8518.

⁴ 金沢大学フロンティアサイエンス機構, Frontier Science Organization, Kanazawa University, Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-1192.

* Corresponding author. E-mail: yamagata@eng.hokudai.ac.jp

“Curtain flight” which was carried out to reveal the fine structure of the haze layer showed that aerosol particles are transported in the isentropic plane.

要旨: アークティックヘイズの特性を解明するためにおこなわれた3つの観測キャンペーン (ASTAR 2000, AAMP 2002, ASTAR 2004) で, エアロゾルの散乱係数, 粒径分布などの航空機観測をおこなった. いずれのキャンペーンにおいてもエアロゾル粒子をステンレス製インレットから客室内に導入し, ディフューザーで減速後に各測定装置に分配した. エアロゾルの光学的散乱係数はアークティックヘイズ時, 4000 m 程度までの高度でそれ以上と際立った違いが認められた. これに対し, 対流圏上層の散乱係数は, アークティックヘイズ期, 清浄期でほぼ同じレベルであった. ヘイズ期にはエアロゾルの粒径分布は, 清浄期のものよりも大きく, 気塊が発生から長時間経っていることを示した.

ヘイズ層の微細構造を明らかにするためにおこなったカーテンフライトの結果, エアロゾルは等温位面を輸送されていることがわかった.

1. はじめに

北極域で早春期に観測されるアークティックヘイズは, 人間活動の活発な北半球中緯度から放出されたガス状・粒子状汚染物質が北極域に流入すること, 太陽放射のない北極域の冬期に, 大気の大気対流活動が著しく抑制されることなどによって引き起こされる高濃度エアロゾル現象であり, 太陽放射の再開により, 対流活動が盛んになる晩春から夏期にかけて, 降水現象によって解消される (Shaw and Khalil, 1989). このヘイズは北極域の気候や環境に大きな影響を与えているものの, その光学的・化学的特徴は十分解明されていない. これを明らかにするためには, 地上での定点連続観測に加え, 航空機を用いた *in situ* 観測が有効である. このために, 航空機を用いたエアロゾル測定を含む観測キャンペーン AAMP 98 (1998年3月ヘイズ時期), ASTAR 2000 (2000年3-4月ヘイズ時期), AAMP 2002 (2002年3月ヘイズ時期), ASTAR 2004 (2004年5-6月ヘイズ消滅期) がおこなわれた. (山形ほか, 2002; Hara *et al.*, 2002, 2003; Treffeisen *et al.*, 2004; Yamagata *et al.*, 2009; Yamanouchi *et al.*, 2003, 2005; Khosrawi *et al.*, 2010).

Engvall *et al.* (2008) は, 北極対流圏のエアロゾル特性が春から夏にかけて急激に変化することを, 数年間にわたるデータから結論づけている. そして, エイトケン粒子とアキュムレーション粒子の数濃度の比 Aerosol Transition Index を定義し, 2000-2005年にわたってこの指標が145日(通常5月25日)±1週間で変化し, エアロゾル特性が変化していると報告している. これより, 3回のキャンペーン観測, ASTAR 2000(2000年3月12日~4月25日), AAMP 2002(2002年3月6-14日), ASTAR 2004(2004年5月18日~6月10日)の期間に観測したエアロゾルは, ASTAR 2004の後半のみが夏モードであり, それ以外は全て春モード, いわゆるアークティックヘイズに相当するものと考えてよい. そこで, ここでは3つのキャンペーン観測のいずれにおいても, 同一機器により測定されたエアロゾルの光学的散乱係数を中心に, アークティックヘイズの空間分布について報告する.

