

大気化学研究

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第 44 号

日本大気化学会

Japan Society of Atmospheric Chemistry

目次

総説

トピックス:「雪氷圏と大気化学」

Article No.

アイスコア-極域海氷-海洋エアロゾル研究の新展開

.....飯塚 芳徳, 的場 澄人, 宮崎 雄三 044A01

積雪中のブラックカーボンの北極広域分布 森 樹大 044A02

気象研究所における積雪モデリング研究.....庭野 匡思, 青木 輝夫 044A03

第 16 回日本大気化学会奨励賞受賞記念論文

気球観測と流跡線解析による対流圏-成層圏間物質輸送の研究 稲飯 洋一 044A04

Source apportionment of carbonaceous aerosols in land based on observations,
remote sensing and transport models 朱 春茂 044A05

会員からのお知らせ

書評 『Atmospheric Multiphase Chemistry: Fundamentals of Secondary Aerosol Formation 』

.....江波 進一 044N01

フランス滞在記 岡本 祥子 044N02

学会からのお知らせ

女性活躍推進 WG の最近の活動と第 3 回女性会員の集いオンライン開催報告

.....江口菜穂, 猪股弥生, 大森裕子, 岡本祥子, 山地一代 044N03

学会開催時の保育支援に関するアンケート結果について.....

..... 岡本祥子, 猪股弥生, 江口菜穂, 大森裕子, 山地一代 044N04

日本地球惑星科学連合 2021 年大会 (JpGU2021) での大気化学セッション開催のお知らせ

..... 日本大気化学会 運営委員会 044N05

第 16 回日本大気化学会奨励賞の選考結果について..... 日本大気化学会 運営委員会 044N06

日本大気化学会会員集会プログラム..... 日本大気化学会 運営委員会 044N07

第 18 回日本大気化学会運営委員会議事録..... 日本大気化学会 運営委員会 044N08

記事のご投稿について

論文や記事のご投稿をご検討されている方は、事前に本誌編集委員または日本大気化学会運営委員までご相談下さい。

大気化学研究編集委員: 森本真司(共同編集長), 山地一代(共同編集長), 竹谷文一, 宮崎雄三

日本大気化学会運営委員(第11期, 2019年7月1日から):

谷本浩志(国立環境研究所), 金谷有剛(海洋研究開発機構), 内田里沙(日本自動車研究所), 江口菜穂(九州大学), 齋藤尚子(千葉大学), 関山剛(気象研究所), 竹川暢之(首都大学東京), 豊田栄(東京工業大学), 永島達也(国立環境研), 中山智喜(長崎大学), 廣川淳(北海道大学), 森本真司(東北大学), 山地一代(神戸大学)

アイスコア-極域海氷-海洋エアロゾル研究の新展開

New perspective of studies on ice core-polar sea ice-marine aerosols

飯塚芳徳^{1*}, 的場澄人^{1*}, 宮崎雄三¹

雪氷圏は地球表層の面積の大きな割合を占め、気候変動・大気汚染等の影響で急速に変化している。極域を中心とした雪・氷床の表面は大気組成と直接相互に作用し、古環境アーカイブとしてのアイスコアに記録され、大気境界層における大気微量成分の反応諸過程に影響を及ぼす。さらに極域における季節海氷域は、海洋表層-大気間の気体(反応性気体や温室効果気体)・エアロゾル収支及び雲の生成を通じた放射収支を理解する上で重要な場である。本稿では、日本における近年のアイスコア研究の動向と成果およびグリーンランド氷床での雪氷研究のレビューとともに、北海道大学の研究グループが関わる、極域における大気-雪氷-海洋間の物質・水循環に関する研究プロジェクトと今後の研究計画についても紹介する。

1. はじめに

地球表層において、雪氷圏は大きな面積割合を占め、気候変動・大気汚染等の影響で急速に変化している。地球温暖化に伴い、北極域では近年、全球平均の2倍のペースで急激な気温上昇が進行している。この気温上昇は、氷河・氷床の融解や季節積雪の根雪期間の減少を加速する。その結果として、雪氷・アルベドフィードバックを助長し、更なる海水準の上昇や周辺環境及び気候状態の変化を引き起こすと予測されている。極域を中心とした雪・氷床の表面は大気組成と直接相互に作用し、古環境アーカイブ(媒体)としてのアイスコアに記録される。また、雪氷表面と大気との相互作用は大気微量成分(ガス・エアロゾル)の反応過程に影響を及ぼす。極域での季節海氷域における海洋表層-大気間のガス・エアロゾル収支は大気光化学反応や、雲の生成を通じた放射収支に影響を及ぼすと考えられるため、諸過程の定量的理解が重要である。

本稿では、日本国内における近年のアイスコア研究とグリーンランド氷床における雪氷・気象観測研究

の動向と成果について、大気化学との関連も含めレビューする。さらに、北海道大学の研究グループが参画する関連研究プロジェクトについても紹介する。

2. 古環境媒体としてのアイスコアの長所

アイスコアとは南極・グリーンランド氷床や山岳氷河などで掘削された円柱状の氷試料のことをいう(図1)。アイスコアは10 m程度の浅層コアから全長3 km



図1 掘削した後のアイスコア グリーンランド南東部で2015年5月に撮影。アイスコアの中央付近に見える黒層は2006年夏の融解再凍結層。アイスコアの下に映っているらせん状の筒は掘削機の一部。

以上にもなる深層コアまで様々な長さを持ち、過去の大気成分(大気気体成分)やエアロゾル(大気液体・固体成分)を保存しているという長所があるため、それらの発生源である海洋・陸域、輸送経路である大気の大気古環境記録媒体として用いられる。世界各国によって多くの掘削が行われているが、本稿では近年 10 年間に絞り、日本のアイスコア研究の動向と成果をまとめる。それ以前のアイスコアの研究歴史・背景などを日本語でまとめたものとしては藤井と本山[2011]、飯塚[2015]などがある。

アイスコアが多数掘削されてきた背景として、アイスコアには古環境アーカイブとしていくつかの長所が存在することが挙げられる。氷河氷床が発達する地域は寒冷なため、夏でも涵養(積雪が堆積)する。積雪が季節を問わず降雪により堆積していくので、連続した降水という古環境媒体を得ることができる。年涵養量が少ない南極内陸などでは数十万年間という古い過去まで復元することができる。現在の南極内陸では年降雪量が 50 mm 以下であり、サハラ砂漠の年間約 130 mm の降水量と比較しても少ない。涵養量の少なさは1年間に降り積もる雪が薄くなることにつながり、相対的により古い過去まで遡れることになる。

アイスコアは過去の大気成分(気体成分)やエアロゾル(液体・固体成分)を保存しているという長所がある。樹木年輪、海底堆積物コアなど様々な古環境媒体があり、それぞれが有する古環境プロキシとして長所・短所があるが、これらの古気候媒体の中で連続的な数十万年間の大気成分やエアロゾルを保存しているのはアイスコアのみである。あくまで個人的な意見として、19 世紀末に浅層コアが、1950 年代に深層コア掘削が始まったアイスコア分野を歴史的にみて、最も大きな成果としては地球温暖化に人為的な温室効果ガスが貢献していることを明確にしたことであると思う。温室効果ガスの代表的な成分は二酸化炭素であるが、大気中の二酸化炭素濃度を連続的に測定したのは 1950 年代からであった。1950 年

代はすでに二酸化炭素濃度の増加期にあり、増加傾向が人為的な寄与であるのか確証はえられなかった。アイスコアを用いて 1950 年以前の二酸化炭素濃度を復元した結果、近年の二酸化炭素濃度の増加は 1850 年ごろから起きたことが明らかになり、1850 年より以前の歴史時代の大气中の二酸化炭素濃度は約 280 ppm と一定であった[例えば *Friedli et al.*, 1986]。このようにアイスコアによる古環境解読の利点の一つに過去の大気環境を復元できることが挙げられ、大気化学分野との親和性が極めて高い分野である。

3. 近年 10 年間の日本のアイスコア研究

過去 10 年間で氷河氷床のアイスコアを掘削している主な日本の研究機関として、国立極地研究所・名古屋大学・千葉大学・北海道大学の 4 機関をあげることができる。各機関の最近の研究内容については以下の引用を参照してほしい。名古屋大学・千葉大学のアイスコア掘削は中央アジア地域を中心とする高山で行っている特色がある(図 2)。名古屋大学のアイスコア研究はヒマラヤ地域を主フィールドとしており、世界的にみても高山域のアイスコアは稀有である。人の生活に近い地域の気候がどのように変化していたか? という特色で氷河湖形成・自然災害・地球温暖化に関する研究を進めている[*Fujita et al.*, 2011; *Nakazawa et al.*, 2011; *Okamoto et al.*, 2011]。千葉大学では、グリーンランド、中央アジアやアラスカなどの広域にわたる氷河の雪氷上に生息する微生物に着目した研究を中心に進めている。アイスコア中に保存された微生物や花粉の定量分析によって過去の生態環境を復元し、さらに微生物の DNA 分析から微生物の種類だけでなく進化速度や分散過程などに注目した研究を行なっている [Uetake et al., 2011; *Takeuchi et al.*, 2014; 2019; *Segawa et al.*, 2018]。

北海道大学のアイスコア研究は過去カムチャッカ・アラスカ氷河などで掘削されてきた[*Matoba et al.*, 2011; *Tsushima et al.*, 2015; *Sasaki et al.*, 2016;

Pokhrel *et al.*, 2014; 2020]が、ここ 10 年はグリーンランド氷床での掘削が多い(図 2)。グリーンランドは欧州や北米などの人為起源物質の発生源に近く、氷床高地は山岳氷河と比べて比較的広範囲の大気環境の代表となりやすい特徴があり、近過去のエアロゾル復元という目的で研究を進めている[Iizuka *et al.*, 2017; 2018; Furukawa *et al.*, 2017; Pavin *et al.*, 2018; Kurosaki *et al.*, 2020; Amino *et al.*, 2020]。国立極地研究所は日本のアイスコア掘削研究の総本山ともいえる。大学のような教育機関では予算的に不可能な深層コア掘削(深さ 1000 m を越えるような長いアイスコアの取得)を実施することができる国内唯一の共同利用研究機関である。長年、南極内陸での深層コア掘削を牽引しており、これまで南極内陸ドームふじ地域で 2 回の深層コアを採取し、過去 72 万年間の古環境を復元できるアイスコアを取得している[Fujita *et al.*, 2016; Kawamura *et al.*, 2017; Uemura *et al.*, 2018; Goto-Azuma *et al.*, 2019; Oyabu *et al.*, 2020]。今後、150 万年間の古環境復元を目的に 3 回目の深層掘削が計画されている。

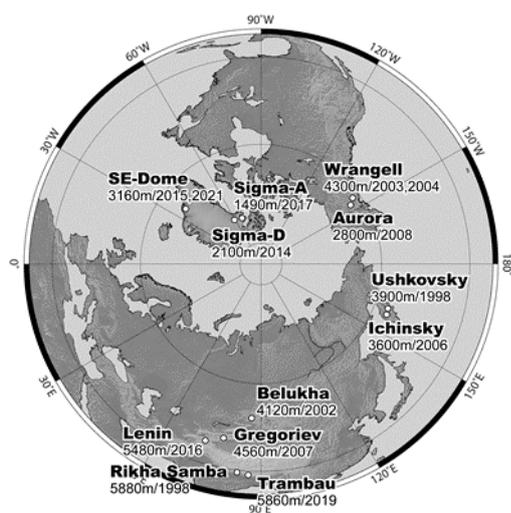


図2 北半球で行われてきた日本のアイスコア掘削地域。各掘削サイトの標高と掘削年が記されている。中央アジアは名古屋大学・千葉大学、カムチャッカ・アラスカ・グリーンランドは北海道大学による。

4. 近過去の沈着エアロゾルフラックスの変動要因と公開データベース

ここで、グリーンランドアイスコアによる過去のエアロゾル復元に関する研究を紹介する。北極グリーンランド氷床は欧州や米国などの人為起源 SO_x や NO_x の排出源地域と近いことから、人為起源エアロゾル変遷の評価に最適な地域であり、過去から現在にかけての人為起源排出物の変遷を解釈し、そのメカニズムを理解することで将来予測に役立てることができる。

アイスコアから古環境情報を抽出するには大きく 2 つの問題がある。一つは、ある深さのアイスコアが何年前に降った雪か精度よく知ることが難しいこと、もう一つは硝酸エアロゾルなどの反応性の高いエアロゾルは揮発や日射で分解しやすいため、積雪が堆積した後に変質し、降雪時の情報が損失してしまうことである。そこで、年降雪量が 1000 mm を超える涵養量が多いグリーンランド氷床南東部[Iizuka *et al.*, 2016] に着目した。涵養量が多い地域は古い過去にさかのぼることができないので、これまで掘削候補地として敬遠されてきたが、他方でアイスコアの 1 年あたりの長さが長くなり、精度の良い年代決定を行える利点がある。さらに、たくさん雪が降るといことは、次々と新しい雪が堆積するので、雪が空気にさらされている時間が短くなるため、アイスコアに含まれている物質が揮発や日射などの再配分の影響を受ける時間が短くなり、物質の保存状態が良くなる。

そういった好条件のグリーンランド南東ドームアイスコア(図 1)を分析したところ、長さ 90 m のアイスコアに過去 60 年間の環境変動が記録されていることがわかり、同位体モデルとアイスコアの水同位体比をマッチングさせるという新しい方法で氷床ドームアイスコアとしてのこれまでの最高精度(誤差 2 か月以内)で氷の年代決定を可能にした[Furukawa *et al.*, 2017]。また、硝酸エアロゾルが積雪堆積後に変質をほぼ受けていないことが確認され、反応性の高いエアロゾルの季節変動スケールの古環境復元が可能になった。復元した結果、硫酸イオンフラックスは 1980 年から減

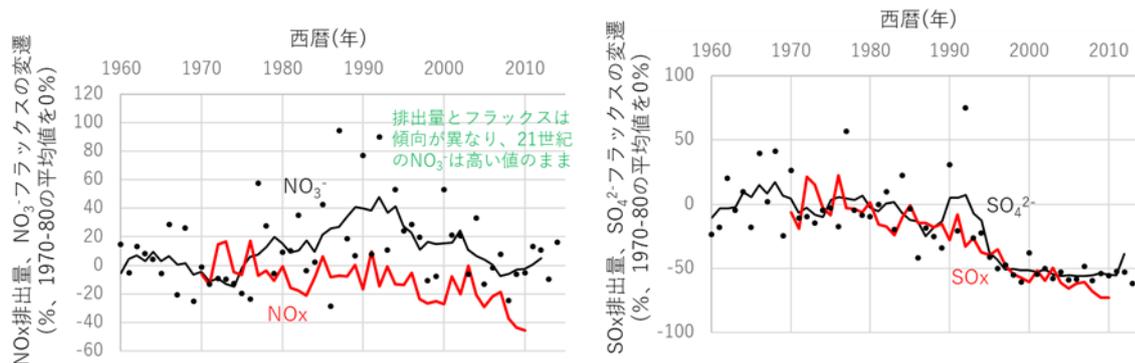


図3 グリーンランド南東ドームアイスコアから復元された硝酸イオン、硫酸イオンフラックス(黒)と後方流跡線解析と各地域からの排出量を加味して推定された南東ドームにおける NO_x 、 SO_x の変動割合(赤線)の比較。Iizuka et al. [2018] を基に作図。

少傾向を示した。他方で、硝酸イオンフラックスは1990年代が最も高く、2000年以降(21世紀)は1960-80年代よりも高い[Iizuka et al., 2018]。グリーンランド南東ドームに到達するであろう SO_x や NO_x の量を計算し、 SO_x 排出量とアイスコアの硫酸イオンフラックスを比較したところ、両者の過去60年間の変動はよく一致した(図3)。これは、硫酸イオンの起源がおもに上述した周辺国からの SO_x 排出によると考えられる。米国や欧州は SO_x 排出量の削減に取り組んでおり、その効果が北極大気でもよく表れていることを示している。しかしながら、 NO_x 排出量とアイスコアの硝酸イオンフラックスの過去60年間の変動はあまり一致していない(図3)。特に、 NO_x 排出量は1970-80年以降、減少傾向を示しているが、アイスコアの硝酸イオンフラックスは1990年代が最も高く、2000年以降(21世紀)は1960-80年代よりも高いという特徴がある。北極大気の硝酸イオンフラックスが、周辺国の NO_x の排出抑制による減少割合を反映せず高い値を維持していることを示している[Iizuka et al., 2018]。

上記の研究は近過去であること、季節フラックスとしてエアロゾル成分のデータを構築していることなどから、大気化学分野とアイスコア分野との連携の橋渡しとして好例である。本研究のいわゆる基本解析データセットは北海道大学の図書館のサイト HUSCAP(<http://hdl.handle.net/2115/67127>)に公開されており、誰でも自由に解析に利用することができる。また、2021年には同じ地域で産業革命以前から現在

までのエアロゾルの季節フラックスデータベース構築を目的とした新しいアイスコア掘削する予定である。大気化学を専門とされる読者の皆様とそのアイスコアを用いて、共同で研究できる機会があることを期待している。

5. グリーンランドにおける日本の雪氷研究

グリーンランド氷床は、世界最大の島であるグリーンランドの80%を覆う平均厚さ2kmの氷体である。この量は、地球上の淡水の7%を占め、仮に全て解けると7mの海水準上昇を引き起こす量に相当する。1990年代までは降水量、氷床の融解量、冰山として流れ出す量など氷床の質量収支を決める要素の定量的な見積もりの精度が低く、温暖化下における氷床質量の増減は不明であった。2000年代になり、グリーンランド氷床の顕著な質量損失が確認され、北半球最大の淡水リザーバーであるグリーンランド氷床の気候変化に対する応答やその応答が地球環境に与える影響への懸念が高まっている。

グリーンランド氷床における雪氷・気象観測研究は1900年代初頭のアルフレッド・ウェゲナーによる観測まで遡るが、本格的な観測が開始されたのは第二次世界大戦後である。冷戦下において、アメリカ合衆国は軍事的な需要性が高くなったグリーンランドに軍事基地やレーダーサイトを展開し[高橋, 2010]、それに付随して、グリーンランド氷床の雪氷・気象学的な観測が広域に行われた[例えば Benson, 1962]。その後、

グリーンランドを領有するデンマーク王国を始め欧米各国がグリーンランド氷床における雪氷・気象学的研究やアイスコアを用いた古環境研究を開始し[例えば *Ohmura and Reeh, 1991*], 現在では, 現地での観測, リモートセンシング, 領域気候モデルなど様々な研究が行われている。

雪氷学者の中谷宇吉郎は, 1950年代後半にグリーンランド北西部の氷床内に構築された Site2 基地において氷の弾性と粘性に関する実験を行い, 試料を日本に持ち帰った。その後, グリーンランドにおける日本の研究機関による研究は, 降雪結晶形状に関する研究[*Harimaya et al., 1993*], 氷床アイスコア掘削[*Kameda et al., 1995*], 氷河上の雪氷微生物の群衆組成に関する研究[*Uetake et al., 2010*], 積雪中の化学成分の広域空間分布に関する研究[*Matoba et al., 2002; 2014*]など短期間で小規模ながら様々な分野の研究が行われた。

日本の研究機関が主体となった継続的な大型観測研究は, 2011~2019年度に行われた SIGMA (Snow impurity and Glacial Microbe effect on abrupt warming in the Arctic)プロジェクト(代表:青木輝夫・現国立極地研究所:科研番号 23221004, 16H01772)によって開始された[例えば青木ら, 2021]。このプロジェクトでは, 近年の温暖化下におけるグリーンランド氷床の質量損失のプロセスに着目した。グリーンランド北西部のカナック村に観測拠点を設立し, 長期観測のための自動気象観測装置を氷床上に設置した[*Aoki et al., 2014*]。氷床上での観測と衛星観測から, 気温の上昇によって生じる積雪粒径の増大化による近赤外域のアルベド低下と微生物が大量に含まれる不純物が氷河表面を覆うことで暗色化域が拡大している実体が明らかになった[例えば *Shimada et al., 2018; Onuma et al., 2020*]。特にシアノバクテリア等の微生物の繁殖の効果による雪氷表面のアルベド低下現象を先駆けて指摘したことは特筆すべき成果といえる[*Takeuchi et al., 2018*]。また, 気象庁非静力学モデル(JMA-NHM)に積雪変質モデル(Snow

Metamorphism and Albedo Process, SMAP)を結合させた極域気候モデル NHM-SMAP が構築され[*Niwano et al., 2018*], 氷床の表面質量収支が精度よく再現されるようになり, 氷床の表面融解面積は雲量の増加によって, 氷床の質量損失量は雲量の減少によって増加することが示された[*Niwano et al., 2019*]。

2011年からは, 日本の北極政策のもと大規模な北極域研究事業(GRENE 北極気候変動研究事業・2011~2015年度, 北極域研究推進プロジェクト/ArCS・2015~2019年度)が実施された。これらの事業においてグリーンランド氷床は研究対象とされ, 2012年からグリーンランド氷床の末端における氷河力学と周辺海域との相互作用に重点をおいた研究が実施され[*Sugiyama et al., 2020*], 氷床が流入するフィヨルド内での特異的な物質循環によって生態系が維持されている実体が明らかになった[*Kanna et al., 2020*]。

6. 北極域研究加速プロジェクト(ArCS II)と季節海氷域における雪氷-海洋大気エアロゾル研究

SIGMA プロジェクトと ArCS で行われたグリーンランド氷床に関する研究は, 北極政策事業の第3フェーズとなる北極域研究加速プロジェクト(ArCS II・2020~2024年度)において継続し実施されている。さらに ArCS II では, 季節海氷域における大気-雪氷間の物質・水循環に関する研究課題が採択された。グリーンランド北西部ではいくつかの居住地域において, 2000年代以降, 気温と海水温の上昇が原因とされる海氷の脆弱性が顕著になり, 冬期間にもかかわらず海氷が流出し, 地域住民の生活が影響を受ける事例が報告されている[*的場と山崎, 2018*]。海氷の流出と新氷の再形成の頻出は自然環境にも影響を与えうる。冬季に海氷が割れた時, 海氷の割れ目の上空で雲が形成されることは現地によく観測される現象であり局所的な水循環への寄与が示唆される。また, 新氷の形成時には新氷上に形成されるフロストフ

ラワ表面に海水成分が選択的に濃縮され、その成分の中のハロゲンが極夜明けに大気中の酸化還元反応に関与している可能性が示唆されている[Hara et al., 2018]。

ArCS II における関連研究課題(図 4)においては、季節海氷域の局所的な水循環と海氷域からの物質放出に関わる大気化学プロセスの定量的な把握と諸過程を各種モデルへの組み込むためのデータベース構築を目的としている。具体的には、グリーンランド季節海氷域沿岸部でのエアロゾル、水蒸気、気象モニタリングとアイスコア掘削により、温暖化下における諸過程の経年変化を明らかにする。この研究課題ではグリーンランド北西部のシオラパルク村に観測拠点を設け、気象要素、水蒸気の水同位体比などのモニタリングとエアロゾル採取、海氷上でのエアロゾル生成過程の観測などを 2021 年冬季より実施し、冬季の季節海氷域における諸過程の解明に取り組む。

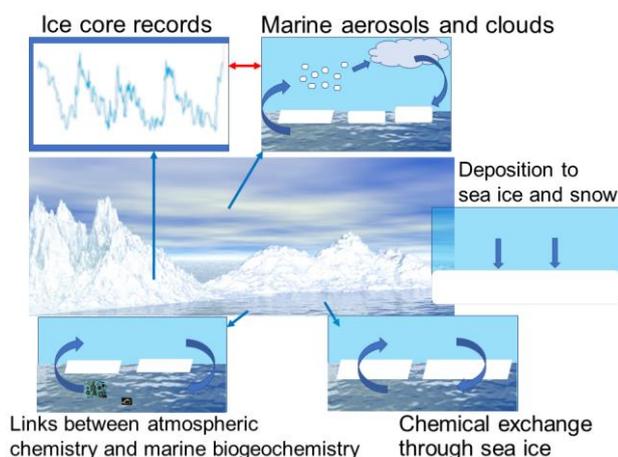


図4 ArCS II 関連課題における季節海氷域での雪氷-大気化学研究の模式図。

海氷と併せ表層海水-大気間のエアロゾル収支に関しては、亜寒帯西部北太平洋域での船舶観測から、表層海水から大気へ移行する微生物由来の有機物の組成が著しく変質すること、及びその有機物量と雲凝結核能は植物プランクトン(珪藻類)の細胞老化の度合いが重要な制御要因であること、などが

明らかになっている[Miyazaki et al., 2018; 2020]。ArCS II における本研究課題の中では、北極域での海洋表層に由来する大気エアロゾルについて、硫酸塩と比べ観測データがほとんど得られていない有機物の生成プロセスと制御要因、放出フラックスを明らかにすることも目的としている。これは北極域での海氷面積の減少、すなわち開水域の面積の増大に伴う海洋表面からのエアロゾル有機物の生成放出フラックスの定量的理解と変動要因、雲生成への影響解明に繋げるものである。さらに、前述のアイスコア解析による過去数十年スケールでのエアロゾル組成(有機物と硫酸塩の存在比)の時間変動とのリンクや氷晶核能との関係の解明もターゲットとしている。このように本研究プロジェクトは、国際研究計画である CATCH (Cryosphere and Atmospheric Chemistry) や SOLAS (Surface Ocean-Lower Atmosphere Study) 等にも深く関連し、季節海氷域が放出する物質が大気化学場や雲核・氷晶核生成へ与える影響、季節海氷域の物質・水循環プロセスの解明を目指す。

謝辞

本稿は JSPS 科研費 (JP18H05292, JP19H04233) 及び北極域研究加速プロジェクト ArCS II (JPMXD1420318865) のもとで実施中の研究活動を含む。図 2 は藤田耕史博士(名古屋大学)に提供いただいた。

参考文献

Amino, T. et al. (2020), Increasing dust emission from ice free terrain in southeastern Greenland since 2000, *Polar Science*, S1873-9652(20)30117-1, doi:10.1016/j.polar.2020.100599.

Aoki et al. (2014), Field activities of the "Snow impurity and Glacial Microbe effect on abrupt warming in the Arctic" (SIGMA) project in Greenland in 2011-2013, *Bull. Glaciol. Res.*, 32, 3-20. doi:10.5331/bgr.32.3.

青木輝夫ら (2021), SIGMA 及び関連プロジェクトによるグリーンランド氷床上の大気・雪氷・雪氷微生物研究—ArCS II

- プロジェクトへのつながり—, 雪氷, 83, in press.
- Benson, C. S. (1962) Stratigraphic studies in the snow and firn of the Greenland Ice Sheet. *Res. Rep. No.70. Snow, Ice, and Permafrost Research Establishment (SIPRE)*, pp. 93.
- Friedli, H., et al. (1986), Ice core record of the $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio of atmospheric CO_2 in the past two centuries, *Nature*, 324, 237-238.
- 藤井理行, 本山秀明編 (2011), アイスコア —地球環境のタイムカプセル—, 成山堂書店, ISBN: 9784425570119, pp.236.
- Fujita, K. et al. (2011), Favorable climatic regime for maintaining the present-day geometry of the Gregoriev Glacier, Inner Tien Shan, *The Cryosphere*, 5(3) 539-549.
- Fujita, S. et al. (2016), Densification of layered firn in the ice sheet at Dome Fuji, Antarctica, *J. Glaciol.*, 62(231) 103 – 123.
- Furukawa, R. et al. (2017), Seasonal scale dating of shallow ice core from Greenland using oxygen isotope matching between data and simulation. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 122. <https://doi.org/10.1002/2017JD026716>.
- Goto-Azuma, K. et al. (2019), Reduced marine phytoplankton sulphur emissions in the Southern Ocean during the past seven glacials, *Nature Communications*, 10, 324.
- Hara, K., S. Matoba, M. Hirabayashi, and T. Yamasaki (2018), Frost flowers and sea-salt aerosols over seasonal sea-ice areas in northwestern Greenland during winter–spring, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8577-8598. doi:10.5194/acp-17-8577-2017.
- Harimaya, T., K. Kikuchi, and K. Sakurai (1993), On snow crystals with small raindrops observed in Greenland, *J. Fac. Sci. Hokkaido Univ*, 9(3), 325-339.
- 飯塚芳徳 (2015), 氷床コア, 低温科学便覧(第6章), 北海道大学低温科学研究所編, 丸善出版, ISBN:978-4-621-08964-4.
- Iizuka, Y. et al. (2016), Glaciological and meteorological observations at the SE-Dome site, southeastern Greenland Ice Sheet, *Bulletin of Glaciological Research*, 34, 1-10, doi: 10.5331/bgr.15R03.
- Iizuka, Y. et al. (2017), A firn densification process in the high accumulation dome of southeastern Greenland, *Arctic, Antarctic, and Alpine Research*, 49, 13-27.
- Iizuka, Y. et al. (2018), A 60 year record of atmospheric aerosol depositions preserved in a high accumulation dome ice core, Southeast Greenland, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123. <https://doi.org/10.1002/2017JD026733>.
- Kameda, T., et al. (1995), Melt features in ice cores from Site J, southern Greenland: some implications for summer climate since AD1550. *Ann. Glaciol.*, 21, 51-58. doi:10.3189/S0260305500015597.
- Kanna, N., S. Sugiyama, Y. Fukamachi, D. Nomura, and J. Nishioka (2020), Iron supply by subglacial discharge into a fjord near the front of a marine-terminating glacier in northwestern Greenland, *Global Biogeochem. Cycles*, 34, e2020GB006567, doi:10.1029/2020GB006567.
- Kawamura, K. et al. (2017), State dependence of climatic instability over the past 720,000 years from Antarctic ice cores and climate modeling, *Sci. Adv.*, 3(2) e1600446.
- Kurosaki, Y. et al. (2020), Reconstruction of sea ice concentration in northern Baffin Bay using deuterium excess in a coastal ice core from the northwestern Greenland Ice Sheet, *J. Geophys. Res. Atmos.*, <https://doi.org/10.1029/2019JD031668>.
- Matoba, S., T. Yamasaki, and H. Motoyama (2002), Meteorological observation and chemical composition of precipitation during winter and spring season in 1997/98 at Siorapaluk, northwestern Greenland, *Bull. Glaciol. Res.*, 19, 25-31.
- Matoba, S., T. Shiraiwa, A. Tsushima, H. Sasaki, and Y. D. Muravyev (2011), Records of sea-ice extent and air temperature at the Sea of Okhotsk from an ice core of Mount Ichinsky, Kamchatka, *Ann. Glaciol.*, 58, 44-50.
- Matoba, S., T. Yamasaki, M. Miyahara and H. Motoyama (2014), Spatial variation of $\delta^{18}\text{O}$ and ion species in the snowpack of the northwestern Greenland ice sheet, *Bull. Glaciol. Res.*,

- 32, 79-84. doi:10.5331/bgr.32.79.
- 的場澄人, 山崎哲秀 (2018), 2016年12月にグリーンランド北西部カナック村で生じた海水流出事故と漁業被害—グリーンランド北西部における社会・自然環境と生業の変化—, *北海道の雪氷*, 37, 51-54.
- Miyazaki, Y. et al. (2018), Chemical transfer of dissolved organic matter from surface seawater to sea spray water-soluble organic aerosol in the marine atmosphere, *Scientific Reports*, 8, 14861, doi:10.1038/s41598-018-32864-7.
- Miyazaki, Y. et al. (2020), New index of organic mass enrichment in sea spray aerosols linked with senescent status in marine phytoplankton, *Scientific Reports*, 10, 17042, doi: 10.1038/s41598-020-73718-5.
- Nakazawa, F. et al. (2011), Establishing the timing of chemical deposition events on Belukha Glacier, Altai Mountains, Russia, using pollen, *Analysis Arctic, Antarctic, and Alpine Research*. 43(1) 66 – 72.
- Niwano, M. et al. (2018), NHM–SMAP: spatially and temporally high-resolution nonhydrostatic atmospheric model coupled with detailed snow process model for Greenland Ice Sheet, *The Cryosphere*, 12, 635-655. doi:10.5194/tc-12-635-2018.
- Niwano, M., A. Hashimoto, and T. Aoki (2019), Cloud-driven modulations of Greenland ice sheet surface melt, *Sci. Rep.*, 9, 10380, doi:10.1038/s41598-019-046152-5.
- Ohmura, A. and Reeh, N. (1991), New precipitation and accumulation maps for Greenland. *J. Glaciol.*, 37(125), 140-148.
- Okamoto, S. et al. (2011), Reevaluation of the reconstruction of summer temperatures from melt features in Belukha ice cores, Siberian Altai, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 116(2) D02110.
- Onuma, Y., et al. (2020), Physically based model of the contribution of red algae cells to temporal changes in albedo in northwest Greenland, *The Cryosphere*, 14, 2087-2101. doi:10.5194/tc-14-2087-2020.
- Oyabu, I. et al. (2020), Compositions of dust and sea salts in the Dome C and Dome Fuji ice cores from last glacial maximum to early Holocene based on ice - sublimation and single - particle measurements, *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi://10.1029/2019JD032208.
- Pavin, F. et al. (2018), Assessment for paleoclimatic utility of biomass burning tracers in SE-Dome ice core, Greenland, *Atmos. Environ.*, 196, 86-94, doi:10.1016/j.atmosenv.2018.10.012.
- Pokhrel, A. et al. (2014), Ice core profiles of saturated fatty acids (C12:0-C30:0) and oleic acid (C18:1) from southern Alaskan since 1734 AD: A link to climate change in the Northern Hemisphere, *Atmos. Environ.*, 100, 202-209, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.11.007.
- Pokhrel, A. et al. (2020), Ice core records of levoglucosan and dehydroabietic and vanillic acids from Aurora Peak in Alaska since the 1660s: a proxy signal of biomass-burning activities in the North Pacific Rim, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 597-612. doi: 10.5194/acp-20-597-2020.
- Sasaki, H. et al. (2016), Temporal variation in iron flux deposition onto the northern North Pacific reconstructed from an ice core drilled at Mount Wrangell, Alaska, *SOLA*, 12, 287-290, doi:10.215/sola.2016-056.
- Segawa, T. et al. (2018), Demographic analysis of cyanobacteria based on the mutation rates estimated from an ancient ice core, *Heredity*, 120(6), 562-573.
- Shimada, R., N. Takeuchi, and T. Aoki (2016), Inter-annual and geographical variations in the extent of bare ice and dark ice on the Greenland Ice Sheet derived from MODIS satellite images, *Front. Earth Sci.*, 4:43, doi:10.3389/feart.2016.00043.
- Sugiyama, S., et al. (2021), Rapidly changing glaciers, ocean and coastal environments, and their impact on human society in the Qaanaaq region, northwestern Greenland, *Polar Science*, S1873-9652(20)30155-9, doi: https://doi.org/10.1016/j.polar.2020.100632.
- 高橋美野梨 (2010), ミサイル防衛とグリーンランド—「チューレ問題」から「イガリク協定」締結へ, *地域研究*, 10(1),

171-197. doi:10.24638/jcasreview.10.10-171.

Takeuchi, N. et al. (2014), Disappearance of glaciers in the Tien Shan Mountains in Central Asia at the end of Pleistocene, *Quaternary Science Reviews*, 103, 26–33, doi:10.1016/j.quascirev.2014.09.006.

Takeuchi, N., et al. (2018), Temporal variations of cryoconite holes and cryoconite coverage on the ablation ice surface of Qaanaaq Glacier in northwest Greenland, *Ann. Glaciol.*, 59, 21-30. doi:10.1017/aog.2018.19.

Takeuchi, N. et al. (2019), Annual layer counting using pollen grains of the Grigoriev ice core from the Tien Shan Mountains, central Asia, *Arctic, Antarctic, and Alpine Research*, 51(1) 299 - 312

Tshusima, A. et al. (2015), Reconstruction of recent climate change in Alaska from the Aurora Peak ice core, central Alaska, *Clim. Past*, 11, 217-226, doi:10.5194/cp-11-217-2015.

Uemura, R. et al. (2018), Asynchrony between Antarctic temperature and CO₂ associated with obliquity over the past 720,000 years, *Nature Comm.*, 9(1) 961.

Uetake, J., T. Naganuma, M. B. Hebsgaard, H. Kanda, and S. Kohshima (2010), Communities of algae and cyanobacteria on glaciers in west Greenland, *Polar Sci.*, 4(1), 71-80. doi:10.1016/j-polar.2010.03.002.

Uetake, J. et al. (2011), Evidence for propagation of cold-adapted yeast in an ice core from a Siberian Altai glacier, *J. Geophys. Res.*, 116(G1) G01019.

原稿受領日: 2020年11月6日

掲載受理日: 2020年12月15日

著者所属:

1. 北海道大学 低温科学研究所

*** 責任著者:**

Yoshinori Iizuka <iizuka@lowtem.hokudai.ac.jp>

Sumito Matoba <matoba@lowtem.hokudai.ac.jp>

積雪中のブラックカーボンの北極広域分布

Black carbon in the Arctic snowpack

森樹大^{1*}

ブラックカーボン(以下, BC)粒子は, 太陽放射の可視部を強く吸収し, 大気を加熱する。さらに, 雪氷面に沈着すると, 雪氷面の反射率を低下させ, 雪面の融解を加速させる。特に雪氷面の多い北極圏では, その雪面反射率の低下が顕著になるため, BC 粒子による加熱効果が北極圏の温暖化要因の一つとして考えられている。その影響を正しく評価するためには, 北極圏に沈着した BC 質量濃度や粒径の広域分布を明らかにする必要がある。2012 ~ 2016 年の積雪時期に, 北極圏の 6 つの領域(フィンランド, アラスカ, 北シベリア, 南シベリア, グリーンランド, スピッツベルゲン)で積雪調査が行われ, 約 300 の積雪試料を採取した。本稿では, 1) 積雪中の BC 質量濃度の測定法と, 2) 積雪中の BC 質量濃度, 沈着量, 粒径の北極広域分布について紹介する。

1. 研究背景

近年, 北極圏の温暖化が急速に進行しており, その進行度合いやその要因の科学的, 且つ定量的な解明が求められている。その要因の一つに, ブラックカーボン(以下, BC)粒子による影響が挙げられる。BC 粒子は, 直径 ~40 nm の炭素球から成る凝集体であり, 個々の炭素球がグラファイト様構造をするため, 他の光吸収性粒子(鉱物粒子, 光吸収性有機エアロゾル, 黒色酸化鉄粒子など)に比べ, 遥かに高い光吸収効率を持つ[Bond et al., 2013; Liu et al., 2020; Moteki et al., 2017]。

図 1 に, BC 粒子が北極圏に輸送されるまでの概念図を示す。BC 粒子は主に, 化石燃料やバイオマス燃料の不完全燃焼によって発生し, その排出量は中緯度で多く, 北極圏に向かうにつれて少なくなる。排出された BC 粒子は, 輸送時にガス成分の凝結や他のエアロゾルとの凝集により, 親水性の被膜を持つようになる(変質過程)。内部混合した BC 含有粒子の一部は, 主に雲凝結核として働き, 雲・降水過程を経て大気から除去される(湿性沈着)。一方, 降水を経

験しない BC 粒子は自由対流圏へと輸送される。降水を介さず, 粒子のまま地表面へと沈着するプロセス(乾性沈着)もあるが, その沈着量は湿性沈着量に比べて十分に少ない[Sinha et al., 2018]。

BC 粒子が積雪や海氷面に沈着すると, 表面の反射率が低下し, 雪面の融解を一層加速させる。特に雪氷面の多い北極圏では, その表面の融解の影響が大きいため, BC 粒子による加熱効果が北極圏の



図 1 北極圏に輸送されるブラックカーボン (BC) 粒子。発生から沈着までの一連の過程を含む。

温暖化を促進させることが知られている。

最先端の気候モデルによると、北極圏における BC 粒子は二酸化炭素について 2 番目に高い正の放射強制力を持つと推算されている[Oshima *et al.*, 2020]。しかしながら、その推算過程にある BC 粒子の雪面反射率の推算値には、大きな不確かさがある。その雪面反射率の推算は、雪面に沈着した BC 質量濃度やその微物理量(粒径、屈折率など)、雪質、氷粒子の微物理量(粒径や形状など)など、複数の物理量に支配されるため、非常に複雑である[AMAP 2015; Hadley and Kirchstetter, 2012; Wang *et al.*, 2020]。特に BC 粒子の雪面反射率の推算値は、雪面の BC 質量濃度の影響を強く受けるため、北極圏に沈着した BC 質量濃度を定量的に理解することが重要になる。

これまで多くの研究グループが北極広域で積雪を採取し、北極圏に沈着した BC 質量濃度を調査してきた[Carmagnola *et al.*, 2013; Clarke and Noone, 1985; Doherty *et al.*, 2010; Forsström *et al.*, 2013; Meinander *et al.*, 2013; Pedersen *et al.*, 2015; Svensson *et al.*, 2013]。ここで示す北極広域とは、フィンランド、アラスカ、カナダ、グリーンランド、ノルウェー、スピッツベルゲン、ロシア、北極海の 8 つの領域である。特に、Doherty *et al.*[2010] は 1998 年と 2005 ~ 2009 年の積雪時期に積雪を採取し、その積雪時期に採取した雪の分析から、沈着した BC 質量濃度の北極広域分布を初めて明らかにした。これらの観測データをもとに、気候モデルで計算した積雪中 BC 質量濃度の検証が行われ、その推算値から BC 粒子の雪面反射率の推算も行われてきた[Dou and Xiao, 2016; Jiao *et al.*, 2014; Lee *et al.*, 2013]。しかしながら、積雪中 BC 質量濃度の測定には、BC 粒子以外の光吸収性粒子(例えば、鉱物粒子)の同時計測や、フィルター上に堆積した粒子の多重散乱の干渉から約 40 % も BC 質量濃度を過大評価する問題があった[Schwarz *et al.*, 2012]。また、熱分離・光学補正法を用いた測定では、BC 粒子と有機炭素の判別の困難さから数十%の系統誤差が生じる問題もあった

[Kondo *et al.*, 2011]。このように、BC 質量濃度の定量性に大きな系統誤差があるため、これまで推算した雪面反射率にも波及的に大きな誤差が生じた可能性がある。したがって、BC 粒子の雪面反射率を正しく推算するには、まず、積雪中 BC 質量濃度を高い精度で測定する必要がある。

本稿では、従来と現在(本研究)の測定法について紹介したあと(2 章)、積雪試料の採取方法(3 章)について述べる。最後に、最先端の測定法を用いて分析した、積雪中 BC 質量濃度、沈着量、粒径の北極広域分布(4 章)について述べる。

2. 積雪中 BC 質量濃度の測定法

2.1 従来の分析法

従来の積雪中 BC 質量濃度の測定には、Integrating Sphere/Integrating Sandwich spectrometer (ISSW) method と Thermal-Optical Transmittance (TOT) method の 2 つが使用されてきた。従来の測定法の本質的な問題点を下記に記す。

ISSW 法とは、吸収のオングストローム指数を仮定し、特定の波長域(420 ~ 730 nm)でフィルター上に捕集された粒子の光吸収係数を測定する方法である。さらに粒子の質量吸収断面積($6.3 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$)を仮定することで、積雪中の BC 質量濃度を算出する。しかしながら、BC 粒子以外の光吸収性粒子(例えば、鉱物粒子)がフィルターに捕集されることや、フィルター上に堆積した粒子による多重散乱の干渉から、BC 質量濃度を約 40 % も過大評価してしまう[Schwarz *et al.*, 2012]。その他にも、BC 質量濃度の校正に使用される標準粒子(Fullerene soot や Monarch 71)の光学特性が、標準粒子間で大きく異なることも大きな系統誤差を生む要因の一つである。

TOT 法とは、フィルター上に捕集した炭素成分を熱分離することで、有機炭素と BC の炭素量をそれぞれ定量し、さらにフィルター上に炭化した有機炭素量を補正する方法である(熱分離・光学補正法)。しかしながら、この手法には BC と有機炭素の判別の困難さ

から、数十%の系統誤差が生じてしまう[Kondo *et al.*, 2011]。さらに、分析には十分な水試料(~100 mL)が必要であるため、限られた試料の分析には適さない[Lim *et al.*, 2014]。

上記のような不確かさはあるが、ISSW 法は主にワシントン大学の研究グループで、TOT 法は Finnish Meteorological Institute や Norwegian Polar Institute など複数の研究機関で使用されている。

2.2 本研究の分析法

本研究では、ネブライザー (Marin-5; Cetac Technologies Inc.)と Single-Particle Soot Photometer (SP2) を組み合わせた手法(図2)を用いて、水試料に含まれる粒径別 BC 質量濃度を測定した[Katich *et al.*, 2017; Mori, 2017; Mori *et al.*, 2016; Moteki and Mori, 2015]。

ネブライザーは、同軸型ネブライザー、加熱チャンバー、冷却器の3つから構成される(図3)。まず、積雪試料を常温で融解後、水試料を一定流量で同軸型ネブライザーの先端で清浄空気によって加圧され、細かい液滴に噴霧される。直後の加熱部(300 °C)で液滴が蒸発し、エアロゾル粒子と水蒸気を生成した後、ネブライザーの下流部にある冷却器(3 °C)で水蒸気を取り除くことで、エアロゾル粒子を抽出する。

水試料に含まれる BC 質量濃度を算出するため、ネブライザーの粒子抽出効率を実験的に決定した。数濃度を調整した、単分散のポリスチレンラテックス粒子の懸濁液をネブライザーに導入し、ネブライザーの下流部でその粒子数濃度を測定した。その結果、このネブライザーは水試料中に浮遊する 70 ~ 2,000 nm の粒子数を約 50 % の効率で、粒径に依存せずに抽出できることが分かった。残りの約 50 % の粒子は、加熱部で蒸発しきれなかった液滴とともに排水されたと考えられる[Mori *et al.*, 2016]。一方、2,000 nm 以上の粒子は配管内での粒子損失(主に重力沈降)により、粒子抽出効率は大きく減少した。

次にレーザー誘起白熱法を用いた SP2 について簡単に紹介する。エアロゾル粒子がレーザービームを横断する際、粒子から散乱・白熱光が射出される。SP2は2つの異なる波長帯の白熱光を同時に測定し、その強度比から粒子の沸点の指標となる黒体等価温度を測定する。BC 粒子の黒体等価温度は 4,200 ~ 4,300 K であり、他の光吸収性粒子の黒体等価温度とは大きく異なるため、その白熱光の強度比から BC 粒子を選択的に区別することが可能である[Moteki and Kondo, 2010]。個々の BC 粒子の質量を測定するため、標準試料である Fullerene Soot (FS; Alpha Aeser Inc., Wardhill, MA, USA)を用いて、白熱光強度と BC 質量の関係を校正した。

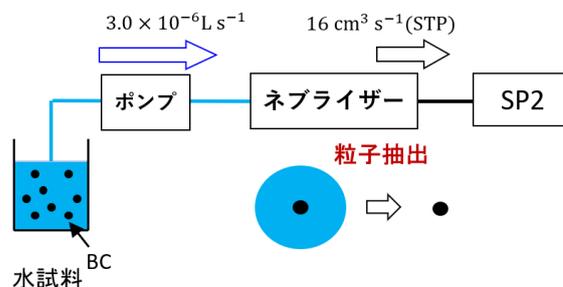


図2 本研究で用いている水中に含まれるBC粒子の検出法の概念図。SP2: Single-Particle Soot Photometer

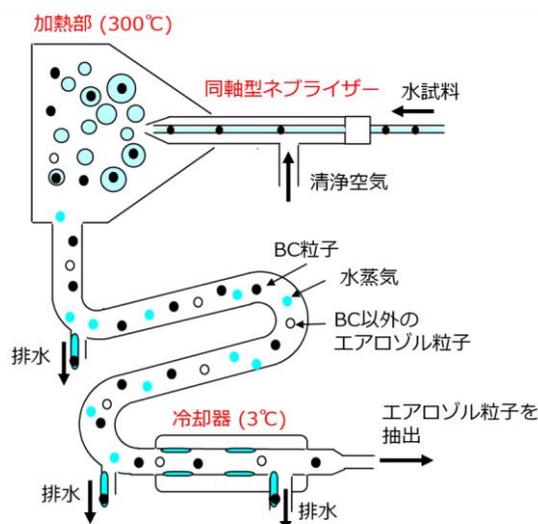


図3 図2中の「ネブライザー」での、水中に含まれる粒子を抽出する原理。Mori *et al.* [2016] より一部変更。

市販の SP2 の場合, BC 粒子の有効密度 (1.8 g cm^{-3}) を仮定すると, $70 \sim 500 \text{ nm}$ の質量等価粒径を持つ BC 粒子の検出が可能である。しかしながら, 降雪中には, 直径 $1,000 \text{ nm}$ 以上の BC 粒子の存在が Schwarz *et al.*[2013] によって報告されている。そこで本研究では, 積雪中 BC 質量濃度の過小評価を避けるため, 既存の SP2 に備わる散乱光の検出器を白熱光の検出器に変更し, さらにその検出感度を下げることによって, BC 粒子の検出粒径範囲を約 $4,000 \text{ nm}$ まで拡張させた[Mori *et al.*, 2016]。この改良により, $70 \sim 4,170 \text{ nm}$ における粒径別 BC 数・質量濃度の測定を可能にした。