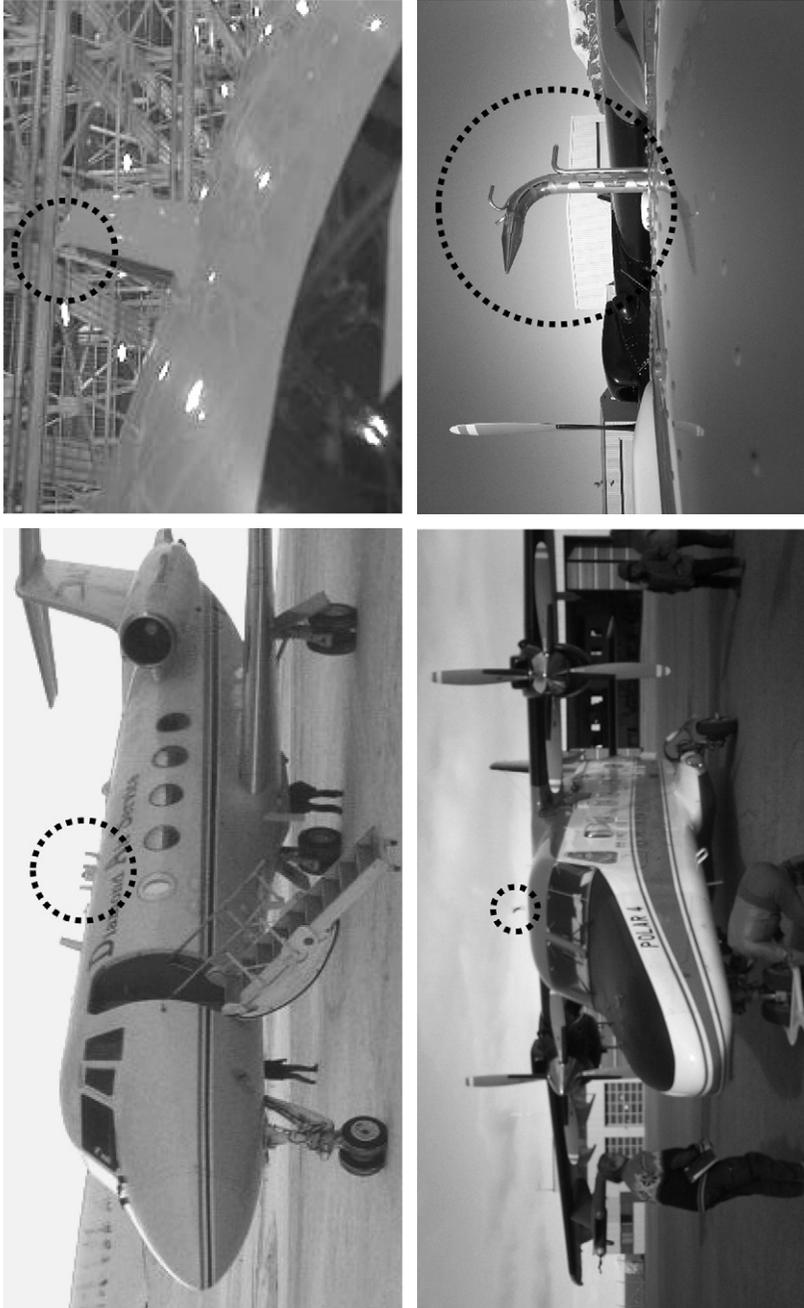


図1 観測に用いたDornier 228, Gulfstream IIの外観および粒子取り込み口。
Fig. 1. Overviews and particle inlets of Dornier 228 and Gulfstream II, the platforms of aircraft observation.

2. 観測方法

ASTAR 2000 および ASTAR 2004 ではアルフレッドウェゲナー極地海洋研究所（ドイツ）の所有する Dornier 228 (Polar 4) を, AAMP 2002 ではダイヤモンドエアサービス社所属の Gulf Stream II を用いて観測をおこなった。航空機の外観およびエアロゾルインレット部分の写真を図 1 に示す。サンプル粒子は, 機体上部に取り付けられた粒子取り込み口から機内に導入し, ディフューザーで減速した後, 各測定機器に分配しその特性を計測した。Polar 4 は与圧されていないため, 測定に使用するポンプの排気は客室内でおこなわれたが, Gulf Stream II は客室内が与圧してあるため, ポンプ排気は機外におこなわれた。各キャンペーンで観測に用いた測器を表 1 に示す。

いずれの観測でも航空機機外の空気を機内に導入後, それぞれの観測機器に分岐し測定をおこなった。図 2 に, ASTAR 2004 キャンペーン時に航空機へ搭載したエアロゾル観測システム概要を示す。サンプル大気は機外から等速吸引するように設計されたインレットを経て機内に導入され, ディフューザーで減速後にマニホールド経由で OPC (MetOne 237H) とインテグレーション・ネフエローメータ (IN; Radiance Research, M903) に分

表 1 各キャンペーンで用いた観測機器一覧
Table 1. Observational instruments for each campaign.

| Instrument\Campaign | ASTAR 2000 | AAMP 2002 | ASTAR 2004 |
|--|------------|-----------|------------|
| Integrating Nephelometer (IN) | ○ | ○ | ○ |
| Particle Soot/Absorption Photometer (PSAP) | ○ | ○ | ○ |
| Optical Particle Counter (OPC) | ○* | ○** | ○*** |
| Filter sampling | ○ | ○ | ○ |
| Absorption Spectrometer | × | ○ | × |

*測定粒径域の異なる 2 台を使用

**故障により計測不能

***pulse height analyzer と接続

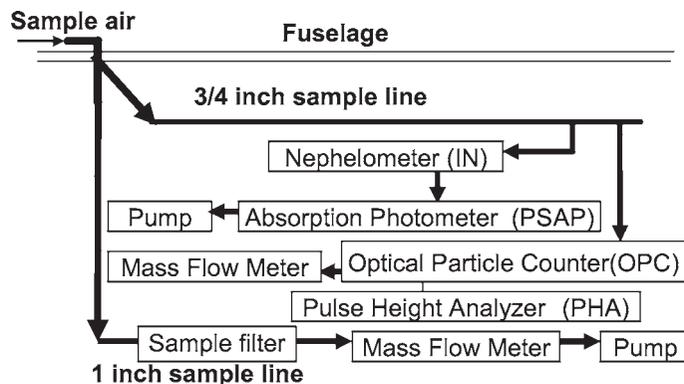


図 2 ASTAR 2004 時に Polar 4 (Dornier 228) へ搭載されたエアロゾル観測装置の概要
Fig. 2. Outline of aerosol-observation instruments installed in Polar 4 during ASTAR 2004.