水試料中の粒径別 BC 質量濃度は, ポンプやネブライザーの流速, ネブライザーの粒子抽出効率, SP2 で測定された粒径別 BC 質量濃度から算出され, その測定精度は約 16% であった。高い測定精度で且つ, 水試料中の BC 質量濃度や粒径分布の再現性も高いことから, この手法は北極圏や南極, 東アジア域で採取した様々な水試料(積雪・降雨・降雪・アイスコア)の分析に, 幅広く利用されている[Kinase *et al.*,

2019; Konya *et al.*, 2020; Marquette *et al.*, 2020; Mori *et al.*, 2019; 2020; Moteki *et al.*, 2019; Ohata *et al.*, 2016; Sinha *et al.*, 2018]。

本測定法に関する, 他の利点を下記に記す。

1. グリーンランドで採取したアイスコア試料を用いて, 試料を融解した初日と融解後 10 カ月経過した BC 質量・数濃度分布を比較した(図 4a, b)。さらに, ニーオルスンで採取した積雪試料を用いて, 試料の融解後 13 カ月と 42 カ月経過した BC 質量・数濃度分布も比較した(図 4c, d)。融解初日から長期の間(約 42 カ月間), 水試料を冷蔵庫に保管しつつけても, BC 質量・数濃度分布ともに, ほとんど変化は見られなかった。水中では BC 粒子の分裂や凝集が起こらず, 水中における BC 粒径分布は安定であることを示唆している。また, 水試料中の BC 質量濃度や数濃度の再現性は 20% 以内であった。
2. 個数(質量)濃度の高い試料を同軸型ネブライザーに導入すると, 噴霧時に 1 つの液滴に複数の

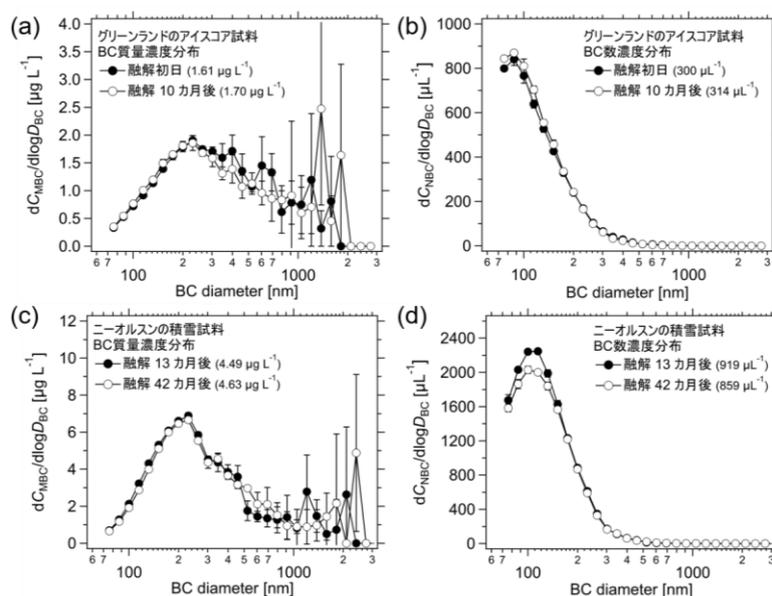


図 4 グリーンランドで採取したアイスコア中の (a) BC 質量濃度分布と (b) BC 数濃度分布。融解 1 日目(●)と融解後 10 カ月 (○) 経過した結果を示す。ニーオルスンで採取した積雪試料中の (c) BC 質量濃度分布と (d) BC 数濃度分布。試料の融解後, 13 カ月 (●) と 42 カ月 (○) 経過した結果を示す。測定された BC 質量濃度や数濃度も図中に示した。エラーバーは, ポアソン分布を仮定した標準不確かさを表す。Mori *et al.* [2019] より一部変更。

BC 粒子が入り、液滴の蒸発時に BC 粒子同士が凝集する可能性がある。室内実験や理論計算によると、水試料に含まれる BC 質量濃度が $70 \mu\text{g L}^{-1}$ 以下であれば、BC 粒子同士の凝集は起こらない。

3. ネブライザーが高い粒子抽出効率(~50 %)を持つため、少量(~5 mL)の水試料でも、統計的に有意な BC 粒子数の分析が可能である。

3. 積雪試料の採取方法

2012 ~ 2016 年の積雪時期(10 ~ 3 月)に、フィンランド、アラスカ、北シベリア、南シベリア、グリーンランド、スピッツベルゲンの 6 つの領域で積雪を採取した(図 5a; 白丸)。積雪試料の分類は、雪面(0 cm)から 2 cm もしくは 5 cm に積もった試料、2 ~ 10 cm まで積もった試料、積もり始めから積雪採取時までの全層試料の 3 種類である。合計で約 300 の試料を採取し、分析に用いた(表 1)。全層の試料採取は、フィンランド、アラスカ、南シベリア、スピッツベルゲンの 4 つの領域で行われた。スピッツベルゲンでは 2 ~ 3 cm の層ごとの試料を表層から最下層まで採取し、それ以外の領域ではアクリル製のチューブサンプラーを用いて全層を採取した。0 ~ 10 cm までの試料については、ステンレス製の雪べらを使用し、固体微粒子の含有量が極めて少ないパウダーフリーのポリ袋に試料を捕集した[Doherty et al., 2010; Sinha et al.,

2018; Tollefson, 2009]。

捕集した試料は常温で融解し、ガラス瓶に移し替えた後、国立極地研究所の冷蔵庫に保管された。試料採取後、27 カ月以内に分析を行ったため、試料保管中における BC 粒径分布の変化は小さい。

雪氷面が融解すると表層に BC 粒子が残り、BC 質量濃度が 3 ~ 20 倍も濃縮する[Forsström et al., 2013; Meinander et al., 2013]。本試料の採取場所の地上気温は、降雪開始から積雪採取時まで(10 ~ 3 月)ほとんど $0 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 以下であった。そのため、雪氷面融解による濃縮の影響は小さいと考えられる。

4. 北極圏に沈着した BC の広域分布

この章では、北極圏に沈着した BC 質量濃度、沈着量、粒径の広域分布を、BC 排出フラックスの広域分布を用いて解釈する。

降水中の BC 質量濃度は、地上から下部対流圏までの BC カラム量を強く反映すると考えられている。実際、中国大陸からの汚染空気塊の下流域にあたる沖縄県の辺戸岬において、地上大気中と降水中の BC 質量濃度の月平均値の間に高い相関が見られた[Mori et al., 2014]。しかしながら、北極圏において地上大気中と降水中の BC 質量濃度との関係を調べた例はない。そこで本解析では、BC 排出フラックスの分布が地上大気中の BC 質量濃度の空間分布に影響を与えると仮定し、北極圏に沈着した積雪中の BC 質量濃度と BC 排出フラックスとの関係を調べた。積雪時期(10 ~ 3 月)におけるバイオマスバーニング起源の BC 排出フラックスは非常に小さいため、人為起源の BC 排出フラックスのみを考慮し、加えて、人為起源の BC 排出フラックスの年々変化は非常に小さいため、本解析では 2013 年における人為起源の BC 排出フラックスのデータを用いた(MACC/CityZEN EU projects (<https://eccad3.sedoo.fr>))(図 5a)。積雪中 BC 質量濃度の広域分布(カラープロット)と領域ごとの中央値を図 5b に表す。フィンランドや南シベリア、アラスカの一部の領域では BC 排出フラックスが

表 1 年ごとに採取した場所の数と試料数

領域	年	サンプリング地点	表層 (0-2cm, 0-5cm)	表層-10cm	全層
フィンランド	2013	11	-	-	11
	アラスカ				
	2012	15	-	-	15
	2013	14	18	17	19
	2014	13	13	13	13
	2015	11	26	20	28
シベリア (南) (北)	2013	24	-	-	24
	2015	5	5	-	-
グリーンランド	2012	1	8	5	-
	2013	2	10	3	-
	2014	7	9	-	-
	2015	7	9	9	-
	2016	8	8	8	-
スピッツベルゲン (ニーオルスン)	2013	2	2	2	2

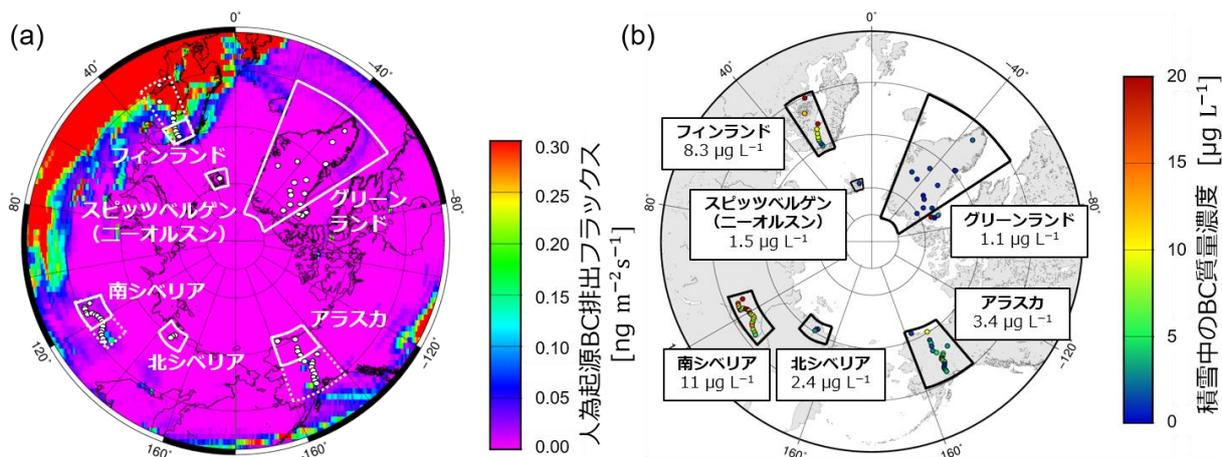


図 5 (a) 積雪採取場所 (白丸) と 2013 年における人為起源の BC 排出フラックス (MACC/CityZEN EU projects) (カラープロット) の広域分布。白線で囲まれた領域は BC 排出フラックスが小さい領域 ($\leq 0.1 \text{ ng m}^{-2} \text{ s}^{-1}$), 白の点線で囲まれた領域は BC 排出フラックスが大きい領域 ($> 0.1 \text{ ng m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) を表す。(b) 積雪中 BC 質量濃度 (カラープロット) と領域ごとにおける積雪中 BC 質量濃度の中央値。Mori *et al.* [2019] より, 一部変更。

高く (図 5a の白の点線領域), その領域に沈着した BC 質量濃度も高くなることがわかった。そこで下記の解析では, BC 排出フラックスが小さい領域 (図 5a の白線領域) に着目し, 積雪中 BC 質量濃度や沈着量, 粒径の広域分布を調べた。ここで用いる「BC 排出フラックスが小さい領域」を人為起源の BC 排出フラックスが $0.1 \text{ ng m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 以下を満たす領域と定義した。

アラスカ北部にある Prudhoe Bay (70.2°N , 148.5°W) はアラスカ最大の油田地帯であり, 航空機観測から大気中の BC 質量濃度が高いと報告されている [Brock *et al.*, 2011]。ローカルな影響を除くため, Prudhoe Bay の積雪試料も下記の解析では除いた。

4.1 積雪中 BC 質量濃度

BC 排出フラックスが小さい領域において, 領域平均した人為起源の BC 排出フラックスと積雪中 BC 質量濃度の緯度分布を図 6a と図 6b に示す。左から, 低緯度 (南シベリア) から高緯度 (スピッツベルゲン (以下, ニーオルスン)) の順に領域平均値を示した。

BC の排出フラックスがほぼゼロに近い領域 (アラスカ, 北シベリア, グリーンランド, ニーオルスン) では, 南シベリアやフィンランドに比べ積雪中 BC 質量濃度

が低く, 高緯度ほど積雪中 BC 質量濃度が減少した。これは, BC 発生源から離れるほど, 大気中の BC 質量濃度が低くなり, BC カラム量も少なくなるためと考えられる。

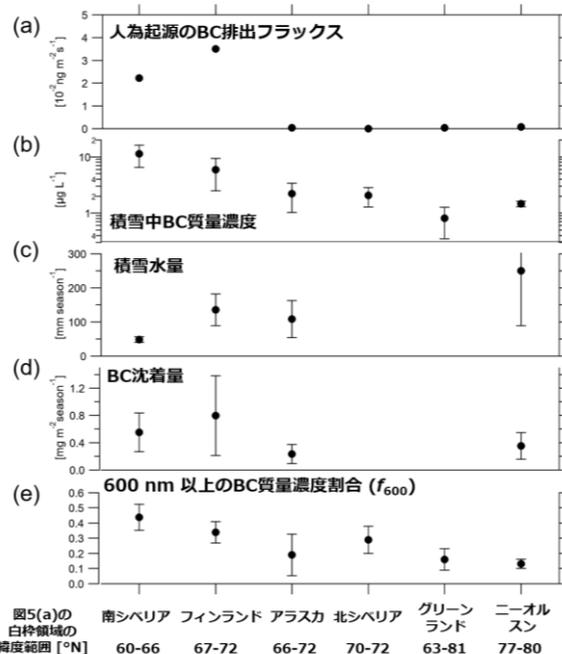


図 5(a) の白枠領域の緯度範囲 [$^\circ \text{N}$] 南シベリア 60-66 フィンランド 67-72 アラスカ 66-72 北シベリア 70-72 グリーンランド 63-81 ニーオルスン 77-80

図 6 (a) 人為起源の BC 排出フラックス, (b) 積雪中 BC 質量濃度, (c) 積雪水量, (d) BC 沈着量, (e) 600 nm 以上の BC 質量濃度割合 (f_{600}) の領域平均値。エラーバーは, それらの平均値の標準不確かさを表す。Mori *et al.* [2019] より, 一部変更。

南シベリアやフィンランドでは、アラスカに比べ積雪中 BC 質量濃度はそれぞれ 5.1 倍、2.7 倍も高かった。その要因の一つに、人為起源の BC 排出フラックスが領域規模で高く、大気中 BC 質量濃度も広範囲で高かった可能性がある。また、南シベリアの積雪採取場所は山脈に囲まれており、放射冷却による逆転層が形成されやすい地形であった。境界層内の濃度増加に伴う、下部対流圏内の BC カラム量の増加も、積雪中 BC 質量濃度の増加要因と考えられる。

4.2 積雪水量

一冬あたりに堆積した BC 量を推算するため、積雪深と積雪密度から、積雪に含まれる水の量(積雪水量)を推算した。領域平均した積雪水量の緯度分布を図 6c に示す。ニーオルスンでは積雪水量が最も高く、南シベリアでは最も低くなった。

ニーオルスンでは、冬季にメキシコ湾流が北極圏まで達し、低緯度から暖かく湿った空気塊が多く流入する[Maturilli and Kayser, 2017; Rinke et al., 2017]。その結果、冬季に降水量が増加し、積雪水量も増加する。一方、南シベリアでは放射冷却により地上の平

均気温が $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ まで冷え込み、カラム内の水蒸気量も非常に少なくなる。その結果、降水量が減少し、積雪水量も少なくなると考えられる。

4.3 BC 沈着量

全層試料における積雪中 BC 質量濃度と積雪水量の積から、一冬分の BC 沈着量を算出した(図 6d)。北シベリアとグリーンランドでは全層試料を採取していないため、BC 沈着量を算出していない。

フィンランドにおける一冬分の BC 沈着量は、積雪中 BC 質量濃度が高いため、アラスカよりも約 4 倍も高くなった。ニーオルスンでは積雪中 BC 質量濃度は低いが、降水量が多いため、BC 沈着量はアラスカよりもやや高くなった。

4.4 積雪中の BC 粒径分布

領域平均した積雪中の BC 質量濃度分布を図 7 に示す。BC 質量濃度に重みが生じないように、各々の積雪試料に対して全 BC 質量濃度で規格化した。

これらの粒径分布の違いを比較するため、全 BC 質量濃度(粒径: $70 \sim 4,170\text{ nm}$ の和)に対する 600

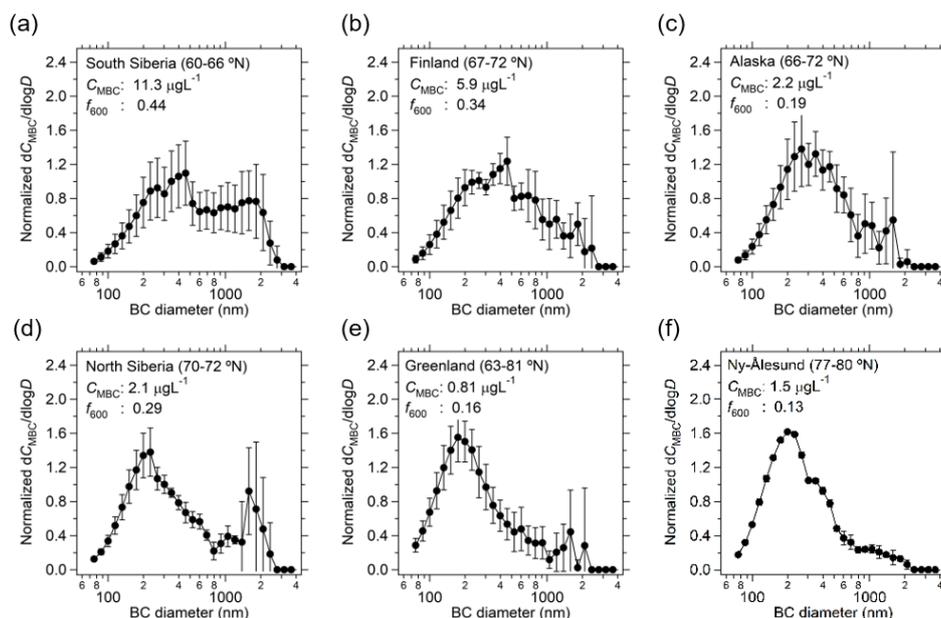


図 7 (a) 南シベリア, (b) フィンランド, (c) アラスカ, (d) 北シベリア, (e) グリーンランド, (f) ニーオルスンにおける領域平均した BC 質量濃度分布。積雪中 BC 質量濃度 (C_{MBC}) と 600 nm 以上の質量濃度割合 (f_{600}) の領域平均値も図中に示した。エラーバーはその平均値の標準不確かさ ($\pm 1\sigma$) を表す。

nm 以上の BC 質量濃度 (粒径: 600 ~ 4,170 nm の和) の割合 (f_{600}) を新たに導入した。この指標は、BC 粒子 1 個あたりの平均 BC 質量と強い相関関係があり、 f_{600} 値が高いほど積雪に含まれる大きな BC 粒径の寄与が高いことを表す。実際、 f_{600} 値が高い南シベリアの粒径分布 ($f_{600} = 0.44$) は、その他の領域の粒径分布 (図 7b ~ 7f) に比べて右側 (大きな BC 粒径側) に広がっていることがわかる (図 7a)。

図 6e に領域平均した f_{600} の緯度分布を示す。低緯度 (南シベリア) から高緯度 (ニーオルスン) に向かうにつれ、積雪中 BC 質量濃度とともに f_{600} 値も徐々に小さくなった (図 6b, e)。

東アジア域や北極域で行われた航空機観測によると、粒径の小さな BC 含有粒子は雲凝結核になりやすく、自由対流圏に輸送されやすいことが報告されている [Kondo *et al.*, 2016; Moteki *et al.*, 2012; Yoshida *et al.*, 2020]。また、東京や沖縄で行った地上観測によると、東京のような発生源近傍では Aging の時間が短いため、粒径の大きな BC 粒子が優先的に雲凝結核として作用し、大気から除去される。一方、遠隔地に輸送された BC 粒子は、輸送される間に Aging が進むため、粒径が小さくても容易に雲凝結核として作用し、大気から除去される [Moteki *et al.*, 2019; Ohata *et al.*, 2016]。このように BC 粒子の湿性除去の割合は発生源近傍と遠隔地で大きく異なり、BC 含有粒子の微物理量 (粒径や混合状態) に強く依存する。

南シベリアやフィンランドの積雪採取場所では、領域規模で人為起源の BC 排出フラックスが高く、大気中の BC 質量濃度が広範囲に高かった可能性がある。Aging の時間が短いため、粒径の大きな BC 粒子が優先的に雲粒活性し、大気から除去されたと考えられる。また、降雪粒子が大気中に浮遊する BC 粒子と衝突した可能性も考えられる。一方、発生源から最も離れたグリーンランドやニーオルスンでは、積雪中の BC 粒径は最も小さかった。これは、発生源から離れるほど空気塊は降水を多く経験するため、雲粒活性能の低い、粒径の小さな BC 粒子が効率よく輸送され

たことを示唆している。

5. まとめと今後の展望

北極圏での温暖化の寄与要因の一つである BC 粒子の、特に雪氷面への沈着を評価するため、2012 ~ 2016 年の積雪時期に北極広域で積雪試料を採取し、最先端の測定手法を用いて、積雪中 BC 質量濃度、沈着量、粒径の北極広域分布を明らかにした。

本稿ではまず、水試料中の BC 質量濃度の測定法を紹介した。従来のフィルターを用いた測定法では、BC 質量濃度に ~40 % もの不確かさが生じる一方、本稿で使用した同軸型ネブライザーと SP2 を組み合わせた測定手法では、16 % の精度で粒径別 BC 質量濃度を測定することが可能である。

次に、積雪に沈着した BC 質量濃度、沈着量、粒径の北極広域分布について紹介した。積雪中 BC 質量濃度や沈着量の広域分布は、地形や BC 排出量、降水量に強く依存することがわかった。低緯度領域では、粒径の大きな BC 粒子が優先的に雲粒活性により降水で除去される一方、発生源から離れるにつれ、積雪中 BC 質量濃度や平均 BC 粒径が小さくなった。降水を経験しない粒径の小さな BC 粒子が高緯度まで輸送されることを示唆した。

本研究で得られた積雪試料中の BC 質量濃度や BC 沈着量の広域分布は、気候モデルで計算される積雪中 BC 質量濃度と BC 沈着量の広域分布の検証に用いることができる。この比較により、BC の雪面反射率への効果の推定の信頼性が向上すると期待される。

謝辞

国立極地研究所の東久美子教授をはじめ、多くの研究機関に所属される方々に積雪試料の採取や分析のご協力をしていただきました。また、国立極地研究所の近藤豊特任教授や東久美子教授、東京大学の小池真准教授に多大なる援助と助言をいただきま

した。この場を借りて深く御礼申し上げます。本研究は、環境省環境研究総合推進費 (JPMEERF20142003, JPMEERF20172003), 科研費 (JP12J06736, JP16J04452, JP23221001, JP23221004, JP26701004, JP26241003, JP16H01772, JP16H01770, JP18H03363, JP18H05292, JP19K20441), the GRENE Arctic Climate Change Research Project, the Arctic Challenge for Sustainability (ArCS) project, National Institute of Polar Research (Project Research KP-15) の研究費の援助を受け遂行されました。

本稿で紹介した積雪中 BC 質量濃度, BC 沈着量, 粒径分布のデータは, 下記の URL から入手可能です (<https://ads.nipr.ac.jp/data/meta/A20190315-001>)。

最後に本稿執筆にあたり, 匿名の査読者からの建設的なコメントを頂きました。この場を借りて深く御礼申し上げます。

参考文献

- Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP) (2015), AMAP Assessment 2015: Black carbon and ozone as Arctic climate forcers, Oslo, Norway. vii: Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), pp.1–116.
- Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey, D. W., Forster, P. M., Berntsen, T., DeAngelo, B. J., et al. (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171.
- Brock, C. A., Cozic, J., Bahreini, R., Froyd, K. D., Middlebrook, A. M., McComiskey, A., et al. (2011), Characteristics, sources, and transport of aerosols measured in spring 2008 during the aerosol, radiation, and cloud processes affecting Arctic Climate (ARCPAC) Project, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(6), 2423–2453.
- Carmagnola, C. M., Domine, F., Dumont, M., Wright, P., Strellis, B., Bergin, M., et al. (2013), Snow spectral albedo at Summit, Greenland: Measurements and numerical simulations based on physical and chemical properties of the snowpack, *Cryosphere.*, 7, 1139–1160.
- Clarke, A. D., and Noone, K. J. (1985), Soot in the Arctic snowpack: A cause for perturbations in radiative transfer, *Atmos. Environ.*, 19, 2045–2053
- Doherty, S. J., Warren, S. G., Grenfell, T. C., Clarke, A. D., and Brandt, R. E. (2010), Light-absorbing impurities in Arctic snow, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11647–11680.
- Dou, T. F., and Xiao, C. D. (2016), An overview of black carbon deposition and its radiative forcing over the Arctic, *Advances in Climate Change Research*, 7, 115–122.
- Forsström, S., Isaksson, E., Skeie, R. B., Ström, J., Pedersen, C. A., Hudson, S. R., et al. (2013), Elemental carbon measurements in European Arctic snow packs, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 13614–13627, doi:10.1002/2013JD019886.
- Hadley, O. L., and Kirchstetter, T. W. (2012), Black carbon reduction of snow albedo, *Nat. Clim. Change.*, 2, 437–440.
- Jiao, C., Flanner, M. G., Balkanski, Y., Bauer, S. E., Ballouin, N., Berntsen, T. K., et al. (2014), An AeroCom assessment of black carbon in Arctic snow and sea ice, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(5), 2399–2417.
- Katich, J. M., Perring, A. E., and Schwarz, J. P. (2017), Optimized detection of particulates from liquid samples in the aerosol phase: Focus on black carbon, *Aerosol. Sci. Tech.*, 51(5), 543–553.
- Kinase, T., Adachi, K., Oshima, N., Goto-Azuma, K., Ogawa-Tsukagawa, Y., Kondo, Y., et al. (2019), Concentrations and size distributions of black carbon in the surface snow of eastern Antarctica in 2011, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, e2019JD030737, doi:10.1029/2019JD030737.
- Kondo, Y., Moteki, N., Oshima, N., Ohata, S., Koike, M., Shibano, Y., et al. (2016), Effects of wet deposition on the abundance and size distribution of black carbon in East Asia, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 4691–4712,

- doi:10.1002/2015JD024479.
- Kondo, Y., Sahu, L., Moteki, N., Khan, F., Takegawa, N., Liu, X., et al. (2011), Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques, *Aerosol Sci. Tech.*, 45, 295–312.
- Konya, K., Yamaguchi, M., Takigawa, M., Miyakawa, T., and O’Neel, S (2020), Mass concentration and origin of black carbon in spring snow on glaciers in the Alaska Range, *Polar Sci.*, 100572.
- Lee, Y. H., Lamarque, J.-F., Flanner, M. G., Jiao, C., Shindell, D. T., Berntsen, T., et al. (2013), Evaluation of preindustrial to present-day black carbon and its albedo forcing from atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2607–2634.
- Lim, S., Fäin, X., Zanatta, M., Cozic, J., Jaffrezo, J.-L., Ginot, P., and Laj, P (2014), Refractory black carbon mass concentrations in snow and ice: Method evaluation and inter-comparison with elemental carbon measurement, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 3307–3324.
- Liu, D., He, C., Schwarz, J.P., and Wang, X (2020), Lifecycle of light-absorbing carbonaceous aerosols in the atmosphere, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 3, 40, doi:10.1038/s41612-020-00145-8.
- Marquetto, L., Kaspari, S., and Simões, J. C (2020), Mass and number size distributions of rBC in snow and firn samples from Pine Island Glacier, West Antarctica, *Earth Space Sci.*, 7, e2020EA001198, doi:10.1029/2020EA001198.
- Maturilli, M., and Kayser, M (2017), Arctic warming, moisture increase and circulation changes observed in the Ny-Ålesund homogenized radiosonde record, *Theor. Appl. Climatol.*, 130, 1–17.
- Meinander, O., Kazadzis, S., Arola, A., Riihelä, A., Räisänen, P., Kivi, R., et al. (2013), Spectral albedo of seasonal snow during intensive melt period at Sodankylä, beyond the Arctic Circle, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3793–3810.
- Mori, T. (2017), Observational studies on wet deposition mechanism of black carbon particles, PhD Thesis, The University of Tokyo, Tokyo, Japan.
- Mori, T., Goto-Azuma, K., Kondo, Y., Ogawa-Tsukagawa, Y., Miura, K., Hirabayashi, M., et al. (2019), Black carbon and inorganic aerosols in Arctic snowpack, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 124(23), 13325–13356, doi:10.1029/2019JD030623.
- Mori, T., Kondo, Y., Ohata, S., Moteki, N., Matsui, H., Oshima, N., and Iwasaki, A (2014), Wet deposition of black carbon at a remote site in the East China Sea, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 10485–10498, doi:10.1002/2014JD022103.
- Mori, T., Kondo, Y., Ohata, S., Zhao, Y., Sinha, P. R., Oshima, N., et al. (2020), Seasonal variation of wet deposition of black carbon in Arctic Alaska, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125(16), e2019JD032240, doi:10.1029/2019JD032240.
- Mori, T., Moteki, N., Ohata, S., Koike, M., Goto-Azuma, K., Miyazaki, Y., and Kondo, Y (2016), Improved technique for measuring the size distribution of black carbon particles in liquid water, *Aerosol Sci. Tech.*, 50(3), 242–254.
- Moteki, N., and Kondo, Y (2010), Dependence of laser-induced incandescence on physical properties of black carbon aerosols: Measurements and theoretical interpretation, *Aerosol Sci. Tech.*, 44, 663–675.
- Moteki, N., and Mori, T (2015), Theoretical analysis of a method to measure size distributions of solid particles in water by aerosolization, *J. Aerosol Sci.*, 83, 25–31.
- Moteki, N., Adachi, K., Ohata, S., Yoshida, A., Harigaya, T., Koike, M., and Kondo, Y (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating, *Nat. Commun.*, 8, 15329.
- Moteki, N., Kondo, Y., Oshima, N., Takegawa, N., Koike, M., Kita, K., et al. (2012), Size dependence of wet removal of black carbon aerosols during transport from the boundary layer to the free troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 39,

- L13802, doi:10.1029/2012GL052034.
- Moteki, N., Mori, T., Matsui, H., and Ohata, S (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models, *NPJ Clim. Atmos. Sci.*, 2, 6.
- Ohata, S., Moteki, N., Mori, T., Koike, M., and Kondo, Y (2016), A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence, *Sci. Rep.*, 6, 34113.
- Oshima, N., Yukimoto, S., Deushi, M., Koshiro, T., Kawai, H., Tanaka, T. Y., and Yoshida, K (2020), Global and Arctic effective radiative forcing of anthropogenic gases and aerosols in MRI-ESM2.0, *Prog. Earth Planet. Sci.*, 7, 38.
- Tollefson, J. (2009), Climate's smoky spectre, *Nature*, 460, 29–32.
- Pedersen, C. A., Gallet, J.-C., Ström, J., Gerland, S., Hudson, S. R., Forsström, S., et al. (2015), In situ observations of black carbon in snow and the corresponding spectral surface albedo reduction, *J. Geophys. Res., Atmos.* 120, 1476–1489, doi:10.1002/2014JD022407.
- Rinke, A., Maturilli, M., Graham, R. M., Matthes, H., Handorf, D., Cohen, L., et al. (2017), Extreme cyclone events in the Arctic: Wintertime variability and trends, *Environ. Res. Lett.*, 12(9), 094006.
- Schwarz, J. P., Doherty, S. J., Li, F., Ruggiero, S. T., Tanner, C. E., Perring, A. E., et al. (2012), Assessing single particle soot photometer and integrating sphere/integrating sandwich spectrophotometer measurement techniques for quantifying black carbon concentration in snow, *Atmos. Meas. Tech.*, 5(11), 2581–2592.
- Schwarz, J. P., Gao, R. S., Perring, A. E., Spackman, J. R., and Fahey, D. W (2013), Black carbon aerosol size in snow, *Sci. Rep.*, 3, 1356, doi:10.1038/srep01356.
- Sinha, P. R., Kondo, Y., Goto-Azuma, K., Tsukagawa, Y., Fukuda, K., Koike, M., et al. (2018), Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123(2), 997–1016.
- Svensson, J., Ström, J., Hansson, M., Lihavainen, H., and Kerminen, V.-M. (2013), Observed metre scale horizontal variability of elemental carbon in surface snow, *Environ. Res. Lett.*, 8(3), 034012.
- Wang, X., Shi, T., Zhang, X., and Chen, Y (2020), An overview of snow albedo sensitivity to black carbon contamination and snow grain properties based on experimental datasets across the Northern Hemisphere, *Curr. Pollut. Rep.*, 6, 368–379.
- Yoshida, A., Moteki, N., Ohata, S., Mori, T., Koike, M., Kondo, K., et al. (2020), Abundances and microphysical properties of light-absorbing iron oxide and black carbon aerosols over East Asia and the Arctic, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, e2019JD032301, doi:10.1029/2019JD032301.

原稿受領日: 2020 年 10 月 27 日

掲載受理日: 2020 年 12 月 11 日

著者所属

1. 東京理科大学

* 責任著者

Tatsuhiro Mori <mori@rs.tus.ac.jp>

気象研究所における積雪モデリング研究

Snow modeling studies in Meteorological Research Institute, Japan Meteorological Agency

庭野匡思^{1*}, 青木輝夫^{2,1}

近年の地球温暖化に伴って世界各地で融雪が進みやすくなり、地表面のアルベドが従来よりも低くなる期間と場所が経年的に増えている。このことは、地表面温度及び地上付近の気温の上昇を引き起こすことから、近年の気候システムに存在する重要な正のフィードバック機構のトリガーとして認識されている。気象研究所では、2000年代初頭から、融雪に重要な影響を与える積雪アルベド及び関連する積雪物理の理論・観測・モデル研究に着手した。現在、理解の深化が求められている気候システムにおける積雪の定量的役割を正確に評価するためには、理論・観測研究で得られる知見に立脚した信頼のおける数値モデルが必要不可欠である。本稿では、我々が近年開発してきた積雪変質モデルと極域気候モデルについて、その開発の背景と概要を紹介する。最後に、将来の積雪モデリング研究の方向性を議論する。

1. はじめに

地球上には多種多様な陸面形態が存在するが、積雪はそれらの中でも非常に独特な特徴を複数有する個性的な一形態である。代表的な特徴は、非常に高いアルベド(地表面に入射する短波放射フラックスと地表面から反射される短波放射フラックスの比)、非常に低い熱伝導率に起因する高い断熱性能、及び内部で相変化が引き起こされることが挙げられる。これらの特徴は、大気-積雪間の熱のやり取り(雪面熱収支)を支配するため、地球の気候システムに重要な影響を与える[例えば、Armstrong and Brun, 2008]。近年、地球温暖化に伴って世界各地で融雪が進みやすくなり、結果として積雪期間と積雪面積が減少してきていることが指摘されている[例えば、Hori et al., 2017]。このことは、地表面のアルベドを大きく低下させるため、地表面温度の上昇を引き起こし、地上付近の大気の加熱に繋がる。この正のフィードバック機構は、積雪アルベドフィードバックとして広く認識されている[例えば、Budyko, 1969; Qu and Hall, 2007]。

地上気象場の変動に応答して変化する雪面熱収支は、積雪内部物理状態の変質を引き起こす。雪面熱収支は、雪面における短波放射収支、長波放射収支、顕熱、潜熱、降水による供給熱、及び雪中伝導熱のバランスとして規定される[例えば、Armstrong and Brun, 2008]。一般に、融雪期におけるこれらの熱フラックスの絶対値の中では、短波放射収支の値が相対的に大きい傾向があることが知られている[例えば、Armstrong and Brun, 2008]。そのため、融雪を考える際には、積雪アルベドにまず着目することが必要不可欠である。1980年前後から本格的に行われ始めた理論的研究によると、積雪アルベドは、可視域(波長 $\lambda = 0.4-0.8 \mu\text{m}$)においては積雪内部に存在する光吸収性不純物(Light Absorbing Impurities; LAI, 例えば、ブラックカーボンやダスト)の濃度に依存し[Warren and Wiscombe, 1980]、近赤外域($\lambda = 0.8-3.0 \mu\text{m}$)においては積雪粒径に依存する[Wiscombe and Warren, 1980]。

気象研究所では、2000年前後から、上述した積雪

アルベドの定性的な波長依存特性を詳細かつ定量的に計算することが可能な大気-雪氷系精密放射伝達モデルを開発してきた[Aoki *et al.*, 1999, 2000, 2003]。ちょうど時を同じくした 2000 年代初頭頃になると、融雪時期の変化が地球の気候システム(例えば、水収支や積雪アルベドフィードバックを介した気温変化など)に与える定量的影響を正確に評価することを求める機運が世界的に高まってきた。Hansen and Nazarenko[2004]は、全球気候モデルによる過去気候シミュレーションを実施して、1880 年から 2000 年にかけて観測された全球の気温上昇率の約 1/4 が雪氷面に沈着したブラックカーボンの存在に起因するアルベド低下によって説明可能である、と主張した。Painter *et al.*[2007]は、簡易的な積雪モデル(大気モデルと一体で使われることが多い陸面モデルの一種。計算コストをかけずに大気モデルに現実的な大気下部境界条件を渡すことを主目的としており、必ずしも積雪内部の物理過程を詳細に考慮しているわけではない。)を用いて、積雪内部のダストの存在が季節積雪の融雪時期の変化に与える影響を定量的に見積もることに成功した。気象研究所では、その時点では、まずは上述の大気-雪氷系精密放射伝達モデルと多角的な気象・雪氷現地観測[Aoki *et al.*, 2003; 2006, 2007; 青木と田中, 2008]の遂行に重点を置いて、積雪が地球の気候システムに与える影響を具体的に解明することに挑戦することとした。この取り組みを通して、積雪内部 LAI の存在が可視アルベドを低下させて融解の端緒となり、融解・再凍結による積雪粒径増加を誘発して近赤外アルベドを低下させ、融解を一層加速する、という正のフィードバックプロセス(Aoki *et al.*, 2007; 青木と田中, 2008)の重要性をいち早く提唱した。この世界的潮流の中、IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) 第 4 次評価報告書 (AR4; 4th Assessment Report) [IPCC, 2007]では、積雪中に存在する LAI の放射影響効果に関する記述が IPCC 報告書史上初めて加えられた。

本稿の責任著者(庭野)は、2008 年に気象研究所

に着任し、積雪が地球の気候システムに与える影響を陽にかつ正確に評価することを実現すべく積雪モデリング研究に着手した。一口にモデリング研究とは言っても、プログラミングのみしていれば良いわけではなく、多角的な現地観測を同時並行で行って、モデルによる計算結果を観測結果と常に比較することが必要不可欠である。本稿では、まず、我々が札幌の北海道大学低温科学研究所露場で実施している気象・雪氷観測を概観する。その後、我々が開発してきた詳細な積雪変質モデル(積雪モデルの一種; 詳しくは後述) SMAP (Snow Metamorphism and Albedo Process) [Niwano *et al.*, 2012, 2014]と SMAP が組み込まれた極域気候モデル NHM-SMAP (Non-Hydrostatic atmospheric Model and the Snow Metamorphism and Albedo Process) [Niwano *et al.*, 2018, 2019; 庭野, 2019]を紹介する。関連して、現在の世界の研究コミュニティにおける両モデルの立ち位置についても簡単に触れる。最後に、将来の雪氷モデリングの方向性について議論する。

2. 札幌における気象・雪氷観測

気象研究所は、2000 年代初頭から、北海道大学低温科学研究所と共同で札幌における気象・雪氷観測を開始した。札幌における観測は、大きく自動気象観測装置 (Automatic Weather Station; AWS) による観測とマニュアルで実施している積雪断面観測から構成される。前者では、多種多様な地上気象・雪氷要素が 1 分間隔で取得されている。一方、後者は、1 週間に 2 回の頻度で実施され、積雪内部物理量測定や積雪サンプリングが実施されている。積雪サンプルは気象研究所に冷凍で輸送され、ブラックカーボン・オーガニックカーボン・ダストの各 LAI 濃度が定量される。観測拠点の整備以降、現在にかけて、測定技術の高度化や測器のメンテナンスが不断なく行われ、日本を代表する気象・雪氷観測拠点となっている。AWS で取得されるデータは、冬期間(11~4月)限定

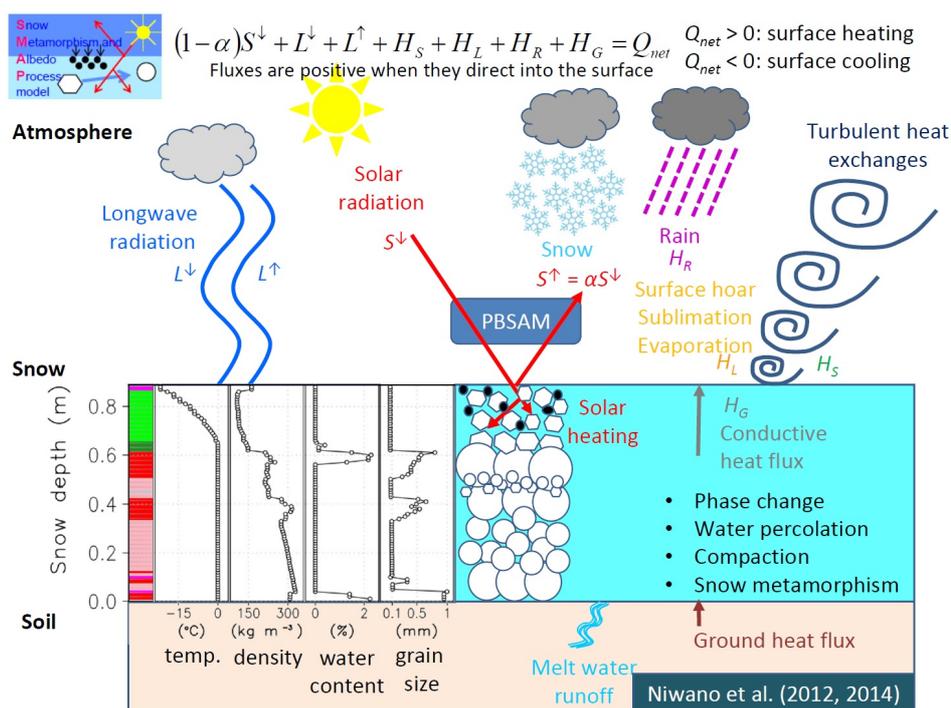


図 1 積雪変質モデル SMAP の概念図。詳細は本文を参照。

ではあるものの、*Niwano et al.*[2020]によって研究コミュニティに公開されている。一方、積雪サンプルを融解して濾過することによりフィルターに捕集される LAI の重量を測定した結果 (LAI の全濃度が得られる) と、カーボン分析装置において熱光学法を用いてフィルター上サンプルを分析した結果 (ブラックカーボンとオーガニックカーボンの各濃度が得られる) を組み合わせることで得られる積雪内部 LAI 濃度は *Kuchiki et al.*[2015]によってまとめられ、現在も同様の手法での測定が継続されている。

2018 年、IPCC AR6 に貢献することを目的として、国際積雪モデル相互比較プロジェクト ESM-SnowMIP [*Krinner et al.*, 2018] が実施された。本プロジェクトは、世界の積雪モデルを多種多様な気候状態で実行し、そのパフォーマンスを比較した。そのため、世界各国から 10ヶ所の観測サイトが選定され、高品質なモデル駆動データとモデル評価データが集められた [*Ménard et al.*, 2019]。我々の札幌 AWS は、アジアから唯一、その観測サイト群に選定され、本国際プロジェクトの推進に大いに貢献した。ESM-

SnowMIP には、観測データのみならず SMAP によるシミュレーション結果も提出したが、その点については改めて後述する。

3. 積雪変質モデル SMAP

積雪が地球の気候システムに与える影響を陽にかつ正確に評価することを目標に我々が着手した積雪モデリング研究は、積雪アルベド物理モデル (Physically Based Snow Albedo Model; PBSAM) [*Aoki et al.*, 2011] の開発から本格的に始まった。PBSAM は地球システムモデル (ESM; Earth System Model) [*Yukimoto et al.*, 2012] に組み込まれることを前提として設計され、*Aoki et al.*[1999, 2000, 2003]による (非常に精緻なものの計算コストが高い) 精密大気-放射雪氷系放射伝達モデルに対して各種計算高速化を適用することで完成した。*Aoki et al.*[2011]は札幌で取得された積雪粒径と LAI 濃度観測データを入力して PBSAM を駆動し、計算されたアルベドの精度評価を行い、非常に高い再現性を示していることを確認した。PBSAM が地球システムモデルに組み込

まれる時は、雪面への LAI 沈着量は ESM に組み込まれている化学輸送モデル MASINGAR[Tanaka and Chiba, 2005]から与えることが出来るものの、積雪粒径は何らかの方法で別途モデル内部で計算する必要があった。

そこで、積雪内部の粒径プロファイルの時間変化を計算することが可能な鉛直一次元モデル SMAP[Niwano et al., 2012, 2014]を開発した。SMAP は、ESM において PBSAM に積雪粒径情報を渡すコンポーネントの機能を持つだけでなく、PBSAM を内部に組み込んだスタンドアローンの積雪モデルとしても実行可能となるよう設計されている。さて、従来の一般的な積雪モデルは、既に述べた通り、大気モデルに現実的なアルベドや雪面温度の情報のみを渡せば良いことから、積雪内部の物理過程はかなり簡略化されているのが一般的である。また、積雪アルベドは、計算コスト削減のため、気温、雪温、及び降雪後の経過時間などの関数(パラメタリゼーション)で計算されていた[例えば、Qu and Hall, 2007]。一方、PBSAM で必要となる積雪粒径の計算には、非常に詳細な積雪変質過程(積雪の温度構造や含水量変化に起因する雪質変化)に関する知見が必要である。

このような知見は、積雪内部の細かな層構造を計算して正確な雪崩予測を実現する積雪変質モデルの研究分野において発展していた。我々は、フランスで開発されている積雪変質モデル Crocus[Brun et al., 1989, 1982; Vionnet et al., 2012]とスイスで開発されている積雪変質モデル SNOWPACK[Lehning et al., 2002a, 200b]を参考にして、我々が雪氷現地観測で得ていた知見も加え、SMAP に積雪変質過程を実装した[Niwano et al., 2012]。SMAP は、気象場の変動が駆動する雪面熱収支の変化に応答して時間変化する積雪内部物理量(雪温、密度、含水量、粒径、雪質)を、相変化、水分移動、圧密、及び積雪変質などを考慮して多層計算する(図 1)。SMAP モデルは、従来、雪崩研究のために活用された積雪変質モデルを気候研究に本格的に適用した点で画期的であ

表 1 積雪変質モデル SMAP を駆動するために必要な要素。Niwano et al. [2012]を基に作成。

要素	単位
降水量	mm
気圧	hPa
風速	m/s
気温	°C
湿度	%
下向き短波、可視、近赤外放射量	W/m ²
下向き短波、可視、近赤外放射量の散乱成分	W/m ²
下向き長波放射量	W/m ²
(土壌表面における)土壌伝導熱	W/m ²
積雪内部に存在する LAI(ブラックカーボンとダスト)重量濃度	ppmw

表 2 積雪変質モデル SMAP によって計算される代表的な物理量。Niwano et al. [2012]を基に作成。

要素	単位
積雪深	m
可視アルベド	
近赤外アルベド	
短波アルベド	
雪面温度	°C
(雪面における)短波放射収支	W/m ²
(雪面における)長波放射収支	W/m ²
(雪面における)顕熱	W/m ²
(雪面における)潜熱	W/m ²
(雪面における)降水による供給熱	W/m ²
(雪面における)雪中伝導熱	W/m ²
雪温プロファイル	°C
密度プロファイル	kg/m ³
積雪水当量プロファイル	kg/m ²
含水量プロファイル	kg/m ²
流出量	kg/m ² /s
積雪粒径プロファイル	mm
雪質プロファイル	