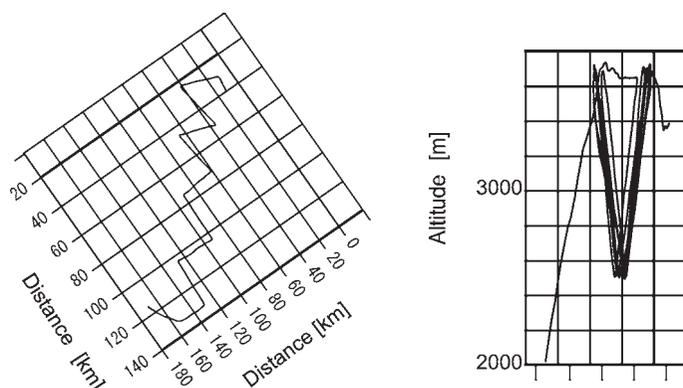


図3 2000年4月14日におこなったヘイズ層を横切る上昇・下降繰り返し飛行（カーテンフライト）の航跡図。上空からの投影図（左）および進行方向からの投影図（右）

Fig. 3. Trail of "Curtain flight" that repeats ascending and descending across the haze layer carried out 14 April 2000. Projection views from the top (left) and from the travel direction (right).

配され、INの下流にはさらに吸収係数測定装置（Radiance Research, PSAP）が設置されている。ディフューザー内の試料大気温度は、ほぼ客室内と同じ 20°C 程度になっており、低温の試料大気はディフューザー内で客室内気温近くまで昇温された結果、相対湿度が低下し数%程度以下になっていた。このため、エアロゾル粒子も乾燥されており、本報告のエアロゾルは大気中に浮遊した状態そのままのものではなく、乾燥収縮したものとなっていることを意味する。

フライトパターンの基本は、観測対象地域で高度数十mから7000m程度まで段階的に高度を上げながら、一定高度で数分間水平飛行を繰り返すものである。ただし、ヘイズの空間的微小構造を観測するために、ASTAR 2000の観測時にはヘイズ層の三次元構造を明らかにすべく、飛行中に検出したヘイズ層を横切るように上昇・下降を繰り返す、V字型の航跡を取るような飛行「カーテンフライト」（図3参照）を実施した。

3. 結果および考察

3.1. インテグレーション・ネフェロメータの検出限界

インテグレーション・ネフェロメータを観測フライトと同じ状態で航空機に搭載し、2004年6月7日の飛行中におこなったブランク測定の結果を図4に示す。図中の高度からわかるように、1000m程度で目的観測領域に到達後、高度数十mから高度7000mまで7高度で水平飛行をおこなった。これがASTAR 2000/2004での典型的な観測フライトパターンである。エアロゾル粒子カットフィルター（Pall Ultipor N66）は、図2の3/4インチサンプルラインとネフェロメータの間に設置されており、このフィルターによって0.2

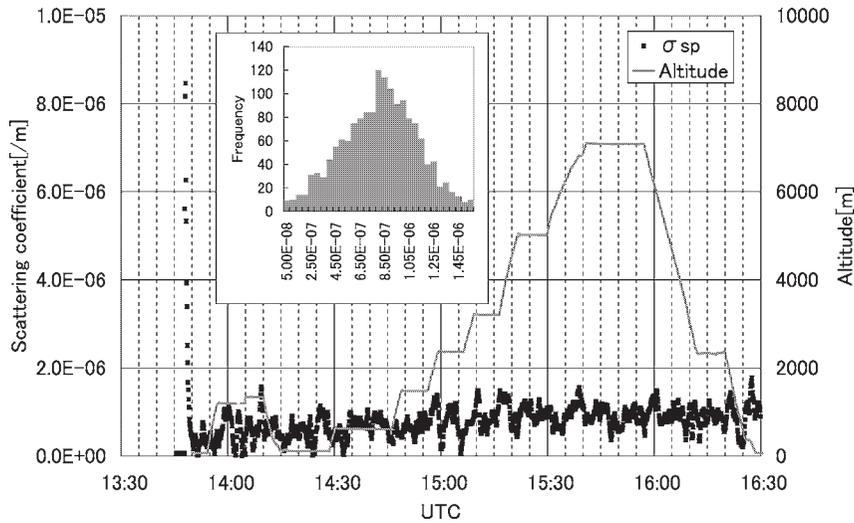


図4 フィルターにより粒子を除去した「ブランク測定」で得られた散乱係数と航空機の高度の時間変化。挿入図は測定初期を除いた信号のヒストグラム
 Fig. 4. Time variations of the scattering coefficient of filtered air (blank test) and altitude of the aircraft. Insert is the histogram of scattering coefficients of blank test.