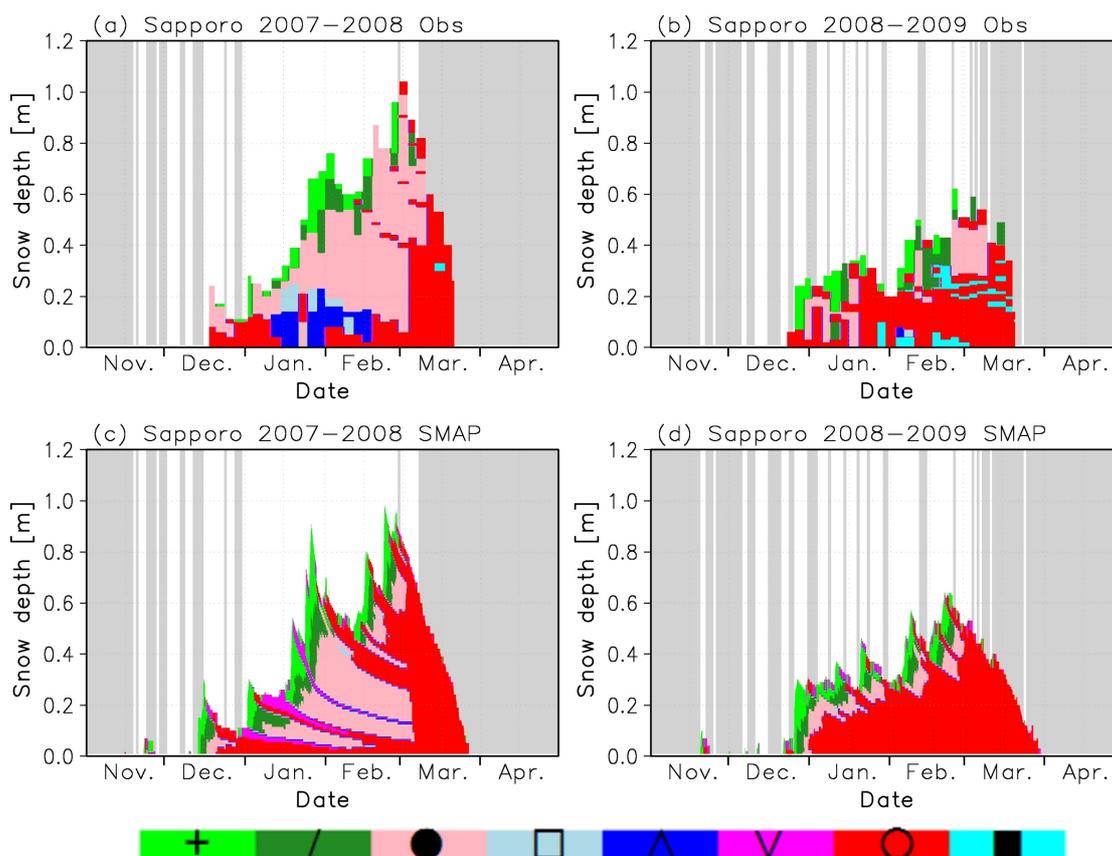


図 2 積雪変質モデル SMAP によって計算された札幌の雪質の検証。(a)2007-2008 冬期及び(b)2008-2009 冬期の雪質観測結果と(c,d)同冬期間の SMAP モデル計算結果。色と記号は Fierz *et al.* [2009]による国際雪質分類を示し、左から新雪、こしまり雪、しまり雪、こしもざらめ雪、しもざらめ雪、表面霜、ざらめ雪、及び氷板を示す。Niwano *et al.* [2012]より転載。背景のシェードは、地上気温が 0°Cを越えた期間を示す。

る。その後、積雪内部の水分移動計算を Richards 式に基づく精緻な方式に高度化して[Niwano *et al.*, 2014], 現在の最新版が構築された。モデルを駆動するのに必要となる要素と、計算される代表的な物理量をそれぞれ表 1 と表 2 にまとめた。

札幌における SMAP モデル検証結果の一部を紹介する。図 2 に、2007-2008 及び 2008-2009 冬期の札幌で観測された雪質の季節変化と、そのモデルシミュレーション結果を示す。雪質は、Fierz *et al.*[2009]によって取りまとめられた最新の国際雪質分類に従って評価する。2007-2008 冬期は、相対的に寒冷であったのに対し、2008-2009 冬期は相対的に温暖であった。実際、後者の期間では、1~2 月の厳冬期においても頻繁に気温が 0 °Cを越えていた(図 2)。両冬期間とも、SMAP は、観測で見られる特徴(例えば、

新雪やこしまり雪の分布の様子、2007-2008 冬期の厳冬期におけるしまり雪の卓越、及び 3 月以降の融雪期間におけるざらめ雪の卓越)は良く捉えられていることが分かる。一方で、しもざらめ雪や氷板の再現性には課題が残っている。なお、氷板の再現性には、スイスの SNOWPAK モデルにおいても課題となっており、その点の改良が試みられている[Wever *et al.*, 2016]。

このようにモデルは依然として完璧ではないものの、図 3 に示すように積雪深の季節内変化は良く再現していた。そこで、Niwano *et al.*[2012]は、Painter *et al.*[2007]同様に LAI をモデル入力から外して、仮想的に“pure snow”を仮定したモデル感度実験を行った(図 3)。この結果、札幌の融雪が LAI の存在によって約 2 週間早められていたことを明らかにした。そ

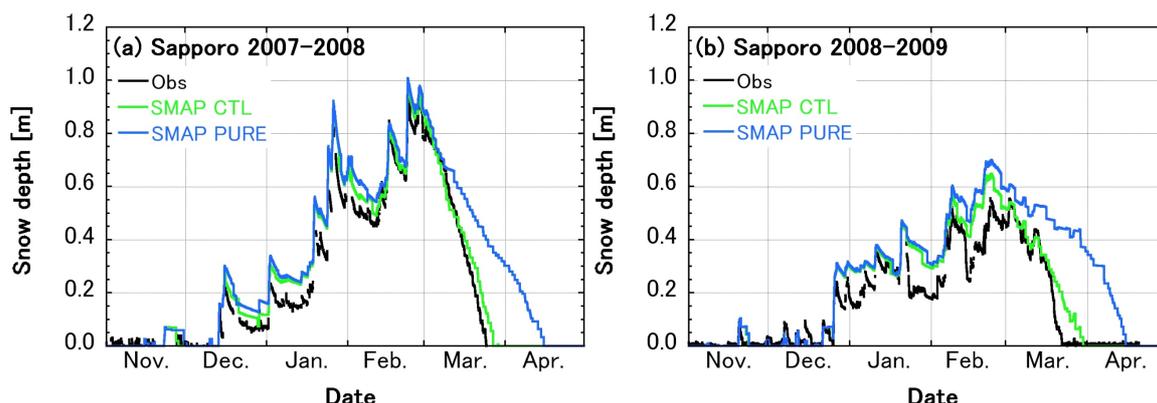


図3 札幌の積雪に対するLAIのインパクト。(a)2007-2008冬期及び(b)2008-2009冬期の観測された積雪深(黒線), SMAPによって計算された積雪深(緑色), LAIをオフにして行ったSMAP計算結果(青色)。Niwano *et al.* [2012]より転載。

の後, 札幌の融雪に対するブラックカーボンとダストの相対的寄与が広沢[2017]によって調べられ, 前者の方がアルベド低下に対して相対的に大きな影響を与えていたことが分かった。

現在, 我々は, SMAP を札幌以外の場所にも適用する研究を進めている。そこでは, まず, 国内屈指の豪雪地帯を有する新潟県に SMAP を適用し評価を行った[庭野ほか, 2017]。地上気象要素は, 気象庁のアメダス観測データを使用した。しかし, アメダスは, 降水量, 気圧, 気温, 風速しか測定していないため, 他の気象要素(表 1)は気象庁の領域非静力学大気モデル NHM (Non-Hydrostatic atmospheric Model) [Saito *et al.*, 2006]シミュレーション結果を使用した。また, 表 1 に示されている土壌伝導熱(積雪下部の熱に関する境界条件をノイマン境界条件とすることに対応)は使用せず, 豪雪地帯ではあるものの濡れ雪が卓越する比較的温暖な気候を考慮して積雪下部の温度を 0 °C 固定(ディリクレ境界条件)とすることで対応した。LAI 濃度については, 長岡で取得した積雪サンプル分析結果を新潟県の代表値と仮定して, 全アメダスサイトで同一に与えた。以上の設定で実施した SMAP モデル計算による積雪深シミュレーション結果をアメダスで観測された結果と比較したところ, その結果は, モデルの中で計算する降水の雨雪分離に大きく影響を受けることが明らかとなった。一般に, 観測される降水量は, 雨と雪の水当量の総和であり,

それらを観測で定量的に分離することは現状出来ていない。この分離手法を, 観測とモデルの両面で高度化することが必要である。

SMAP を札幌以外の場所にも適用する一環として, ESM-SnowMIP[Krinner *et al.*, 2018]に参画し, 世界各地の 10 ヶ所の観測サイト[Ménard *et al.*, 2019]のデータを利用したモデルシミュレーションを実施した。表 1 に示されている LAI を除く要素は, 全てオーガナイザーから提供された。その時点では, LAI の効果を陽に考慮して積雪アルベドの計算を行う積雪モデルは SMAP 以外に存在しなかったためである。そこで, 我々は, LAI 無し(pure snow)を仮定して, モデル計算を行い, 結果を提出した。なお, Krinner *et al.*[2018]が示している通り, ESM-SnowMIP には全 28 個の積雪モデルが参加したが, 詳細な積雪変質モデル(論文中では“snow physics model”と記されている)と分類されているのは, 上述の Crocus, SNOWPACK, 及び SMAP のみである。近年は, (計算コストの高い)詳細な物理過程を考慮するよりも, 多数のシンプルなスキーム群をアンサンブル的に組み合わせることで再現性が最もよくなるモデル設定を機械的に探るというコンセプトの, マルチ物理アンサンブルモデルも登場している。ESM-SnowMIP には, そのようなモデルが 2 個参加していた。詳細なモデル間相互比較は, Ménard *et al.*[2020]によって着手されたばかりであるが, SMAP は概ね良好な結果を示して

いる。

近年は、SMAP を、国内のみならず、急激な雪氷融解が進行しているグリーンランド氷床にも適用する研究を行っている[庭野, 2019]。2012 年 7 月、グリーンランド氷床において、近年の衛星観測史上最大の表面融解面積が報告された[Nghiem *et al.*, 2012]。その時、我々は、北西グリーンランド氷床上の SIGMA-A サイト[Aoki *et al.*, 2014a]に滞在して、AWS の設置と気象・雪氷集中観測を実施していた。我々が SIGMA-A に滞在していた 6 月～7 月を対象に、SMAP による積雪のモデルシミュレーションを実施し、現地で実際に我々が観測した急激な融解(積雪深の低下)をモデルで再現することに成功した[Niwano *et al.*, 2015]。この時は、気象データは上述の AWS で観測された結果を与えた。一方、LAI 濃度は、採取した積雪サンプルを現地で濾過して不純物をフィルターに捕集し、それを気象研究所に持ち帰って重量測定と熱光学法を組み合わせることで分析した結果[Aoki *et al.*, 2014b; Niwano *et al.*, 2015]を用いた。この研究を通して、我々は、極域における SMAP の有効性を確認した。

4. 極域気候モデル NHM-SMAP

以上で見てきたように、我々は、国内外における SMAP の有効性を実証してきたが、これらはポイントスケールでの研究であり、気候システム全体を俯瞰する研究をするには十分でなかった。そこで、我々は、SMAP を NHM[Saito *et al.*, 2006]と組み合わせて雪氷圏の計算に特化した領域気候モデル NHM-SMAP[Niwano *et al.*, 2018, 2019]を開発することにした。この試みは最初にグリーンランド氷床を対象として開始したため、以下では、極域気候モデルと称する。NHM によって大気場の三次元的な時間変化を計算し、そこで得られる地上気象要素(表 1)を SMAP に入力して、雪氷内部物理状態の時間変化を計算し、得られる雪氷アルベドと雪氷面温度を大気の下境界条件として NHM に返す。このサイクルを繰り返す

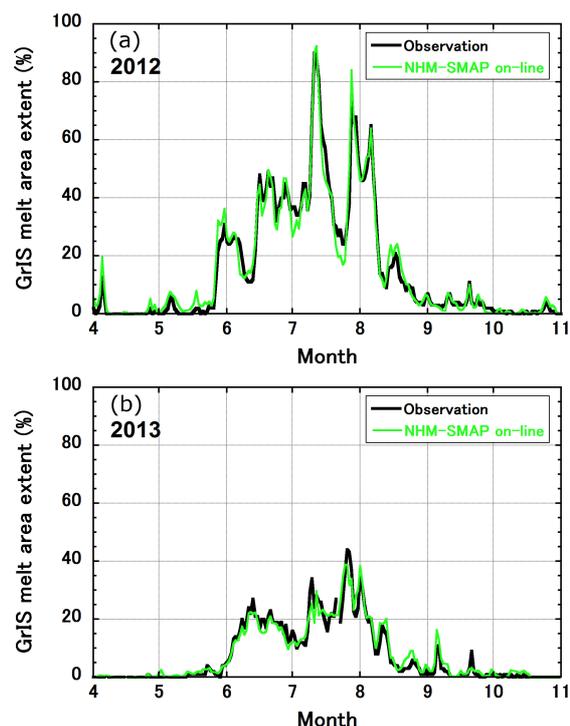


図 4 極域気候モデル NHM-SMAP によってシミュレートされたグリーンランド氷床上表面融解エリアの検証。(a)2012 年と(b)2013 年について、衛星観測結果(黒線)[Mote, 2007]とモデル計算結果(緑線)を示す。Niwano *et al.* [2018]より転載。

ことで長期気候計算を実現する。一方、ブラックカーボンやダストといった LAI の濃度については、Aoki *et al.* [2014b]によって、グリーンランド氷床の涵養域(表面は積雪で覆われる)においては中緯度に比べて非常に低く積雪アルベドへの影響を無視しても大きな影響は無い、と報告されたことから、pure snow を仮定して計算することとした。一方、グリーンランド氷床の周縁末端部分では、夏期に積雪が融解して裸氷面が露出する場所(消耗域)が広がっている。現状、PBSAM は裸氷面アルベドの計算には対応しておらず、モデル内部で計算される氷密度の関数とする経験的なパラメタリゼーションによって計算している。関連して、近年注目されている裸氷面上の光吸収性を持つ雪氷微生物[例えば、Shimada *et al.*, 2016; Takeuchi *et al.*, 2018; Onuma *et al.*, 2020]の影響も全く考慮されておらず、このプロセスを陽に考慮出来る裸氷面アルベド物理モデルを開発して NHM-

SMAP に組み込むことが現在の課題である。

グリーンランドでの計算は、気象庁の最新の再解析データ JRA-55[Kobayashi *et al.*, 2015]を NHM-SMAP の側面境界条件に与えることで実行し、計算された地上気象要素や雪氷物理量などでモデル精度評価を行った[Niwano *et al.*, 2018]。図 4 に、2012 年と 2013 年のグリーンランド氷床上における表面融解面積割合の時間変化について、衛星観測による結果[Mote, 2007]とモデルシミュレーション結果を比較して示す。Nghiem *et al.*[2012]が報告した 2012 年 7 月の記録的な表面融解イベントがモデルによって精度良く再現されていることは特筆される。一方で、2013 年は相対的に寒冷な年で表面融解の頻度は低かったが、その特徴もモデルは十分に表現することに成功している。現在、NHM-SMAP シミュレーション結果を用いた様々な解析に着手したところである。それと同時に、NHM-SMAP を南極氷床に適用する試みも行っている[Niwano *et al.*, in preparation]。

2019 年、IPCC AR6 に貢献することを目的として、グリーンランド氷床表面における雪氷質量変化を計算する数値モデルの国際相互比較[Fettweis *et al.*, 2020]が実施され、我々も参画した。本プロジェクトには、世界の 14 個の数値モデルの計算結果が提出された。ここでも、ESM-SnowMIP[Krinner *et al.*, 2018]同様に、いくつかのタイプのモデルが存在するが、最も精緻な物理過程が考慮されていると評価されている極域気候モデルは、デンマークの HIRHAM[Langen *et al.*, 2017]、ベルギーの MAR[Fettweis *et al.*, 2017]、オランダの RACMO[Noël *et al.*, 2018]、及び NHM-SMAP のみである。なお、この中に、雪氷微生物の影響を陽に考慮しているモデルは無い。モデル相互比較の結果、全体としてみると、上記極域気候モデルの対観測パフォーマンスが、特に降水パターンの表現の点で最も良かった。しかし、他の相対的にシンプルなモデルや高速計算が可能な簡便なモデルも極域気候モデルと同等と見なして差支えない精度を示した。そのた

め、これらのモデルは、古気候などをターゲットとする超長期の計算において依然として有用であると考えられた。なお、興味深いことに、13 個のモデルのアンサンブル平均値が対観測の最も良いパフォーマンスを示した。このことは、モデルのバイアスがモデル間で系統的に存在するわけではない(モデルの特性には大きなバラつきがある)ことを意味する。

5. 雪氷モデリングの将来

Niwano *et al.*[2012]によって LAI を積雪変質モデル内部で取り扱う試みがなされて以降、Crocus の開発グループも、同様の研究開発に着手した。Tuzet *et al.*[2017]は、領域大気化学輸送モデル ALADIN-climate[Nabat *et al.*, 2015]が計算する LAI 沈着量と AWS で観測される気象データを Crocus の最新版(積雪アルベドを物理的に計算出来るよう高度化したバージョン)に入力し、積雪内部における LAI の移動と、アルベドへの影響評価を実施した。現在、我々は、気象研究所で開発された大気化学輸送モデル NHM-Chem[Kajino *et al.*, 2019]と SMAP を組み合わせ、大気-雪氷系における LAI の挙動・影響をシームレスに評価するモデルシステム構築を進めている。

また、積雪変質モデルの今後の開発の方向性の 1 つとして、水分子の酸素と水素の安定同位体組成をシミュレートすることが挙げられる。これらは、過去の気候状態に関する情報を保持している[例えば Kurosaki *et al.*, 2020]ため、雪氷圏における従来にならぬ気候研究の新展開を拓ける可能性がある。この機能は、Touzeau *et al.*[2018]によって Crocus に実装されており、また、同様の試みは Jafari *et al.*[2020]によって SNOWPACK においても実現されている。今後、SMAP においても実現させることを検討している。

6. おわりに

2000 年代前後から現在にかけて、気象研究所で実施してきている積雪モデリング研究を概観した。

我々が、観測・理論・数値モデリングの三本柱でバランス良く研究遂行していることと、世界の研究コミュニティの中での存在感を確立した上で先端的な研究を推進していることが少しでも伝われば幸いである。地球温暖化が近い将来に渡って更に加速すると予測されている今日、雪氷圏の将来変化を定量的かつ正確に予測・評価することが従来にも増して強く求められている。我々は、引き続き、積雪モデリング技術の高度化に資する研究を展開し、その要請に応じていく。前節で触れた雪氷モデリングの将来展望の内容は、「大気化学研究」誌読者諸氏の興味を惹くものではないか、と考える。(研究者・学生に関係なく)興味を持たれた方は、是非、責任著者(庭野)に連絡を取って頂きたい。

謝辞

本稿執筆の貴重な機会をご提供頂きました「大気化学研究」誌編集委員の山地一代博士(神戸大学)に心より御礼申し上げます。1名の匿名の査読者より、貴重なコメントを頂きました。気象研究所における積雪内部 LAI の分析は、以後崎正江さん(気象研究所)に全面的にサポートして頂いております。本研究は、北海道大学低温科学研究所・共同利用研究(20G042 他多数)、環境省地球環境保全試験研究費、JSPS 科研費(JP17K12817, JP 18H05054, JP17KK0017, JP20H04982, JP18H03363, JP16H01772, JP15H01733)、及び北極域研究加速プロジェクト(ArCS II)JPMXD1420318865 の助成を受けました。

参考文献

Aoki, T., T. Aoki, M. Fukabori, and A. Uchiyama (1999), Numerical simulation of the atmospheric effects on snow albedo with multiple scattering radiative transfer model for the atmosphere-snow system, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 77, 595–614, doi: 10.2151/jmsj1965.77.2_595.

Aoki, T. et al. (2000), Effects of snow physical parameters on

spectral albedo and bidirectional reflectance of snow surface, *J. Geophys. Res.*, 105(D8), 10,219–10,236, doi:10.1029/1999JD901122.

Aoki, T., A. Hachikubo and M. Hori (2003), Effects of snow physical parameters on broadband albedos, *J. Geophys. Res.*, 108, 4616. doi:10.1029/2003JD003506.

Aoki, T. et al. (2006), Atmospheric aerosol deposition on snow surfaces and its effect on albedo, *SOLA*, 2, 13–16, doi:10.2151/sola.2006-004.

Aoki, T., H. Motoyoshi, Y. Kodama, T. J. Yasunari, and K. Sugiura (2007), Variations of the snow physical parameters and their effects on albedo in Sapporo, Japan, *Ann. Glaciol.*, 46, 375–381, doi:10.3189/172756407782871747.

青木輝夫, 田中泰宙 (2008), 大気エアロゾルの沈着が積雪アルベドに与える影響, *天気*, 55, 538–547.

Aoki, T. et al. (2011), Physically based snow albedo model for calculating broadband albedos and the solar heating profile in snowpack for general circulation models, *J. Geophys. Res.*, 116, D11114, doi:10.1029/2010JD015507.

Aoki, T., Matoba, S., Uetake, J., Takeuchi, N., and Motoyama, H., (2014a), Field activities of the “Snow Impurity and Glacial Microbe effects on abrupt warming in the Arctic” (SIGMA) Project in Greenland in 2011–2013, *Bull. Glaciol. Res.*, 32, 3–20, doi:10.5331/bgr.32.3.

Aoki, T. et al. (2014b), Light-absorbing snow impurity concentrations measured on Northwest Greenland ice sheet in 2011 and 2012, *Bull. Glaciol. Res.*, 32, 21–31, doi:10.5331/bgr.32.21.

Armstrong, R. L., and E. Brun (Eds.) (2008), *Snow and Climate: Physical Processes, Surface Energy Exchange and Modeling*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U. K.

Brun, E., E. Martin, V. Simon, C. Gendre, and C. Coleou (1989), An energy and mass model of snow cover suitable for operational avalanche forecasting, *J. Glaciol.*, 35, 333–342.

Brun, E., P. David, M. Sudul, and G. Brunot (1992), A numerical model to simulate snow-cover stratigraphy for operational avalanche forecasting, *J. Glaciol.*, 38, 13–22.

- Budyko, M. I. (1969), The effect of solar radiation variations on the climate of the Earth, *Tellus*, 21, 611–619, doi:10.1111/j.2153-3490.1969.tb00466.x.
- Fettweis, X. et al. (2017), Reconstructions of the 1900–2015 Greenland ice sheet surface mass balance using the regional climate MAR model, *The Cryosphere*, 11, 1015–1033, doi:10.5194/tc-11-1015-2017.
- Fettweis, X. et al. (2020), GrSMBMIP: Intercomparison of the modelled 1980–2012 surface mass balance over the Greenland Ice sheet, *The Cryosphere*, in press.
- Fierz, C. et al. (2009), The International Classification for Seasonal Snow on the Ground, IHP Tech. Doc. Hydrol., vol. 83, UNESCO-IHP, Paris.
- Hansen, J., and L. Nazarenko, (2004), Soot climate forcing via snow and ice albedos, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 101, 423–428, doi:10.1029/2005JD005776.
- 広沢陽一郎 (2017): 札幌の積雪不純物がアルベドに与える効果, 岡山大学理学部地球科学科 平成 28 年度卒業論文.
- Hori, M. et al. (2017), A 38-year (1978–2015) Northern Hemisphere daily snow cover extent product derived using consistent objective criteria from satellite-borne optical sensors, *Remote Sens. Environ.*, 191, 402–418, doi:10.1016/j.rse.2017.01.023.
- IPCC (2007), Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, *Cambridge University Press*, Cambridge, United Kingdom and New York, USA.
- Jafari, M. et al. (2020), The impact of diffusive water vapor transport on snow profiles in deep and shallow snow covers and on sea ice, *Front. Earth Sci.*, 8:249, doi: 10.3389/feart.2020.00249.
- Kajino, M. et al. (2019), NHM-Chem, the Japan Meteorological Agency's Regional Meteorology – Chemistry Model: Model Evaluations toward the Consistent Predictions of the Chemical, Physical, and Optical Properties of Aerosols, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 97, 337–374, doi:10.2151/jmsj.2019-020.
- Kobayashi, S. et al. (2015), The JRA-55 reanalysis: General specifications and basic characteristics, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 93, 5–48, doi:10.2151/jmsj.2015-001.
- Krinner, G. et al. (2018), ESM-SnowMIP: assessing snow models and quantifying snow-related climate feedbacks, *Geosci. Model Dev.*, 11, 5027–5049, doi:10.5194/gmd-11-5027-2018.
- Kuchiki, K. et al. (2015), Elemental carbon, organic carbon, and dust concentrations in snow measured with thermal optical method and filter weighing: variations during 2007–2013 winters in Sapporo, Japan, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 868–882, doi:10.1002/2014JD022144.
- Kurosaki, Y. et al. (2020), Reconstruction of sea ice concentration in northern Baffin Bay using deuterium excess in a coastal ice core from the northwestern Greenland Ice Sheet, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, e2019JD031668, doi:10.1029/2019JD031668.
- Langen, P. L., R. S. Fausto, B. Vandecrux, R. H. Mottram and J. E. Box, (2017), Liquid Water Flow and Retention on the Greenland Ice Sheet in the Regional Climate Model HIRHAM5: Local and Large-Scale Impacts, *Front. Earth Sci.*, 4:110, doi: 10.3389/feart.2016.00110.
- Lehning, M., P. Bartelt, B. Brown, C. Fierz and P. Satyawali (2002a), A physical SNOWPACK model for the Swiss avalanche warning. Part II: Snow microstructure, *Cold Reg. Sci. Technol.*, 35, 147–167, doi:10.1016/S0165-232X(02)00073-3.
- Lehning, M., P. Bartelt, B. Brown and C. Fierz (2002b), A physical SNOWPACK model for the Swiss avalanche warning. Part III: Meteorological forcing, thin layer formation and evaluation, *Cold Reg. Sci. Technol.*, 35, 169–184, doi:10.1016/S0165-232X(02)00072-1.
- Ménard, C. B. et al. (2019), Meteorological and evaluation datasets for snow modelling at ten reference sites: description of in situ and bias-corrected reanalysis data,

- Earth Syst. Sci. Data*, 11, 865-880, doi:10.5194/essd-11-865-2019.
- Menard, C. B. et al. (2020), Scientific and human errors in a snow model intercomparison, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, in press, doi:10.1175/BAMS-D-19-0329.1.
- Mote, T. L. (2007), Greenland surface melt trends 1973–2007: evidence of a large increase in 2007, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L22507, doi:10.1029/2007GL031976.
- Nabat, P. et al. (2015), Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol-atmosphere-ocean model over the Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 3303–3326, doi:10.5194/acp-15-3303-2015.
- Nghiem, S. V. et al. (2012), The extreme melt across the Greenland ice sheet in 2012, *Geophys. Res. Lett.*, 39, L20502, <https://doi.org/10.1029/2012GL053611>.
- Niwano, M., T. Aoki, K. Kuchiki, M. Hosaka and K. Kodama (2012), Snow Metamorphism and Albedo Process (SMAP) model for climate studies: Model validation using meteorological and snow impurity data measured at Sapporo, Japan, *J. Geophys. Res.*, 117, F03008, doi:10.1029/2011JF002239.
- Niwano, M. et al. (2014), Evaluation of updated physical snowpack model SMAP, *Bull. Glaciol. Res.*, 32, 65-78, doi:10.5331/bgr.32.65.
- Niwano, M. et al. (2015), Numerical simulation of extreme snowmelt observed at the SIGMA-A site, northwest Greenland, during summer 2012, *The Cryosphere*, 9, 971-988, doi:10.5194/tc-9-971-2015.
- 庭野匡思, ほか (2017), 2015-2016 冬期の新潟県アメダスへの積雪変質モデル SMAP の適用, *雪氷*, 79, 525-538.
- Niwano, M. et al. (2018), NHM-SMAP: spatially and temporally high-resolution nonhydrostatic atmospheric model coupled with detailed snow process model for Greenland Ice Sheet, *The Cryosphere*, 12, 635-655, doi:10.5194/tc-12-635-2018.
- Niwano, M., A. Hashimoto, and T. Aoki (2019), Cloud-driven modulations of Greenland ice sheet surface melt, *Sci. Rep.*, 9, 10380, doi:10.1038/s41598-019-46152-5.
- 庭野匡思 (2019), グリーンランド氷床における近年の急激な雪氷質量損失 — 現地観測と数値モデルによるメカニズム理解の試み —, *天気*, 66, 225-230, doi:10.24761/tenki.66.3_225.
- Niwano, M. et al. (2020), Meteorological and snow observation data obtained at Sapporo, Japan for snow-related process studies, *PANGAEA*, doi:10.1594/PANGAEA.919800.
- Noël, B. et al. (2018), Modelling the climate and surface mass balance of polar ice sheets using RACMO2 – Part 1: Greenland (1958–2016), *The Cryosphere*, 12, 811–831, doi:10.5194/tc-12-811-2018.
- Onuma, Y. et al. (2020), Physically based model of the contribution of red snow algal cells to temporal changes in albedo in northwest Greenland, *The Cryosphere*, 14, 2087–2101, doi:10.5194/tc-14-2087-2020.
- Painter, T. H. et al. (2007), Impact of disturbed desert soils on duration of mountain snow cover, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L12502, doi:10.1029/2007GL030284.
- Qu, X., and A. Hall (2007), What controls the strength of snow-albedo feedback?, *J. Clim.*, 20, 3971–3981, doi:10.1175/JCLI4186.1.
- Saito, K. et al. (2006), The operational JMA nonhydrostatic mesoscale model, *Mon. Weather Rev.*, 134, 1266–1298, doi:10.1175/MWR3120.1.
- Shimada, R., Takeuchi, N., and Aoki, T. (2016), Inter-annual and geographical variations in the extent of bare ice and dark ice on the Greenland ice sheet derived from MODIS satellite images, *Front. Earth Sci.*, 4, 1–10, doi:10.3389/feart.2016.00043.
- Takeuchi, N. et al. (2018), Temporal variations of cryoconite holes and cryoconite coverage on the ablation ice surface of Qaanaaq Glacier in northwest Greenland, *Ann. Glaciol.*, 59, 21-30, doi:10.1017/aog.2018.19.
- Tanaka, T. Y. and M. Chiba, (2005), Global simulation of dust aerosol with a chemical transport model, MASINGAR, *J.*

Meteorol. Soc. Jpn., 83A, 255–278, doi: 10.2151/jmsj.83A.255.

Touzeau, A., A. Landais, S. Morin, L. Arnaud and G. Picard, (2018), Numerical experiments on vapor diffusion in polar snow and firn and its impact on isotopes using the multi-layer energy balance model Crocus in SURFEX v8.0, *Geosci. Model Dev.*, 11, 2393–2418, doi:10.5194/gmd-11-2393-2018.

Tuzet, F. et al. (2017), A multilayer physically based snowpack model simulating direct and indirect radiative impacts of light-absorbing impurities in snow, *The Cryosphere*, 11, 2633–2653, doi:10.5194/tc-11-2633-2017.

Vionnet, V., (2012), The detailed snowpack scheme Crocus and its implementation in SURFEX v7.2, *Geosci. Model Dev.*, 5, 773–791, doi:10.5194/gmd-5-773-2012.

Warren, S. G., and W. J. Wiscombe (1980), A model for the spectral albedo of snow. II: Snow containing atmospheric aerosols, *J. Atmos. Sci.*, 37, 2734–2745, doi:10.1175/1520-0469(1980)037<2734:AMFTSA>2.0.CO;2.

Wever, N., S. Würzer, C. Fierz and M. Lehning, (2016), Simulating ice layer formation under the presence of preferential flow in layered snowpacks, *The Cryosphere*, 10, 2731–2744, doi:10.5194/tc-10-2731-2016.

Wiscombe, W. J., and S. G. Warren (1980), A model for the spectral albedo of snow. I: Pure snow, *J. Atmos. Sci.*, 37, 2712–2733, doi:10.1175/1520-0469(1980)037<2712:AMFTSA>2.0.CO;2.

Yukimoto, S. et al. (2012), A New Global Climate Model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3 –Model Description and Basic Performance—, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 90, 23–64, doi:10.2151/jmsj.2012-A02.

著者所属:

1. 気象庁気象研究所
2. 国立極地研究所

*** 責任著者:**

Masashi Niwano <mniwano@mri-jma.go.jp>

原稿受領日: 2020年10月30日

掲載受理日: 2020年12月4日

気球観測と流跡線解析による対流圏-成層圏間物質輸送の研究

Studies on material transport between the troposphere and stratosphere using balloon observations and trajectory analyses

稲飯洋一^{1, 2*}

成層圏における対流圏起源物質の分布には成層圏平均子午面循環が主要な役割を果たしている。特に対流圏から成層圏への大気流入部である熱帯対流圏界層における脱水過程や大気混合過程が成層圏全体の水蒸気や対流圏起源長寿命化学種の存在量を決定づけている。裏返せば、成層圏の水蒸気観測によって成層圏平均子午面循環が発見された歴史があり、対流圏起源物質の成層圏における時空間変動は成層圏平均子午面循環強度の季節変動や経年変動を知る手がかりになっている。私は成層圏を研究対象とした二つの気球観測プロジェクトによる観測キャンペーンに参加しながら、自身の研究課題として気球観測データや流跡線解析を用いて、熱帯対流圏界層における脱水過程や対流圏-成層圏間の大気混合過程についての研究や、気球観測データの誤差評価に取り組んできた。本稿ではこれまで私が参加してきた気球観測と自身の研究について紹介させていただきたい。

1. はじめに

この度は、日本大気化学会奨励賞に選出いただき大変光栄に思う。本誌面を借りてその研究課題「気球観測と流跡線解析による対流圏-成層圏間物質輸送の研究」について紹介させていただきたい。まず成層圏と対流圏間の物質輸送の背景となる成層圏平均子午面循環について概説しながら、私がこれまでに参加してきた、そして本研究課題を遂行していく上で基盤となってきた2つの気球観測プロジェクト、Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region (SOWER)プロジェクトとCryogenic Air Samplings (CRYO)プロジェクト、について私なりの目線から簡単に紹介する(2節)。その後、私の取り組んできた研究について、大まかな時系列に沿って紹介していく(3-6節)。

2. 成層圏をめぐる謎と気球観測

成層圏と対流圏間の物質輸送の基本になるのは、

成層圏内を赤道から極域へ向かうブリュワー・ドブソン循環として知られる成層圏平均子午面循環である。この循環は、高度約20 km以下の経路を持つ比較的素早い循環(shallow branch)と高度30 km以上にまで届く経路を持つゆっくりとした循環(deep branch)があることが知られており、どちらも成層圏内の波の碎波によって力学的に駆動されている[e.g., Haynes et al., 1991; Holton et al., 1995; Plumb, 2002]。

この成層圏平均子午面循環の観点から、成層圏の最上流部にあたる赤道上部対流圏/下部成層圏における物質輸送が成層圏全体の対流圏起源物質の存在量に決定的な役割を果たしている。例えば、熱帯対流圏界面付近の非常に寒冷な領域を大気が通過する際には水蒸気が氷晶となり脱水が生じることで、成層圏に流入できる水蒸気量が制限されている。この脱水過程を研究対象の一つとして、赤道域における鏡面冷却型水蒸気ゾンデとオゾンゾンデを組み合わせた観測がSOWERプロジェクト[e.g., Hasebe et al.,

2000]により実施されてきた。私は、北海道大学の修士課程に在学中の 2004 年 12 月に海洋地球観測船「みらい」で実施された水蒸気・オゾンゾンデ観測 [Yoneyama *et al.*, 2008; Fujiwara *et al.*, 2009]から SOWER プロジェクトに参加してきた。

一方で、温室効果気体の地球規模の収支や成層圏大気の化学・物理過程の解明を目的として、Cryogenic Air Sampling (CRYO) プロジェクト[e.g., Nakazawa *et al.*, 1995]が実施されてきた。このプロジェクトでは、大型のプラスチック気球で成層圏に飛揚した極低温冷媒を用いた大気サンプラーにより成層圏の希薄な大気を凍結採取して実験室へ持ち帰り、高精度分析する手法で研究が行われており、各種温室効果気体や化学的に活性な気体の濃度と同位体比、そしてそれらの高度分布と経年変化が明らかにされてきた[e.g., Engel *et al.*, 2009]。私は、東北大学の博士研究員であった 2012 年 2 月に、赤道東部太平洋における学術研究船「白鳳丸」で実施された CRYO グループと SOWER グループの共同観測 [Fuke *et al.*, 2014; 稲飯ら, 2014; Inai *et al.*, 2018]からこのプロジェクトに参加してきた。

3. 熱帯対流圏界層における脱水過程の評価

成層圏へ流入する水蒸気量を制限している成層圏最上流部は、かつては「熱帯対流圏界面」と面的に理解されていたが、2000 年頃から「熱帯対流圏界層(tropical tropopause layer; TTL)」と遷移層として理解されるようになった[Highwood and Hoskins, 1998]。また TTL 内では鉛直輸送すなわち非断熱輸送よりも水平輸送が卓越しているため、この領域における脱水過程も TTL 内における水平移流に伴う脱水過程として注目されるようになった。この脱水過程は、Holton and Gettelman [2001]により提唱されたもので、大気大循環モデルによる数値実験[Hatsushika and Yamazaki, 2003]でその有効性が確認されていたが、観測的立場から検証されたことはなかった。

そこで、SOWER による気球観測で観測された

TTL の空気塊について、流跡線を計算することで同じ空気塊を複数回観測した事例を探し出し、観測された水蒸気混合比を比較することでその変化量を推定する研究に取り組んだ。この手法は match 法と呼ばれ、北極域のオゾンゾンデ観測を用いた von der Gathen *et al.* [1995]や Rex *et al.* [1998]による研究で確立され、成層圏オゾン破壊率の定量化に成功した手法である。しかし極域成層圏と異なり TTL では対流雲の貫入などがあり、単純に流跡線が繋がっただけでは同じ空気塊と見なせないなど解決すべき課題があった。そこで TTL で保存量として扱えるオゾン混合比を用いたスクリーニングなどにより、TTL 領域における match 法を確立した[Inai *et al.*, 2013]。そして解析の結果、成層圏に流入する水蒸気混合比を最終決定している高度域では残念ながら脱水事例を捉えることはできなかったが、少なくとも下部 TTL においては水平移流に伴う脱水が有効に機能していることが示された。

また、このような脱水の本質が氷晶の形成とその重力落下であるため、TTL の環境における雲微物理過程が脱水過程の理解にとって重要である。そこで SOWER による気球観測データの中から、極軌道衛星 Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO)によるライダー観測と同じ空気塊を観測した事例を探索し、鏡面冷却型水蒸気ゾンデにより高精度観測された水蒸気混合比や相対湿度と CALIPSO により観測された氷晶の有無やその光学的な特徴とを比較する研究を行った[Inai *et al.*, 2012]。その結果、TTL における巻雲の光学的な特徴が、TTL における相対湿度に関係していることを見いだした。さらに客観解析データで気象場を確認したところ、そのような相対湿度と氷晶の関係は、熱帯大規模擾乱に伴う大気波動によって TTL に形成される気温偏差場の位相に依存している事が示唆された。

4. 成層圏ゾンデ観測データの誤差評価

成層圏の物質輸送を評価する上で、最も重要となるのが、成層圏における物質の分布とその変動を正確に把握することである。現在の成層圏観測の中心は衛星による遠隔探査であるが、その検証にはゾンデ観測が利用されており、気球観測は今日においても成層圏観測の基盤となっている。中でもフィンランド Vaisala 社の RS80 型と呼ばれるラジオゾンデは 1990 年代から 2010 年頃にかけて現業気象観測において大きな世界シェアを持っていた[e.g., Elms, 2003]。現在では Global Positioning System (GPS)受信機搭載の新型に更新されているが、成層圏物質分布の長期変動を正しく把握するためには RS80 のように過去の一時代を担った観測器の誤差を再評価し必要に応じた補正を行う必要がある。

SOWER による気球観測では 2010 年頃まで RS80 を使用し続けていたが、RS80 と GPS 受信機を搭載した測器との同時飛行も行われていた。そこで、GPS による高度データと RS80 の測定した気圧、気温、湿度から測高公式で計算される高度とを比較することで RS80 の気圧データに含まれる誤差を評価する手法を考案し、このゾンデの持つ気圧バイアスを推定した [Inai et al., 2009]。

さらに、GPS による高度データが得られなかった時代の観測においては、気圧バイアスが高度の誤差として伝播し、鉛直勾配を持つ全ての物理量の観測値に系統的誤差をもたらすという点に着目し、これを評価する研究を行った [Inai et al., 2015]。その結果、RS80 が多用された時代の様々な気象データに高度誤差に起因する各気象要素の誤差が含まれており、それがゾンデ観測データに基づく成層圏オゾンや気温の長期記録にも影響を及ぼしていることを指摘した。

5. 熱帯対流圏界層と成層圏大気の年齢

2節で述べた通り、CRYO プロジェクトにより各種温室効果気体などの高度分布と経年変化が明らかにされ、成層圏の化学・物理過程の知見が蓄積されてき

た。特に、地表に排出/吸収源を持ち増加トレンドを示す長寿命化学種である二酸化炭素や六フッ化硫黄の成層圏における濃度からその成層圏大気が対流圏を離れてから経過した時間「成層圏大気の年齢」 [Kida, 1983; Waugh and Hall, 2002]が推定されてきた(このため二酸化炭素や六フッ化硫黄は「クロックトレーサー」とも呼ばれている)。

近年の地球温暖化に伴って成層圏平均子午面循環が強化されていることが全球モデルを用いた多くの研究から指摘されており[e.g., Butchart, 2014, and references therein], この循環の強化は「成層圏大気の年齢」の減少として確認されるはずである。しかし、CRYO プロジェクトなどによる中高緯度成層圏における観測結果から「成層圏大気の年齢」の減少は確認されず問題となっていた [Engel et al., 2009; 2017]。

このような成層圏大気年齢と成層圏平均子午面循環強度のトレンドの問題を解決する手がかりを求めて、SOWER グループと CRYO グループによる共同観測が実施された [Hasebe et al., 2018]。その観測結果は、「クロックトレーサー」の鉛直分布に注目した研究 [Sugawara et al., 2018]や、isotopocule を用いた研究 [Toyoda et al., 2018], SOWER による水蒸気観測と流跡線を組み合わせた研究 [Hasebe et al., 2018]としてまとめられたが、私は独自の研究として TTL における大気輸送過程に注目した研究を行った。

着目したのは、TTL と中高緯度成層圏間の大気混合の経年変化が成層圏内の子午面循環速度とは独立に成層圏大気年齢を変動させる点であり、流跡線解析によりこれを推定することを試みた [Inai, 2018]。TTL を始点とした多粒子後方流跡線解析を行い、1980 年から 2016 年までの熱帯外成層圏から TTL へ混入する大気の割合を計算した結果、1980 年から 2000 年頃にかけて成層圏起源の大気が増加し、それ以降は減少するという長期変化が示された。この変化は北半球中緯度中部成層圏における成層圏大気年齢のトレンドにも無視できない影響を及ぼす。具体的な値はトレンド評価期間により異なるものの、成

層圏内の輸送のみを考慮した場合に計算されるトレンドと CRYO 実験などで観測されているトレンド [Engel *et al.*, 2017] との差の 2 割から 8 割を埋め合わせている可能性が示された。さらにこの研究で推定された熱帯外成層圏から TTL への大気輸送量が従来の知見よりも大きい点について詳細に調査したところ、従来の推定値の根拠とされてきた航空機観測が赤道ケルビン波のある特定の位相のみを選択的に観測していることに原因がある可能性を指摘した。

6. 北極最下部成層圏における物質輸送

成層圏平均子午面循環において下流域にあたる中高緯度上部対流圏/下部成層圏も、TTL と同じく厚みを持った遷移層として理解され extratropical upper troposphere and lower stratosphere (ExUTLS) と呼ばれている [Gettelman *et al.*, 2011]。この領域の大気微量成分やエアロゾルは北極域の放射バランスに重要な役割を担っているが、この領域の物質分布は季節変動が大きく、さらに「大気輸送場の変動」に「輸送されてくる大気の組成の変動」が重なっておりこれらを同時に理解することは容易ではない。そこで、Inai [2018] で用いた多粒子流跡線解析の手法に Comprehensive Observation Network for TRace gases by AirLiner (CONTRAIL; Machida *et al.* [2008]) プロジェクトによる北極域 ExUTLS における航空機観測データを組み合わせることで、「大気輸送場の変動」と「輸送されてくる大気の組成の変動」を切り分けながら物質分布の季節変動を評価する手法を考案し研究を進めた [Inai *et al.*, 2019]。

この研究ではまず多粒子流跡線解析結果を航空機による長寿命化学種観測に整合するように補正することで「大気輸送場の変動」をまず押さえて、その上で、化学的消失過程をもつ物質の混合比も観測に整合するように化学消失率を推定した。これにより、航空機観測された大気成分(二酸化炭素, 六フッ化硫黄, メタン, 一酸化二窒素, 一酸化炭素)について ExUTLS 領域において観測と矛盾のない連続的な

時空間分布を復元した。そして、六フッ化硫黄, 二酸化炭素の時空間分布が「大気輸送場の変動」によって決定され、メタン, 一酸化二窒素, 一酸化炭素の時空間分布については成層圏における化学的消失過程, すなわち「成層圏経由で輸送されてくる大気の物質の変動」により決定されている様子を示した。

7. おわりに

以上のような研究のベースとなるゾンデ観測技術や解析技術, 研究者としての作法や心意気は, 指導教員であった北海道大学の長谷部文雄教授と藤原正智准教授にご指導いただいた。博士課程終了後も SOWER による観測キャンペーンに参加させていただきながら, 名古屋大学の柴田隆教授や京都大学の塩谷雅人教授にご指導いただいた。また博士研究員として東北大学に異動して以降は, 中澤高清教授, 青木周司教授, 森本真司教授に大気球や航空機による観測や温室効果気体の分析をご指導いただき, CRYO プロジェクトによる観測にも参加させていただいた。最近では CONTRAIL グループの皆様にもデータや結果の考察でお世話になってきた。この場を借りて御礼申し上げたい。

本稿の冒頭でも述べたとおり, 本研究課題は SOWER プロジェクトと CRYO プロジェクトによる気球観測に関わらせていただいたことで遂行することができた。これらのプロジェクトに関わってこられた皆様, 特に船や島の観測現場でご一緒してきた皆様, そしてこれまで私が在籍してきた北海道大学, 名古屋大学, 東北大学, 第 54 次日本南極地域観測隊, 京都大学でお世話になった仲間, 同僚, スタッフ, 教員, 学生の皆様にも謝意を表したい。

最後に, SOWER と CRYO によるこれまでの気球観測データを使えばできるはずの, まだ実現できていない研究構想がいくつか残っている。今は研究を本務とする職にはないが, いつかそれらの研究を実現したいと思っている。