μm 以上の粒子を完全に除去した。測定開始 1348 UTC 直後には、サンプルライン内に残存していた粒子の散乱による散乱係数が計測されたものの、その値は急速に低下し、飛行中散乱係数は $1 \times 10^{-6} [\text{m}^{-1}]$ 程度で推移した。飛行高度変更による気圧変化や上昇・下降など航空機の飛行状態変化は、散乱係数のブランク値に顕著な影響を与えなかった。6 秒ごとに得られた全ブランク測定データ 1599 個は、図 4 中の挿入図のように分布しており、その平均値は $7.9 \times 10^{-7} [\text{m}^{-1}]$ 、標準偏差は $3.1 \times 10^{-7} [\text{m}^{-1}]$ であった。これは装置 (Radiance Research M903) の仕様である「30 秒平均で $1 \times 10^{-6} [\text{m}^{-1}]$ の検出限界」とほぼ一致している。以上の結果より、本報告では $1 \times 10^{-6} [\text{m}^{-1}]$ 以上の散乱係数について議論する。

3.2. アークティックヘイズの空間的広がり と 消滅 ヘイズ期, 非ヘイズ期の比較

アークティックヘイズの最盛期におこなった ASTAR 2000 キャンペーン中で、最もアークティックヘイズが高濃度に現れた 2000 年 3 月 23 日の散乱係数の鉛直プロファイルを、アークティックヘイズ消失後 (以下、清浄期) のもの (ASTAR 2004, 2004 年 6 月 3 日) と併せて図 5 に示す。2000 年 3 月 23 日は観測期間中で最もヘイズが高濃度になった日であり、地表から高度 3000 m 付近まで全体で散乱係数が $1 \times 10^{-5} [\text{m}^{-1}]$ を越えていた。しかし、アークティックヘイズ期間中でもこのように地表から高度 3000 m 付近まで一様に高濃度のエアロゾルが観測される例はまれであり、多くの場合はいくつかの高度で高い散乱係数が検出される程度である。ヘイズが層状に分布することは、少なくとも鉛直方向には

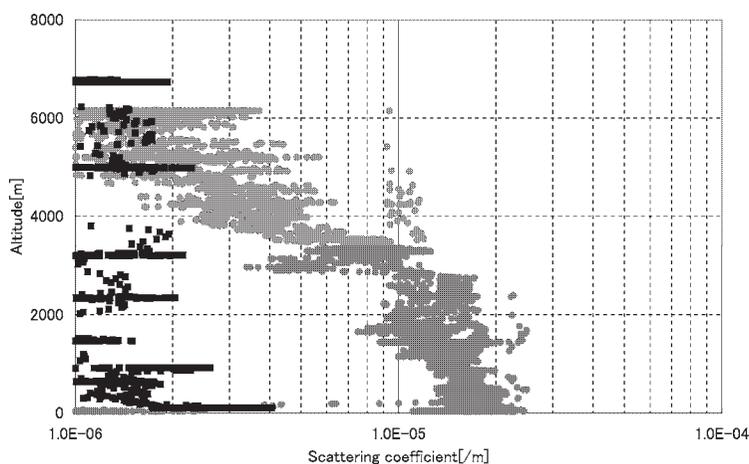


図5 アークティックヘイズ期(●)および清浄期(●)に観測されたエアロゾルの散乱係数の鉛直分布例。2000年3月23日、2004年6月3日の結果。観測地はいずれもスバルバル島ニールソン周辺の海上。

Fig. 5. Examples of vertical profile of scattering coefficients during the arctic haze period (●, 23 Mar. 2000) and clean period (●, 3 Jun. 2004). Both are observed above the ocean around the Ny-Ålesund, Svalbard.

ヘイズが一様でないこと、つまり混合がこれから進行する過程にあることを意味する。また、これまで定点でおこなわれた観測から、ヘイズ現象は時間的に変動していること、すなわち空間的に分布を持つことがわかっている。これらのことは、北半球中緯度から輸送されたエアロゾルが北極域に到達した以降も、引き続き混合過程が進行中であることを示している。

ASTAR 2000, ASTAR 2004 で得られた散乱係数の1分平均値の全データを、1000 m ごとの高度プロファイルとして図6に示す。ASTAR 2000/2004 で得られたデータ数はそれぞれ123, 112であり、最も少ないものはASTAR 2004の高度6000-7000 mで、データ数は10であった。

アークティックヘイズ期のASTAR 2000キャンペーン中に得られた全フライトでの散乱係数の平均値は、地表から高度1000 mまでで $5 \times 10^{-6} [\text{m}^{-1}]$ 程度であり、上空に行くに従って徐々に小さな値となった。一方、アークティックヘイズ解消期から清浄期に相当するASTAR 2004キャンペーンでは、地表付近の最高値でも、 $6 \times 10^{-6} [\text{m}^{-1}]$ レベルであり、高い散乱係数を示す頻度も少なく、ほとんどの観測値は $3 \times 10^{-6} [\text{m}^{-1}]$ 以下であった。また、高度1000 m以上では、散乱係数は鉛直構造をほとんど持たなかった。このように、対流圏低層ではアークティックヘイズ期および清浄期で散乱係数が大きく変動していた。

高度4000 m以下ではアークティックヘイズ期と清浄期で散乱係数の違いが明瞭であったのに対し、それ以上の高度ではどちらの時期においても散乱係数は平均値が 2×10^{-6}

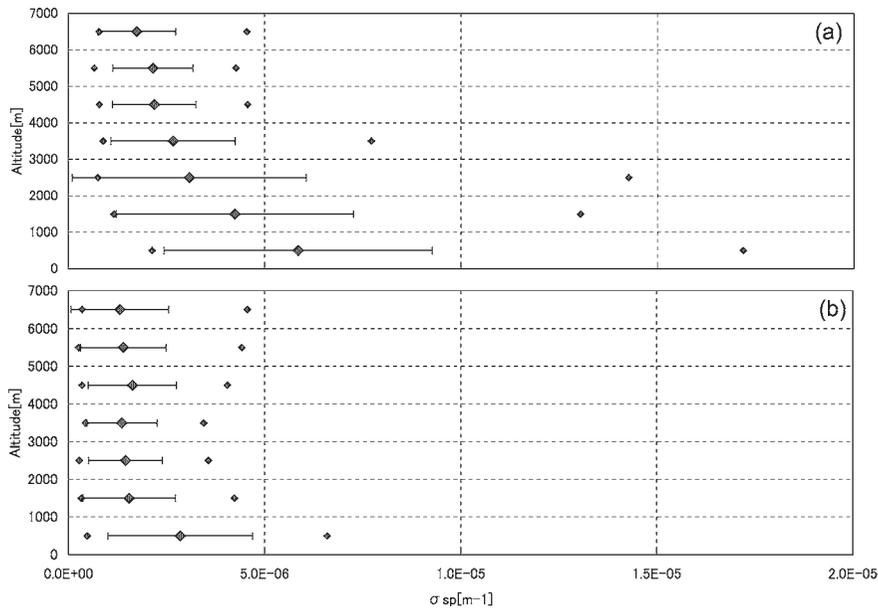


図6 北極域対流圏のエアロゾル散乱係数の鉛直分布 (a) アークティックヘイズ期 (ASTAR 2000: 2000年3-4月), (b) 清浄期 (ASTAR 2004: 2004年5-6月), 図中の点は最小値, 平均値, 最大値を, バーは測定値の標準偏差を示す.

Fig. 6. Statistical data of scattering coefficient observed during ASTAR 2000 (top) and ASTAR 2004 (bottom). Plots indicate minima, averages and maxima. Bars indicate the standard deviations.

$[m^{-1}]$ 程度, 最大値も $5 \times 10^{-6} [m^{-1}]$ 以下と大きな違いは見られなかった. このことはアークティックヘイズが対流圏下層から中層部における現象であり, 対流圏上部は清浄に保たれているというこれまでの報告 (Shaw, 1995) と整合的である.

このような高度プロファイルは, ジェットエンジン搭載の Gulf Stream II を観測プラットフォームとした AAMP 2002 観測でも同様に観測された. この観測キャンペーンでは Dornier 228 では到達できない高度 10 km 以上や成層圏下部での測定もおこなわれた. 2002年3月7, 10, 11日にそれぞれスバル島周辺でおこなった, 3度の観測飛行で得られた散乱係数の高度プロファイルを図7に示す. 7日は低高度域も含めて散乱係数は $2 \times 10^{-6} [m^{-1}]$ 以下と低く, 全体的に大気は清浄であった. 一方, 10, 11日の観測値は低高度では $1 \times 10^{-5} [m^{-1}]$ 程度まで高くなるような場合もあった. しかし, 低高度で高い散乱係数が観測された両日においても散乱係数が高い値を示したのは高度 6000 m 程度までであり, それよりも高々度における散乱係数は低く, その値はインテグレーション・ネフェロメータ (Radiance Research, M903) の検出限界 $1 \times 10^{-6} [m^{-1}]$ 以下であった. この結果は, 先に示したアークティックヘイズが対流圏の現象であることを支持している. これまでアークティックヘイズを対象になされた航空機観測で得られた結果は高度 5000 m 程度までで

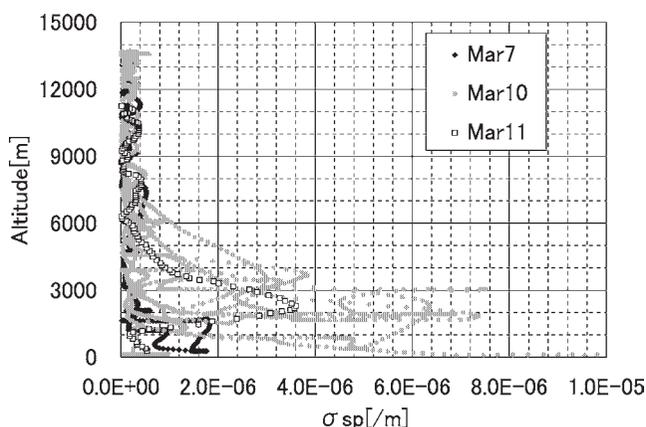


図7 アークティックヘイズ時にジェット観測機により成層圏に渡って測定された、スバルバル島周辺上空におけるエアロゾル光学的散乱係数の高度プロファイル。

Fig. 7. Vertical profiles of scattering coefficient up to the stratosphere observed by a jet aircraft around Svalbard during the Arctic haze period.