参考文献

- Butchart, N. (2014), The Brewer-Dobson circulation, *Rev. Geophys.*, 52, 157-184, doi:10.1002/2013RG000448.
- Elms, J. (2003), WMO catalogue of radiosondes and upper-air wind systems in use by members in 2002 and compatibility of radiosonde geopotential measurements for period from 1998 to 2001, Report No. 80, WMO/TD No. 1197, World Meteorological Organization, Geneva.
- Engel, A. et al. (2009), Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years. *Nature Geoscience*, 2(1), 28–31. <https://doi.org/10.1038/ngeo388>.
- Engel, A. et al. (2017), Mean age of stratospheric air derived from AirCore observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 6825-6838, <https://doi.org/10.5194/acp-17-6825-2017>.
- Fujiwara, M. et al. (2009), Cirrus observations in the Tropical Tropopause Layer over the western Pacific, *J. Geophys. Res.*, 114, D09304, doi:10.1029/2008JD011040.
- Fuke H. et al. (2014), Balloon Launch and Flight Operation from the Research Vessel “Hakuho-maru” for Stratospheric Air Sampling over the Eastern Pacific Equator, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 31, 1540–1548, <https://doi.org/10.1175/JTECH-D-13-00248.1>.
- Gettelman, A. et al. (2011), The extratropical upper troposphere and lower stratosphere, *Rev. Geophys.*, 49, RG3003, doi:10.1029/2011RG000355.
- Hasebe, F. et al. (2000), First results from the SOWER/Pacific 1998/1999 campaigns, in: *Atmospheric Ozone, Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*, Sapporo, 3–8 July 2000, 783–784.
- Hasebe, F. et al., (2018), Coordinated Upper troposphere-to-stratosphere balloon experiment in Biak, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 99, 1213-1230, doi: 10.1175/BAMS-D-16-0289.1.
- Hatsushika, H., and K. Yamazaki (2003), Stratospheric drain over Indonesia and dehydration within the tropical tropopause layer diagnosed by air parcel trajectories, *J. Geophys. Res.*, 108(D19), 4610, doi:10.1029/2002JD002986.
- Haynes, P. H., C. J. Marks, M. E. McIntyre, T. G. Shepherd, and K. P. Shine (1991), On the “downward control” of extratropical diabatic circulations by eddy-induced mean zonal forces, *J. Atmos. Sci.*, 48(4), 651-678.
- Highwood, E. J., and B. J. Hoskins (1998), The tropical tropopause, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 124, 1579-1604.
- Holton, J. R. et al. (1995), Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, 33, 403-439.
- Holton, J. R., and A. Gettelman (2001), Horizontal transport and the dehydration of the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 2799-2802.
- Inai, Y. (2018), Long-term variation in the mixing fraction of tropospheric and stratospheric air masses in the upper tropical tropopause layer, *J. Geophys. Res.: Atmos.*, doi:10.1029/2018JD028300.
- Inai, Y., F. Hasebe, K. Shimizu, and M. Fujiwara (2009), Correction of radiosonde pressure and temperature measurements using simultaneous GPS height data, *SOLA*, 5, 109-112, doi:10.2151/sola.2009-028.
- Inai Y., T. Shibata, M. Fujiwara, F. Hasebe, and H. Voemel (2012), High supersaturation inside cirrus in well-developed tropical tropopause layer over Indonesia, *Geophys. Res. Lett.*, 39, L20811, doi:10.1029/2012GL053638.
- Inai, Y. et al. (2013), Dehydration in the tropical tropopause layer estimated from the water vapor match, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8623-8642, doi:10.5194/acp-13-8623-2013, 2013.
- 稲飯洋一, 青木周司, 本田秀之, 長谷部文雄, 植松光夫 (2014), 「白鳳丸」EqPOS 航海におけるゾンデ観測の実施, *宇宙航空研究開発機構研究開発報告*, JAXA-RR-13-011, 61-70.
- Inai, Y., M. Shiotani, M. Fujiwara, F. Hasebe, and H. Voemel (2015), Altitude misestimation caused by the Vaisala RS80 pressure bias and its impact on meteorological profiles, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 4043–4054, doi:10.5194/amt-8-4043-2015.
- Inai, Y. et al. (2018), Balloon-borne tropospheric CO2

- observations over the equatorial eastern and western Pacific, *Atmospheric Environment*, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.04.016>.
- Inai, Y. et al. (2019), Seasonal characteristics of trace gases transports into the extratropical upper troposphere/lower stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 7073–7103, <https://doi.org/10.5194/acp-19-7073-2019>.
- Kida, H. (1983), General circulation of air parcels and transport characteristics derived from a hemispheric GCM, Part 2, Very long-term motions of air parcels in the troposphere and stratosphere, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 61, 510-522.
- Machida, T. et al. (2008), Worldwide measurements of atmospheric CO₂ and other trace gas species using commercial airlines, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 25, 1744–1754, <https://doi.org/10.1175/2008JTECHA1082.1>.
- Nakazawa, T. et al. (1995), Measurements of the stratospheric carbon dioxide concentration over Japan using a balloon-borne cryogenic sampler. *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1229–1232.
- Plumb, R. A. (2002), Stratospheric transport, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 80, 793-801.
- Rex, M. et al. (1998), In situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/1992: A Lagrangian approach, *J. Geophys. Res.*, 103, 5843–5854.
- Sugawara, S. et al. (2018), Age and gravitational separation of the stratospheric air over Indonesia, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 1819-1833, <https://doi.org/10.5194/acp-18-1819-2018>.
- Toyoda, S. et al. (2018), Vertical distributions of N₂O isotopocules in the equatorial stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 833-844, <https://doi.org/10.5194/acp-18-833-2018>.
- von der Gathen et al. (1995), Observational evidence for chemical ozone depletion over the Arctic in winter 1991–92, *Nature*, 375, 131–134.
- Waugh, D., and T. Hall (2002), Age of stratospheric air: Theory, observations, and models, *Rev. Geophys.*, 40(4), 1010, doi:10.1029/2000RG000101.
- Yoneyama, K. et al. (2008), Correction for radiation dry bias found in RS92 radiosonde data during the MISMO field experiment, *SOLA*, 4, 13-16, doi:10.2151/sola.2008-004.

原稿受領日: 2021 年 1 月 4 日

掲載受理日: 2021 年 1 月 17 日

著者所属:

1. 気象庁 札幌管区气象台
2. 東北大学 大学院理学研究科

*** 責任著者:**

Yoichi Inai <yoichi_inai@met.kishou.go.jp>

Source apportionment of carbonaceous aerosols in land based on observations, remote sensing and transport models

現場・リモート観測および大気輸送モデルを用いた炭素性エアロゾル発生に関する陸域生態系変動との統合的研究

Chunmao Zhu^{1*}

Carbonaceous aerosols are key components of atmospheric trace constituents affecting earth's environment. They could be emitted from fossil fuel combustions, biomass burning, biogenic sources, and secondary oxidation in the atmosphere. Depending on regions, the sources of carbonaceous aerosols varied largely. In this paper, examples are introduced regarding source apportionment of carbonaceous aerosols based on ground-based observations in lands, open fire occurrences detected by satellites, and atmospheric transport models. Black carbon and organic compositions were quantified either by on-line observations or laboratory analyses focusing on mass spectrometry technologies. Moreover, as open fires are major natural sources of carbonaceous aerosols and remote sensing techniques have large uncertainties of fire detection due to coarse resolution, the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) burned area was validated in the boreal Eurasia using higher resolution satellite products such as Landsat 7 ETM+, RapidEye, WorldView-2, and GeoEye-1. Lagrangian transport models, FLEXPART and HYSPLIT were also used to investigate source regions and sectoral contributions to carbonaceous aerosols in East Asia and the Arctic. The findings emphasize the importance to unveil the sources of carbonaceous aerosols to better understanding their variations and effects on climate and environment.

1. Introduction

Aerosols affect climate change, biogeochemical cycles of major nutrients such as nitrogen, phosphorus and iron, and human health. Progresses have been achieved to understand the climatic and biogeochemical effects of aerosols, while large uncertainties still exist due to the complexity of aerosol composition, sources and transformation processes in

the atmosphere. As one of the key components, carbonaceous aerosols are of fundamental importance, yet our understandings are inadequate. Carbonaceous aerosols are composed of black carbon (BC or elemental carbon, EC) and organic aerosols (OA, or organic carbon, OC). BC has a large contribution to global warming among all atmospheric trace components. In comparison, organic aerosols have

been generally deemed to cause cooling effects (Penner et al., 1992), while the light-absorbing parts, brown carbon aerosols, would result in global warming.

Carbonaceous aerosols are originated from various sources. Specifically, fossil fuel combustion, biomass burning, biogenic emissions and secondary formation are the major source streams. In East Asia, along with the rapid growth of economy, emissions of carbonaceous aerosols from fossil fuel combustion had been increased for the past decades, although a recent study found decreasing trend of BC emission in China since 2010 [Kanaya et al., 2020]. Meanwhile, emissions from biomass burning had large interannual variations, depending on regulation policies on residential and open biomass burnings, as well as weather conditions. Biogenic emissions are changing depending on seasons and years as well, under the global warming scenarios with changing emissions of biogenic volatile organic compounds. To better

understand the characteristics of carbonaceous aerosols and the effects on climate, it is therefore advantageous to investigate the chemical components and sources. Examples of aerosol source apportionments based on chemical properties, validation of the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) burned area in boreal Eurasia and simulation of Arctic BC sources are introduced in this paper.

2. Aerosol chemical properties and source apportionments

2.1. Transboundary pollution from residential burning, forest fires and open crop residue burning

Biomass burning largely affects the chemical composition of carbonaceous aerosols. Study at Cape Hedo, Okinawa Island, from 2009 to 2012 indicated the abundances of levoglucosan and its isomers, mannosan and galactosan. All of these anhydrosugars are tracers of biomass burning [Zhu et al., 2015]. A clear seasonal

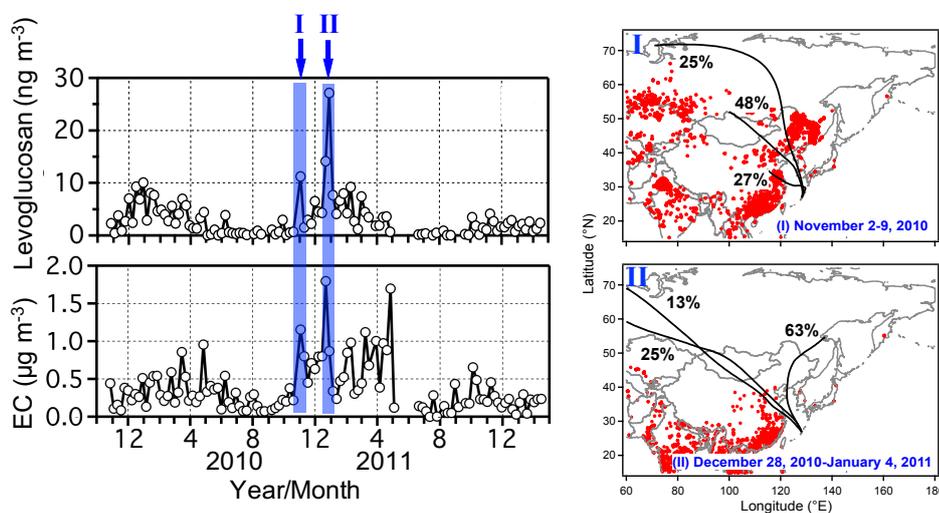


Figure 1. Seasonal variations of levoglucosan and elemental carbon (left) at Cape Hedo, Okinawa, from October 2009 to February 2012. Typical events marked I (November 2–9, 2010) and II (December 28, 2010–January 4, 2011) were analyzed in details for air mass origins (right). In the right panels, clusters of 5-day backward trajectories arriving at 500 m a.g.l. at Cape Hedo, Okinawa, are given. The numbers in each panel indicate the percentages of hourly trajectories in the events with such origins. Fire spots in East Asia during (I) October 28–November 9, 2010 and (II) December 23, 2010–January 4, 2011 are also shown. Reproduced from Zhu et al. (2015) under the Creative Commons Attribution 4.0 License, and the copyright is belonging to the authors of the original paper.

trend of levoglucosan and EC with winter maxima and summer minima was found (Figure 1). Levoglucosan was also found to have a positive relation with nss-K⁺ ($r = 0.38$, $p < 0.001$), another biomass burning tracer. Air mass trajectories and fire hotspots indicated that the seasonal variations of anhydrosugars are associated with long-range transport of biomass burning emissions from the Asian continent. Winter maxima of anhydrosugars were related to open burning, and domestic heating and cooking in northern and northeastern China, Mongolia and Russia under the enhanced westerly winds. For example, as of event I in Figure 1, air masses were originating from northern to northeastern China, along with high loadings of fire spots. Of event II, relatively small number of fire spots were observed, and domestic burning for heating and cooking from a region of 30–60 °N, 80–120 °E was likely the emission source.

Furthermore, the ratio of anhydrosugar isomers is inferable on the burning sources. The monthly averaged levoglucosan/mannosan ratios were lower (2.1–4.8) in May–June and higher (13.3–13.9) in November–December. The lower values were related with softwood burning in northern China, Korea and southwestern Japan, whereas the higher values were related with agricultural waste burning of maize straw in the North China Plain. Based on a tracer method, it is estimated that residential burning in Northeast China could contribute up to ~30% of aerosol OC, suggesting an important source of transboundary pollution in winter.

Similarly, equivalent black carbon (eBC) particle mass along with the absorption Ångström exponent (AAE), atmospheric CO and CH₄, as well as levoglucosan in total suspended particles were quantified on Rishiri Island in northern Japan from April 2014 to March 2015 [Zhu *et al.*, 2019]. Sixteen

high eBC events were identified and the sources examined using the FLEXPART and HYSPLIT transport models supported by VIIRS fire hotspots. These events were analyzed for the variations of AAE, CO, and CH₄, and the slopes of the BC–CO and CH₄–CO correlations were investigated under different emission source regimes. It was found that the high eBC events in northern Japan are affected by long-range transport of pollutants emitted by different sources at different times of the year. Fossil fuel combustion in China were affecting eBC at Rishiri throughout the year, while forest fires in Siberia and crop residue burning on the Northeast China Plain were important sources in summer and autumn, respectively. It was also found that the high eBC events caused by fossil fuel combustion emissions were associated with low AAE values of ~1, a reasonably low BC–CO slope of ~3–6 ng m⁻³/ppb, and a background levoglucosan level of <1 ng m⁻³. In comparison, high eBC events caused by biomass burning emissions were associated with AAE values of ~1.5–2.0, a BC–CO slope of >7 ng m⁻³/ppb, and a notable increase of levoglucosan to >20 ng m⁻³. These results emphasize the effects of Siberian forest fires and open crop residue burning in China on carbonaceous aerosols in the western North Pacific.

2.2. Fungal spores dominant bioaerosol mass in mid-latitude forest

In forested regions, both primary biological aerosol particles (PBAPs) and oxidation products of biogenic volatile organic compounds (BVOCs) contribute significantly to organic aerosols (OAs). Biomarkers of PBAP and secondary organic aerosols (SOAs) for their diurnal variability in a temperate coniferous forest in Wakayama, Japan were investigated [Zhu *et al.*, 2016]. Significantly higher levels of PBAP tracers, fungal spores, trehalose, arabinitol and mannitol, were observed

in nighttime than daytime ($p < 0.05$), associating with the nocturnal sporulation under high relative humidity. On the contrary, substantial photochemical SOA formation was observed as BVOC oxidation products showed higher levels in daytime than nighttime. Using tracer-based methods, it was estimated that fungal spores account for 45% of OC in nighttime and 22% in daytime, respectively. In comparison, the contributions from BVOC oxidation products were 15% and 19% in nighttime and daytime, respectively. These results indicated that fungal spores overwhelmed BVOC oxidation products in contributing to OA, especially in nighttime.

3. Validation of burned area in boreal Eurasia

Carbonaceous aerosols emitted from wildfires in boreal Eurasia can be transported to the Arctic, accelerating global warming following subsequent deposition. The MODIS burned area product, MCD64A1, is the basis of fire emission products Global Fire Emissions Database. However, uncertainties due to the “moderate resolution” (500 m) characteristic of the MODIS sensor could be introduced.

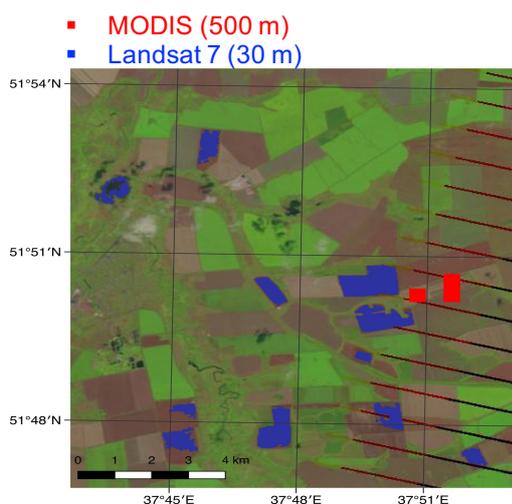


Figure 2. Example burned area map showing a comparison of MODIS MCD64A1 and Landsat 7 ETM+ products for croplands.

To solve this point, a size-dependent validation of MCD64A1 with reference to higher resolution (better than 30 m) satellite products (Landsat 7 ETM+, RapidEye, WorldView-2, and GeoEye-1) for six ecotypes over 12 regions of boreal Eurasia were conducted [Zhu *et al.*, 2017]. The 2012 boreal Eurasia burning season were considered when severe wildfires occurred and when Arctic sea ice extent was historically low. Among the six ecotypes, it was found that MCD64A1 burned areas comprised only 13% of the reference products in croplands because of inadequate detection of small fires (<100 ha) (Figure 2). The results indicated that over all ecotypes, the actual burned area in boreal Eurasia (15,256 km²) could have been ~16% greater than suggested by MCD64A1 (13,187 km²) when applying the correction factors. The findings implied the effects of wildfire emissions in boreal Eurasia on Arctic warming could be greater than current estimate.

4. Simulation of Arctic BC sources

The Arctic environment is undergoing rapid changes such as faster warming than the global average and exceptional melting of glaciers in Greenland. BC particles are one cause of Arctic warming and glacier melting. However, the sources of BC particles are still uncertain. The potential emission sensitivity of atmospheric BC present over the Arctic (north of 66 °N) were simulated using the FLEXPART Lagrangian transport model (version 10.1) [Zhu *et al.*, 2020]. This version included a new aerosol wet removal scheme, which better represents particle-scavenging processes than older versions did. Arctic BC at the surface (0–500 m) and high altitudes (4750–5250 m) was sensitive to emissions in high latitude (north of 60 °N) and mid-latitude (30–60 °N) regions, respectively. Geospatial sources of Arctic BC were quantified, with a focus on

emissions from anthropogenic activities (including domestic biofuel burning) and open biomass burning (including agricultural burning in the open field) in 2010. It was found that anthropogenic sources contributed 82% and 83% of annual Arctic BC at the surface and high altitudes, respectively. Arctic surface BC comes predominantly from anthropogenic emissions in Russia (56%), with gas flaring from the Yamalo-Nenets Autonomous Okrug and Komi Republic being the main source (31% of Arctic surface BC). These results highlight the need for regulations to control BC emissions from gas flaring to mitigate the rapid changes in the Arctic environment. In summer, combined open biomass burning in Siberia, Alaska, and Canada contributes 56%–85% (75% on average) and 40%–72% (57%) of Arctic BC at the surface and high altitudes, respectively. A large fraction (40%) of BC in the Arctic at high altitudes comes from anthropogenic emissions in East Asia, which suggests that the rapidly growing economies of developing countries could have a non-negligible effect on the Arctic. This year-round evaluation of Arctic BC sources being performed using the new wet deposition scheme in FLEXPART provides a scientific basis for actions to mitigate the rapidly changing Arctic environment.

Acknowledgement

The results presented in this paper are based on several studies conducted by the author, with supports from a big list of people. Sincere gratitude is dedicated to professor Hisayuki Yoshikawa-Inoue, Graduate School of Environmental Sciences, Hokkaido University (then), professor Kimitaka Kawamura, Institute of Low Temperature Sciences, Hokkaido University (then, and now at Chubu University), principal researcher Yugo Kanaya, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology and colleagues

and staffs in each of the groups for their supervisions and supports. The author is grateful to professor Michihiro Mochida (Nagoya University), Dr. Yoko Iwamoto (Nagoya University then, Hiroshima University now), professor Pingqing Fu (Tianjian University) and Dr. Hiroshi Tanimoto (National Institute for Environmental Studies) for sampling assistances and fruitful discussions.

References

- Kanaya, Y. et al. (2020), Rapid reduction in black carbon emissions from China: evidence from 2009–2019 observations on Fukue Island, Japan, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 6339–6356.
- Penner, J. E., R. E. Dickinson, and C. A. O'Neill (1992), Effects of Aerosol from Biomass Burning on the Global Radiation Budget, *Science*, 256, 1432–1434.
- Zhu, C., K. Kawamura, and B. Kunwar (2015), Effect of biomass burning over the western North Pacific Rim: wintertime maxima of anhydrosugars in ambient aerosols from Okinawa, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 1959–1973.
- Zhu, C., K. Kawamura, Y. Fukuda, M. Mochida, and Y. Iwamoto (2016), Fungal spores overwhelm biogenic organic aerosols in a mid-litudinal forest, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 7497–7506.
- Zhu, C., H. Kobayashi, Y. Kanaya, and M. Saito (2017), Size-dependent validation of MODIS MCD64A1 burned area over six vegetation types in boreal Eurasia: Large underestimation in croplands, *Sci. Rep.*, 7, 4181.
- Zhu, C. et al. (2019), Sources of atmospheric black carbon and related carbonaceous components at Rishiri Island, Japan: The roles of Siberian wildfires and of crop residue burning in China, *Environ. Pollut.*, 247, 55–63.
- Zhu, C. et al. (2020), Flexpart v10.1 simulation of source contributions to Arctic black carbon, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 1641–1656.