あり、ジェットエンジン搭載により高々度まで観測域を広げた今回の結果は、これまでのアークティックヘイズが対流圏に限られた現象であるという知見をさらに強化するものである。

3.3. エアロゾルの粒径分布

エアロゾル粒子の粒径分布についても、アークティックヘイズ期と清浄期では違いが見られた。アキュムレーションモード領域の各粒径(0.1, 0.2, 0.3, 0.5, 1.0 μm , ASTAR 2004では加えて0.7 μm)以上の大きさを持つエアロゾル粒子数を計数するOPCの測定値を用い、エアロゾル粒子が粒径に対して対数正規分布を取ると仮定し、幾何平均径、幾何標準偏差を求めることができる。このようにして得られたアークティックヘイズ期と清浄期のエアロゾル粒径分布を図8に示す。それぞれ、2000年3月23日の高度3300 m、2004年6月3日の高度3200 mにおける各粒径ごとのエアロゾル個数濃度データを用いた。粒径分布を比較するため0.1 μm 以上の総粒子数を1としている。この近似により図のようにアークティックヘイズ期、清浄期いずれにおいてもアキュムレーションモードに2つのモードが見られた。表2に、両データを基に作成した粒径分布のパラメータを示す。アークティックヘイズ期における小粒径側のモード(S mode)の幾何平均径および幾何標準偏差は0.195 μm 、1.26であった。これは航空機観測をおこなったスバルバル島地上において、アークティックヘイズ期に観測されたアキュムレーションモードのエアロゾル粒径分布パラメータ、幾何平均径0.22 μm 、幾何標準偏差1.4 (Covert and Heintzenberg, 1993)に近いものであった。本研究で得られた値が小さめの値になったことの原因として、アキュムレーシ

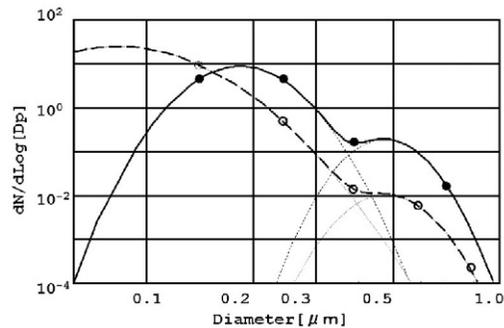


図8 ヘイズ時および清浄時のエアロゾル粒径分布. OPCの各データから対数正規分布を仮定し近似したもの, ヘイズ時(●実線)と清浄時(○破線).

Fig. 8. Size distribution of aerosol particles during the arctic haze period (● solid line) and clean period (○ broken line). Number concentration data from OPC is used under the postulation of log normal distribution.

表2 アークティックヘイズ期および清浄期のエアロゾル粒径分布パラメータ

Table 2. Size distribution parameters for aerosol in the Arctic haze period and clean period.

| Condition \ Parameter | S mode | | L mode | | N_S/N_L |
|---|----------|---------------|----------|---------------|-----------|
| | D_{gN} | σ_{gN} | D_{gN} | σ_{gN} | |
| Arctic haze (23 Mar. 00 altitude 3300 m) | 0.195 | 1.26 | 0.49 | 1.20 | 24 |
| Clean (3 June 04 altitude 3200 m) | 0.097 | 1.47 | 0.50 | 1.22 | 850 |

ンモード径をさらにSモードとLモードに分割していること, 粒子が極めて低い相対湿度に置かれて収縮していることが挙げられる. 清浄期にはSモードの幾何平均径が $0.097 \mu\text{m}$ と小さくなるとともに, 標準偏差が1.26から1.47へ大きくなった. これに対し大粒径側のモード(L mode)は平均径, 標準偏差とも大きな変化は見られなかった. また, 両モード粒子の個数濃度比 N_S/N_L も, ヘイズ期の24に対して清浄期は850と, 小粒径モードの相対的個数が大きくなっていった. このことは, 対流活動が抑制されているヘイズ期間はエアロゾルの大気中での滞留時間が長くなり, 小粒径モードが成長したためと考えられる.

3.4. アークティックヘイズの空間分布について

先述したように, アークティックヘイズは北半球中緯度から輸送された汚染気塊によってもたらされていることが知られている. しかし, 観測されるヘイズは時空間的に変動しており, 北極域において汚染気塊と清浄気塊の混合過程がさらに進行していることが示唆された. そこで, アークティックヘイズが観測された2000年4月14日に, その空間的広がりを明らかにするため, 図3に示すような「カーテンフライト」をおこなった. 図9に

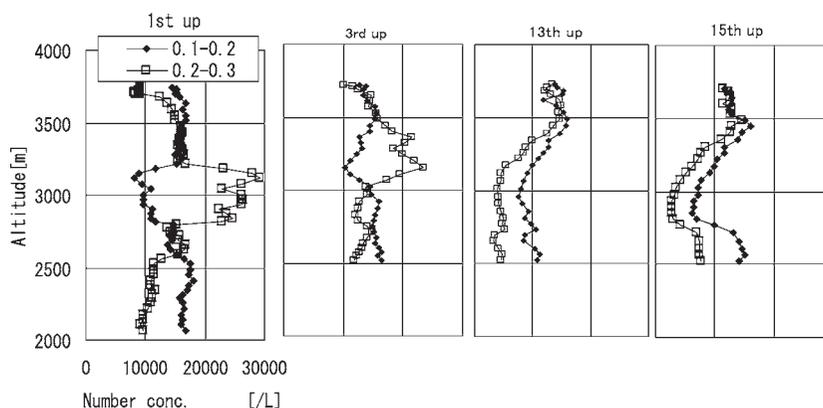


図9 各上昇飛行時に得られたそれぞれ粒径領域 $0.1-0.2 \mu\text{m}$ (◆) および $0.2-0.3 \mu\text{m}$ (□) のエアロゾル個数濃度の鉛直プロファイル。全てのグラフの軸は左端のものと同じ。

Fig. 9. Vertical profiles of Number concentration of aerosol during ascending of "Curtain flight". Size region of $0.1-0.2 \mu\text{m}$ (◆) and those of $0.2-0.3 \mu\text{m}$ (□). All ordinates are the same as the left one.

カーテンフライトで各上昇・下降飛行観測ごとに得られた合計 17 の鉛直プロファイルの内、前半部 (1st, 3rd up) および後半部 (13th, 15th up) に得られた粒子個数濃度の高度プロファイルを示す。前半部では 3000 m 付近の高度に $0.2-0.3 \mu\text{m}$ の粒径を持つ粒子が高濃度で存在する層が観測され、その濃度は $0.1-0.2 \mu\text{m}$ の粒径を持つ粒子数濃度よりも高かった。このヘイズ層が検出される高度は、それぞれの上昇・下降飛行において数百 m の違いが見られた。一方、飛行後半部 (13th, 15th up) ではこのような顕著な層は見られず、最終段階では高度 2500 m および 3500 m 付近において、両粒径範囲の粒子数濃度が相対的に高くなっていた。カーテンフライト期間全域にわたり、6 秒ごとに得られた粒子個数濃度から図 8 の手法を用いて求めた幾何平均と総粒子数濃度の高度分布を図 10a, b に示す。カーテンフライト前半と後半で相対的に粒子数濃度の高い高度が違っていたため、全体の高度プロファイルは特徴的な構造を示さなかった。しかし、縦軸を温位にしてグラフ化すると図 10c, d のように温位 276 K 付近で幾何平均径、および総粒子数濃度の大きな層が見られた。これはカーテンフライト前半と後半で、温位の高度プロファイルが異なっていたためである。図 11 に示すように、フライト前半はヘイズ層が検出された温位 276 K は高度 3200 m 付近であったのに対し、後半は 3500 m 付近になっている。このため、図 10a, b で不明瞭だった構造が、図 10c, d で明瞭になった。このことはエアロゾル粒子が同一高度で一様に分布しているわけではなく 3 次的に分布していること、粒子を含んだ気塊が断熱的に等温位面上を輸送されつつ、次第に粒径が大きくなっていくことを示している。

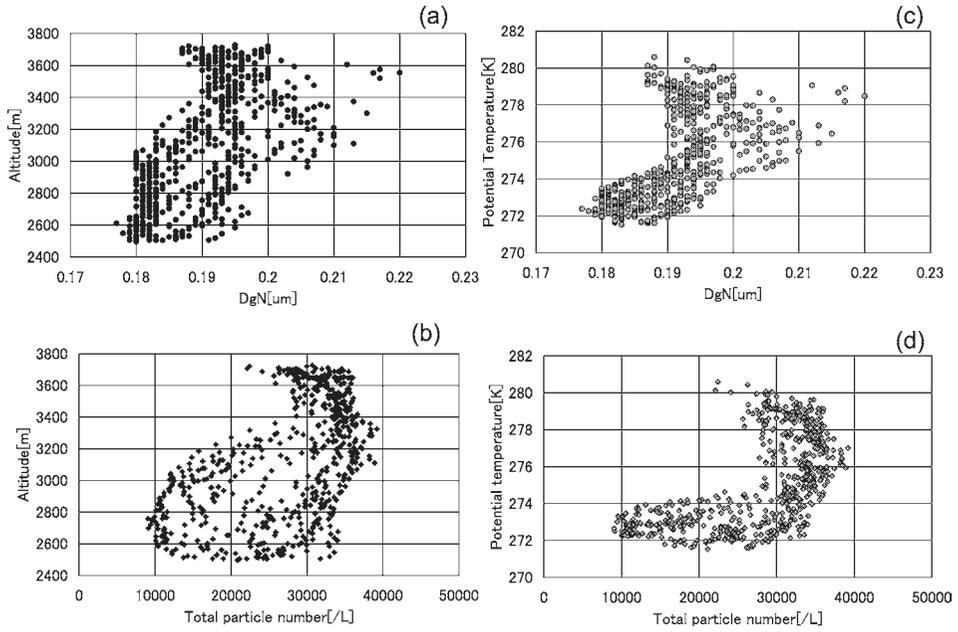


図 10 ヘイズ層粒子の幾何平均径および総粒子数濃度の高度プロファイル (a), (b) およびそれらの温位プロファイル (c), (d).

Fig. 10. Vertical profiles of geometric mean diameter (a) and total particle numbers (b), and their potential temperature profiles (c), (d).

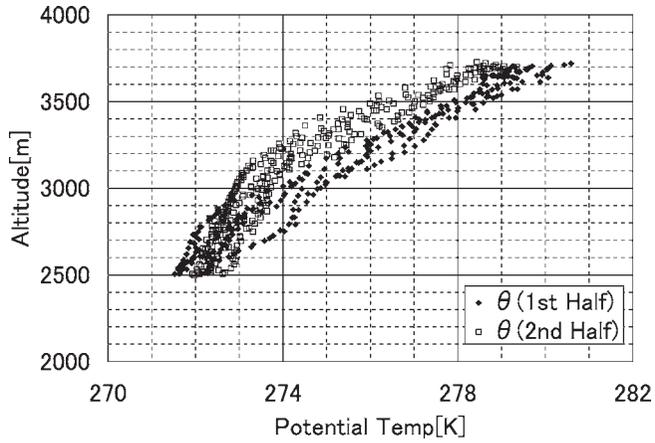


図 11 カーテンフライト時の温位の高度プロファイル

Fig. 11. Vertical profile of potential temperature during curtain flight of 14 Apr. 2000.

4. ま と め

北極域上空の春季エアロゾル観測を目的とした航空機観測 ASTAR 2000, AAMP 2002, ASTAR 2004 によって、アークティックヘイズに関して以下のような知見を得た。

1. アークティックヘイズは対流圏の現象であり、ヘイズ出現時でも成層圏は清浄期と同レベルのエアロゾル濃度である。
2. アークティックヘイズを構成する粒子は、粒径 $0.15\text{--}0.2\ \mu\text{m}$ のものは清浄期のものに比べ大気寿命が長いことためアキュムレーションモード径が大きくなっているが、 $0.5\text{--}0.6\ \mu\text{m}$ 領域の粒子はヘイズの有無にかかわらず存在している。
3. アークティックヘイズは北極域に輸送された後も引き続き混合過程にあり、水平方向に一樣に存在しているものではなく、等温位面上を輸送されている。

文 献

- Covert, D.S. and Heintzenberg, J. (1993): Size distributions and chemical properties of aerosol at Ny Ålesund, Svalbard. *Atmos. Environ.*, **27A**, 2989-2997.
- Engvall, A.-C., Krejci, R., Ström, J., Treffeisen, R., Scheele, R., Hermansen, O. and Paatero, J. (2008): Changes in aerosol properties during spring-summer period in the Arctic troposphere. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 445-462.
- Hara, K., Osada, K., Nishita, C., Yamagata, S., Yamanouchi, T., Herber, A., Matsunaga, K., Iwasaka, Y., Nagatani, M. and Nakata, H. (2002): Vertical variations of sea-salt modification in the boundary layer of spring Arctic during the ASTAR 2000 campaign. *Tellus*, **54B**, 361-376.
- Hara, K., Yamagata, S., Yamanouchi, T., Sato, K., Herber, A., Iwasaka, Y., Nagatani, M. and Nakata, H. (2003): Mixing states of individual aerosol particles in spring Arctic troposphere during ASTAR 2000 campaign. *J. Geophys. Res.*, **108** (D7), 4209, doi:10.1029/2002JD002513.
- Khosrawi, F., Störöm, J., Minikin, A. and Krejci, R. (2010): Particle formation in the Arctic free troposphere during the ASTAR 2004 campaign: a case study on the influence of vertical motion on the binary homogeneous nucleation of $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 1105-1120.
- Shaw, G.E. and Khalil, M.A.K. (1989): Arctic Haze. *Air pollution*, ed. by O. Hutzinger. Berlin, Springer, 69-111. (The handbook of environmental chemistry; v. **4**, pt. B)
- Shaw, G.E. (1995): The Arctic haze phenomenon. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, **76**, 2403-2413.
- Treffeisen, R., Herber, A., Ström, J., Shiobara, M., Yamanouchi, T., Yamagata, S., Holmén, K., Kriews, M., Schrems, O. (2004): Interpretation of Arctic aerosol properties using cluster analysis applied to observations in the Svalbard area. *Tellus*, **56B**, 457-476.
- 山形 定・庄司和弘・村尾直人・太田幸雄 (2002): AAMP 98 で行われた航空機によるエアロゾル中イオン成分測定. *南極資料*, **46** (1A), 167-176.
- Yamagata, S., Kobayashi, D., Ohta, S., Murao, N., Shiobara, M., Wada, M., Yabuki, M., Konishi, H. and Yamanouchi, T. (2009): Properties of aerosols and their wet deposition in the arctic spring during ASTAR 2004 at Ny-Ålesund, Svalbard. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 261-270.
- Yamanouchi, T., Wada, M., Shiobara, M., Morimoto, S., Asuma, Y., Yamagata, S., Yamazaki, T., Ishidoya, S., Kawahara, T., Yabuki, M., Inomata, Y., Herber, A., Graeser, J., Hara, K., Hirasawa, N., Aoki, S., Sugawara, S., Machida, T., Watai, T. and Treffeisen, R. (2003): Preliminary report of "Arctic Airborne Measurement Program 2002" (AAMP 02). *Polar Meteorol. Glaciol.*, **17**, 103-115.
- Yamanouchi, T., Treffeisen, R., Herber, A., Shiobara, M., Yamagata, S., Hara, K., Sato, K., Yabuki, M., Tomikawa, Y., Rinke, A., Neuber, R., Schumacher, R., Kriews, M., Ström, J.,

Schrems, O. and Gernandt, H. (2005): Arctic Study of Tropospheric Aerosol and Radiation (ASTAR) 2000: Arctic haze case study. *Tellus*, **57B**, 141-152.