Received: 15 December, 2020

Accepted: 23 December, 2020

Author Affiliation:

1. Japan Agency for Marine-Earth Science and
Technology (JAMSTEC)

* Corresponding author:

Chunmao Zhu <chmzhu@jamstec.go.jp>

書評 『Atmospheric Multiphase Chemistry: Fundamentals of Secondary Aerosol Formation』

江波 進一^{1*}

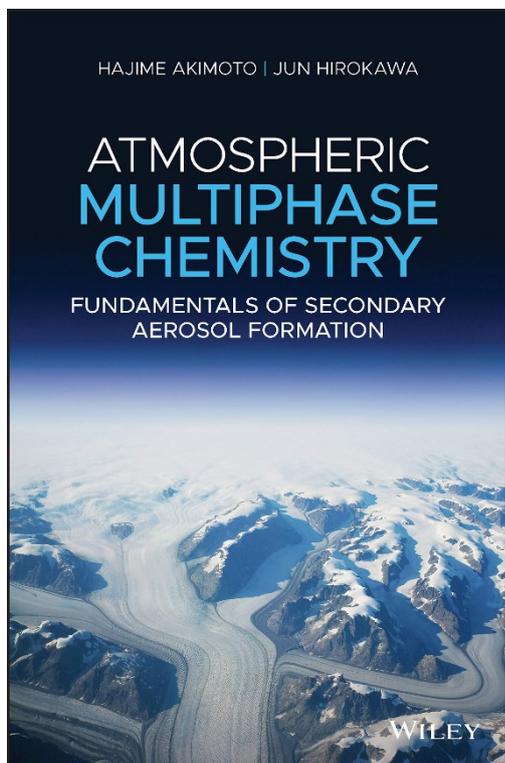
【書籍名】

Atmospheric Multiphase Chemistry: Fundamentals of Secondary Aerosol Formation

Hajime Akimoto, Jun Hirokawa 著

ISBN 978-1-119-42242-6

WILEY



私が学生の頃、私にとっての大気化学の「バイブル」は Finlayson-Pitts & Pitts の *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere: Theory, Experiments, and Applications* [Academic Press, 1999 年発刊] だった。分厚く、かなり大きめのサイズの本を初めて手に取って読んだとき、非常にワクワクしたことを覚えている。物理化学の教科書に書かれている熱力学や反

応速度論の式が、いかに大気で起こっているリアルな現象と関連しているのかが実感できた。その後、博士号を取り、ポスドク・独立研究者となり、論文執筆時や実験の発案などの折に触れて、この「バイブル」を何度も参考にしてきた。ただ、そこに書かれている知見が、次第に物足りなくなってきた。その本が書かれた 1999 年以降に、実験装置や理論計算の急速な発展によって、気液界面の分子構造やそこで起こる化学反応・物理過程の理解が進んだからである。地球大気は気体・液体・固体が複雑に関与する多相で構成されている。大気多相反応、特に界面で起こる大気化学反応・物理過程を取り扱う専門書が待ち望まれていた。

本書は、大気多相反応を重点的に扱った初めての専門書である。本書の構成は以下のとおりである。第 1, 2 章では、イントロダクションとして、エアロゾルに関連する熱力学や反応速度論などの基礎が書かれている。第 3, 4 章では、二次有機エアロゾル(SOA)に関連する気相反応、液相反応を取り扱っている。特にアルケン(テルペン類など)とオゾンの反応で生成するクリーギー中間体が関与する反応、peroxy radical (RO₂)の分子内自己酸化反応、organosulfate 生成反応など、SOA 生成のカギとなる最新の知見が詳細に解説されている。SOA 生成・成長の鍵となる低分子→高分子のプロセスの理解には、有機化学の知見が必須である。実際の大気中の SOA は酸性で、SOA 中で起こる多くの有機化学反応は酸触媒によって進む。例えば、glyoxal は酸(H⁺)触媒条件で、より大きな分子に変換されていく。このような SOA 中で起こる重要な反応スキームが詳しく紹介されている。

第5, 6章では, 本書のハイライトともいうべき, 界面反応を含む大気多相反応に関する最新の知見が詳細に紹介されている。空気-エアロゾル, 空気-水, 空気-固体界面の物理化学的性質と, そこで起こる化学反応を取り扱っており, 大変興味深い。特に, 近年, 最先端の分光技術や理論計算によって明らかになってきた空気-水界面の分子レベル(10^{-10} メートルスケール)の情報は, これまでの大気化学の専門書になかったものである。また, 従来の大気化学ではブラックボックスであった界面特有の反応メカニズムが詳細に解説されている。

第7章では, エアロゾル生成と雲粒生成の最新の知見が詳しく解説されている。気候変動に関する政府間パネル(IPCC)の報告書によると, 放射強制力の見積りの不確かさが最も大きいのは, エアロゾルと雲の生成過程に関する項目である。

第8章では, SOA のフィールド観測の最新の研究が紹介されている。海洋上, 森林域, 都市部で観測された SOA の成分の違いや想定される生成メカニズムが解説されている。

最新の大気化学, 特にエアロゾルを学びたい大学院生にとって, 本書は最良の教科書である。英語で書かれており, 最先端の内容を含むため, 学び始めの学部生・修士課程の学生にとっては少しハードルが高いかもしれないが, 尻込みせずにぜひ挑戦してほしい。もちろん, プロフェッショナルな大気化学者にとっては, 非常に有用な専門書として重宝するだろう。また, 大気化学以外の多相反応を扱う様々な分野(生化学やグリーンケミストリー等)の研究者にもおすすめである。本書が若い世代の新「バイブル」として広く読まれ, 新しい学問分野の開拓の礎となることを期待する。

1. 国立環境研究所

* Shinichi Enami <enami.shinichi@nies.go.jp>

フランス滞在記

岡本祥子^{1*}

1. はじめに

私は、2019年6月からフランスでポスドクとして働いています。この原稿の依頼を受け取った際に、フランスでの生活と、私が日本大気化学会・女性活躍推進ワーキンググループ(女性WG)の一員であることから、フランス女性の働き方のようなことに関することを書いて欲しいということでしたので、今回はその二つについて簡単にご紹介したいと思います。

2. 新型コロナ以前の生活

私が所属する研究所 LISA (Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques) はパリ郊外のクレティユにあるパリ第12大学(UPEC, Université Paris-Est Créteil)内にあります。私は、およそ10~15名ほどの”Spectroscopie”(分光学)グループに所属しており、MetOp衛星に搭載されたIASI (Infrared Atmospheric Sounder Interferometer) と GOME-2 (Global Ozone Monitoring Experiment-2) の二つのセンサのデータから作成された対流圏オゾンデータの解析を行っています。そして、同僚たちのほとんどは衛星やモデルのデータを使った研究を行っています。研究所内にはフランス人だけでなく、ベトナム人、ドイツ人、チュニジア人、アルジェリア人、イタリア人等多くの外国人がいますが、日本同様に、基本的にメールでのお知らせやミーティングは全てフランス語で、事務の方々のほとんどは英語を話しません。ただ、フランス語には英語と同じあるいは似た綴りの単語が多くあるため、スライドやメールの内容を理解あるいは推察することはできます。この点は、日本にいる外国人よりも恵まれていると思います。

また、フランスでは日本に比べて、子供たちの休みは非常に多いです。水曜日は休みの小学校が多く、

長い夏休みと冬休みとは別に、春、秋、冬に二週間の休みがあります。そして、小学校への送り迎えもしなければならぬので、小さな子供をもつ親の負担は非常に大きいはずですが、皆がどのように対処しているのかはよく知らないため、もしまた別の機会があれば、その時には周りの話を聞いて、ご紹介したいと思います。

3. 新型コロナ以降の生活

フランスでは、すでに二度の全土ロックダウンが行われました。一度目は、3月17日から5月11日までのおよそ2ヶ月間で、非常に厳しい外出制限がありました。全ての学校は休校、公園や森は閉鎖(人々が集まってしまうため)となりました。私の研究はパソコンがあれば大丈夫なので問題ありませんでしたが、同僚が大学内建物の屋上で行っていた大気中のアンモニア濃度の観測は止まってしまったそうです。そして、ロックダウン明けも政府が在宅勤務を推奨していたため、私は夏休み明けの9月まで一度も職場へ行くことはありませんでした。

私は、夏休み明けしばらく毎日出勤していましたが、誰かと同じ部屋に滞在する際にはマスク着用という決まりができ、同僚の同僚はそれに耐えられなくなったらしく、曜日を決めて順番に出勤することになりました。フランス人はバカンスへの情熱が日本人の比ではないため、日本のようにGo Toキャンペーンがなくとも、皆が夏休みを楽しんだせいか、夏休み後は徐々に患者数が増え続け、10月半ばに夜間外出禁止、そして10月末より二度目のロックダウンが始まりました。ただ、二度目は一度目に比べて規制が緩く、学校は開校され、私も週に一度出勤してました。全員がロックダウンに慣れてしまったせいか、一度目のような緊

迫感はありませんでした。そして、クリスマス休暇前にはロックダウンは解除され、夜間外出禁止は続いているものの、ドイツやイタリアとは違い、自由に旅行や買い物ができるようになりました。

4. フランスでの家族形態の多様性

フランス女性のキャリア、出産、育児等のトピックについて一般的に言われていることは、インターネットで検索すれば多くの記事を見つけることができると思うので、今回は別のトピックについてご紹介したいと思います。それは、フランスでの家族形態の多様性についてです。私はフランス語が話せないため、職場外のフランス人の友人は非常に少ないですが、話を聞く限り、日本の「普通の家族」に当てはまらない家族が多いという印象を受けます。例えば、ある友人は、国際線のキャビンアテンダントをしながら二人の子供を育てるシングルマザーです。彼女は元パートナーとは結婚せずに子供をもうけ、彼女がフライトで不在の間は、彼女の母と叔母が子供たちの面倒をみます。また別の友人は弁護士で、最近ポルトガル人男性との間に女の子が生まれました。ただ、そのパートナーは無職です。そして、また別の友人の両親には大きな実子が三人いますが、最近、育児放棄されていた女の子を養子に迎えて育てています。もちろん、これらのケースがフランスでは一般的だと言うつもりはありませんが、少なくとも当たり前を受け入れられています。

私の個人的な感想ですが、日本では、「女は結婚して子供を産むべき」、「男が外で働いて、女が家事をする」、「0歳から保育園に預けるのはかわいそう」、「親が離婚したら子供がかわいそう」というような固定観念がフランスに比べて強く、このことが女性のキャリアの妨げの一因ではないかと思います。もし、日本でも様々な家族形態を受け入れ、柔軟に対応できる働き方がもう少し浸透すれば、女性が家庭を原因としてキャリアを諦めるということが減るのではないかと私は思っています。例えば、子供を育てながら Ph.D.取得

を目指すとか、時短あるいは在宅勤務でポスドクとして働くというような形が増えてもいいのではないのでしょうか。ただ、このような問題は選択する側だけでなく、受け入れるあるいは雇用する側の意識や仕組みの変化が必要であり、女性 WG だけで議論する域を超えた課題だと思います。

著者所属:

1. LISA (Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques), UMR CNRS 7583

* 責任著者:

Sachiko Okamoto <sachiko.okamoto@lisa.ipsl.fr>

女性活躍推進 WG の最近の活動と

第 3 回女性会員の集いオンライン開催報告

江口菜穂^{1*}, 猪股弥生², 大森裕子³, 岡本祥子⁴, 山地一代⁵

1. 第 3 回女性会員の集い開催

2020 年 11 月 11~13 日にオンラインにて第 25 回大気化学討論会 2020 が開催された。討論会の 2 日目の昼食時に Zoom を用いてオンラインで女性会員の交流会を開催した。博士前期課程の学生, 機関研究員(外国国籍者含む), 大学教員, さらに民間企業の研究員を含め計 15 名(途中入退室含む)の参加があった(写真 1)。

会の冒頭で, 谷本会長より, 学会として女性(や若手)会員への支援などをより一層進めてくださる旨, お言葉を頂戴した。その後, 女性活躍推進 WG から女性会員の研究環境整備に関する最近の活動の概要を説明した。これに関しては, 次項で紹介する。

続いて, 各参加者より簡単な自己紹介(研究内容等含む)と最近思うところを話していただいた。その中で, 話題として多く挙がったのが, コロナ禍における職場・家庭環境の変化についてであった。職場環境では, オンライン講義への対応や学生とのコミュニケーション問題, 観測・実験系の方は研究の進捗が鈍った等の意見があった。家庭環境では, 在宅で仕事をしながら, 家事・育児をできるといった利点が挙げられた。これに派生して, 男女の家事育児分担について話題がのびた。この話題は特に女性だけで話をせず, 今後は男性も交えて話をしていくべきことではないかという意見がでた。

各人, 自己紹介と思うところを話していただき, あっという間に時間が過ぎ, 充実した時間を共有できた。今回の集いは, オンライン開催のメリットを生かし, 討論会参加有無に関わらず, 学会員であれば参加できるようにした。今後も継続して,

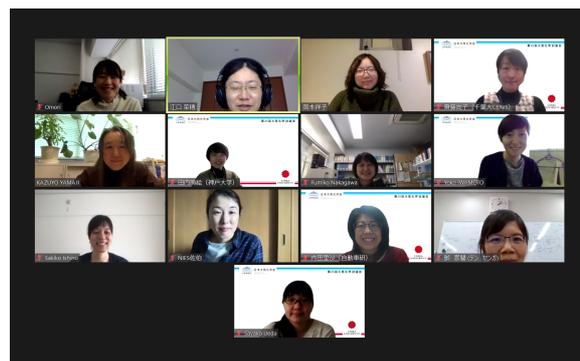


写真 1. 女性会員の集いオンライン

討論会時に対面とオンラインで実施したいと考えている。

2. 女性活躍推進 WG の最近の活動

保育支援ガイドライン

育児中の学会員にも討論会に積極的に参加してもらえよう, 2019 年の第 24 回大気化学討論会(蒲郡市)において, 保育支援を試験的に実施した。今後も継続的に保育支援を実施していくことが決定し, 保育支援ガイドラインを策定し, HP 上に公開している(現在, 新着欄に記載)。またよりよい保育支援実現を目指して, 2020 年夏季にアンケートを実施した。アンケート結果については, 岡本ら(2021;本号)をご覧ください。

女性会員メーリングリスト運用

2020 年 8 月より女性会員のメーリングリスト (w-member@jpsac.org) の運用を開始した。まだ登録がなされていない会員が近くにいればお声がけをお願いします。連絡先は女性活躍推 WG (江口) まで。

その他

男女共同参画学協会連絡会（※）へのオブザーバー学会として加入予定である。加入により男女共同参画に関する情報の入手や、学協会間の大規模なアンケートに参加でき、本学会に関する結果のみ抽出ができるようになる等のメリットがある。

※/<https://www.djrenrakukai.org/>

また、保育支援ガイドライン等、若手支援やダイバーシティ・インクルージョン推進に関する活動を載せる web ページを学会 HP 内に作成していく予定である。

著者所属:

1. 九州大学 応用力学研究所
2. 金沢大学 環日本海域環境研究センター
3. 筑波大学 理工情報生命学術院
4. LISA(Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques), UMR CNRS 7583
5. 神戸大学 大学院海事科学研究科

* 責任著者:

Nawo Eguchi <nawo@riam.kyushu-u.ac.jp>

学会開催時の保育支援に関するアンケート結果報告

岡本祥子^{1*}, 猪股弥生², 江口菜穂³, 大森裕子⁴, 山地一代⁵

1. はじめに

日本大気化学学会では、本学会が主催・参画する学会時の保育支援の整備を進めています。現在、日本大気化学学会ホームページ上で公開されている「保育支援ガイドライン」もこの活動の一環となります。そして、女性活躍推進ワーキンググループ(女性 WG)では、育児中の会員が積極的に学会等に参加できるよう、また、今後より良い保育支援を実施するため、2020年9月に「学会開催時の保育支援に関するアンケート」を行ったので、その結果をご報告します。

今回のアンケート回答者(回答者数 32 名)のおよそ 8 割は、子育て世代の 30 代と 40 代の会員であり、この世代の保育支援への高い関心がうかがえました。また、保育支援を必要とする子が「現在いる」、「過去にいた」、「いない」と回答した会員数がおよそ 3 分の 1 ずつとバランスの良い回答が得ることができました。ご多忙中、回答して下さった 32 名の方には、この場を借りて御礼申し上げます。

2. 保育支援制度の認知度

日本大気化学学会では、2019年11月に蒲郡市で開催された第24回大気化学討論会において、試験的に保育支援を実施しました。アンケート結果によると、回答者の保育支援が必要な子の有無にかかわらず、保育支援実施が広く認知されていたことがわかりました(表1)。

表 1. 2019 年大気化学討論会(討論会)と地球惑星科学連合(JpGU)における保育支援制度の認知度。

保育が必要な子の有無	現在いる (11 名)	過去にいた (9 名)	いない (12 名)
討論会	100%	100%	83%
JpGU	78%		

また、日本地球惑星科学連合(JpGU)が毎年主催する連合大会にて保育支援が実施されていることも、およそ 8 割の回答者が知っているという結果でした。

3. 育児と学会参加

次に、保育支援を必要とする子が「現在いる」あるいは「過去にいた」と回答した方々が、これまで学会に参加するために通常保育に加えて、どのようにしてきたかをご紹介します(図1)。この結果から、学会参加には親族や友人の協力と理解が不可欠であることがわかります。また、「出張をしない」という選択が 2 番目に多いという点も憂慮すべきポイントです。

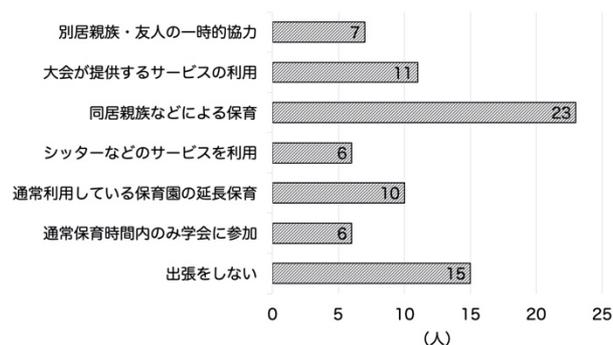


図 1. 学会参加時の通常保育以外の保育(複数回答可能)。

保育支援を必要とする子が「過去にいた」回答者のうちの 3 割、「現在いる」回答者のうちの 7 割が、これまでに保育を理由に学会参加を断念した経験が「ある」と回答しました(図2)。ただし、今回のアンケートでは、アンケート回答者とパートナーのどちらが主に育児をしているのかという設問がなかったため、保育を理由に学会参加を断念したことが「ない」というのは、回答者のパートナーが主に育児をしている(いた)ためという可能性が含まれます。そして、保育支援を利用せず学会に参加しなかった理由として、「会場までの移動が困難」、「子供の性格から外部の保育施

設を使用することが不安」など、保育支援では補いきれない問題も浮き彫りになりました。保育支援ガイドラインではこのような実態も踏まえて、常時利用している保育施設の延長等でも利用できるように整備されています。

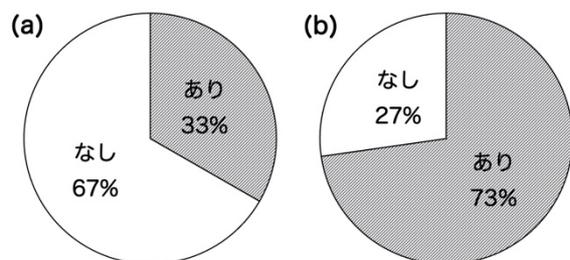


図 2. 保育支援を必要とする子が「過去にいた」(a), あるいは「現在いる」(b)回答者のうち、保育を理由に学会参加を断念したことがある経験者の割合。

4. 期待する保育支援

過去に利用しなかった保育支援および、今後学会に期待する保育支援としては、通常保育以外にかかる費用の一部補助以外に、会場内の一時保育施設設置を希望する回答が多く見られました(図 3)。JpGU 連合大会では、毎年保育ルームが設置され、英語対応も可能(別途相談)となっています。しかしながら、大気化学討論会の場合、予算に限りがあることや、毎年開催地が変わることから、様々な状況に柔軟に対応し、少しでも利用者に満足してもらえるような保育支援が期待されていることがうかがえます。

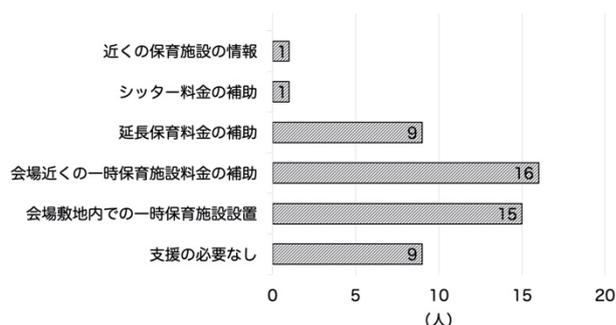


図 3. これまでに利用しなかった支援と今後期待する支援(複数回答可能)。

5. 保育支援以外の希望する支援

今回のアンケートの最後には、保育支援以外で日

本大気化学会に期待する支援について自由に記載してもらいました。特に、学生、若手研究者への支援を望む声が多く、具体的には、キャリアパスの提示、若手主催の研究集会開催への支援が期待されています。また、育児中や会議、授業で現地に直接赴けない会員向けにオンライン参加のオプションを希望する意見も多く見られました。

6. まとめ

大気化学討論会及び JpGU における保育支援制度の認知度は非常に高く、保育支援が必要な子がいる会員の学会参加の際の選択肢の一つになっていると思われます。しかしながら、より利用しやすい保育支援提供のための改善も期待されています。他方で、介護を担う会員向けにも支援を拡充していくことも必要であると考えています。さらに若手支援の希望も多く、キャリアと育児の観点からも、ロールモデルやキャリアパスの提示が必要と考えられます。この課題は人材育成 WG と共同で実施していく必要があります。

最後に、コロナ渦で学会がオンラインで開催されるようになってきた現在、保育支援の一部としてまた通常業務で多忙でオンサイトの学会に参加しづらい会員向けに、学会へのオンライン参加のオプション化を検討するいい時期かもしれません。

女性 WG は、皆さんが利用しやすいように今後も保育支援制度を改善していきますので、ご意見、要望などがあれば、ぜひお気軽にご連絡ください。

著者所属:

1. LISA (Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques), UMR CNRS 7583
2. 金沢大学 環日本海域環境研究センター
3. 九州大学 応用力学研究所
4. 筑波大学 理工情報生命学術院
5. 神戸大学 大学院海事科学研究科

* 責任著者:

Sachiko Okamoto <sachiko.okamoto@lisa.ipsl.fr>

日本地球惑星科学連合 2021 年大会 (JpGU2021) での 大気化学セッション開催のお知らせ

1. JpGU 2021「大気化学セッション」

日本大気化学会では、1) 地球惑星科学分野全体に開かれた形で研究集会を実施すること、2) 正式な「学会」の場での発表を可能とすること、3) 他分野との交流を促進することを目的として、日本地球惑星科学連合大会において2007年から大気化学セッションを毎年開催してきました。これまで当該セッションには口頭・ポスター発表合わせて平均 50 件程度の申し込みがあり活発な議論が行われてきました。

日本地球惑星科学連合 2021 年大会 (JpGU2021) においても大気化学セッションが採択され、従来通り開催されることとなりました。以下、重要な点を抜粋してお知らせします。

2. 日程および予稿投稿

JpGU2021 は、オンライン開催および現地開催のハイブリット方式での開催が予定されています。現地開催では、イベントや特別口頭講演に加えて、開催を希望するセッションのポスター発表の実施が検討されています(現地開催は、縮小もしくは中止の可能性もあります)。

「大気化学セッション」はオンラインでの口頭およびポスター発表を実施する予定です。各セッションの口頭コマ数は前年の投稿数を元に仮配分され、その後、実際の投稿数により微調整されます。2020年12月に開催セッションおよびコマ割が公開され、オンライン日程の大気化学セッションとして、6月6日(日)に4コマが仮配分されました。オンライン開催に加えて、現地開催での「大気化学セッション」のポスター発表(希望者のみ)を実施する場合にはメーリングリスト等でお知らせします。

記

名称： 日本地球惑星科学連合 2021 年大会

現地日程： 2021 年 5 月 30 日(日)～6 月 1 日(火)

(会場：パシフィコ横浜ノース)

オンライン日程：2021 年 6 月 3 日(木)～6 日(日)

(6 月 2 日(水)～に変更の可能性あり)

予稿投稿：2021 年 1 月 13 日(水)～2 月 18 日(木)

(早期投稿締切：2 月 4 日 (木))

大会 WEB サイト：http://www.jpogu.org/meeting_j2021/

2. 発表言語および招待講演

大気化学セッションにおける発表言語については、「J」区分、すなわち、スライド・ポスター表記および口頭発表の言語は英語または日本語を発表者が選択可としております。しかしながら、「大気化学セッション」では、外国人研究者を含めた多様な参加者が発表内容を理解できるよう、スライドおよびポスターは英語で作成いただきますよう、よろしくお願いいたします。

JpGU2021 においても、昨年度に引き続き、大気化学の周辺・境界領域や、近年特に注目されている分野の研究者による「招待講演」を実施する予定です。皆様の新たな研究の展開にご活用いただけますと幸いです。

本記事が公開される頃には、予稿原稿投稿受付が開始されていることと思います。日本大気化学会として、大気化学に関連する研究を盛り上げるためにも、皆様からの積極的な発表申込みをお願い申し上げます。

(日本大気化学会 運営委員会 (プログラム担当：中山智喜, 齋藤尚子, 内田里沙, 豊田栄))

第 16 回日本大気化学会奨励賞の選考結果について

受賞者氏名: 稲飯洋一(気象庁)

受賞研究課題名: 気球観測と流跡線解析による対流圏-成層圏間物質輸送の研究

受賞理由: 熱帯対流圏界層(TTL)は熱帯域における対流圏と成層圏間の遷移層であり、平均子午面循環の観点から成層圏大気循環の最上流部に位置している。TTLにおける大気の脱水過程は成層圏の水蒸気量を支配する重要な要因でもあることから、成層圏における物質循環を理解するうえで鍵となる領域である。

稲飯洋一会員は、TTLにおける物質輸送過程が成層圏へ流入する大気化学種の量やその変動に重要な役割を持つ点に着目して気球観測や流跡線解析を用いた研究を行い、以下の成果を得た。

まず、赤道域を中心に世界各地で気球観測を精力的に実施して水蒸気、オゾン、雲粒子、二酸化炭素などの成層圏における分布を明らかにした。特に水蒸気ゾンデと衛星ライダー観測データまたは流跡線解析を組み合わせることによって、TTLに巻雲を伴う過飽和層が形成されその雲微物理的特徴が熱帯大規模擾乱の位相に依存すること、熱帯西部太平洋域において下部TTLを水平移流する大気が効率的に脱水されていることを示した。

次に、気球観測誤差の新たな推定手法を考案し、成層圏のオゾンや気温の観測データにこれまで見落とされてきた誤差が含まれていることを指摘して、気球観測データの質的な改善に貢献した。

さらに稲飯氏は、成層圏平均子午面循環速度の指標とされる成層圏大気の年齢と中高緯度最下部成層圏-TTL間の大気輸送との関係を明らかにした。独自に考案した多粒子流跡線解析を用いて、中高緯度成層圏からTTLへの大気輸送量が1980年から

2000年にかけて増加傾向にあったことを推定し、それが成層圏平均子午面循環速度とは独立に成層圏大気の年齢を変化させていた可能性を指摘した。また、この多粒子流跡線解析法と北極域上空における大気微量成分の航空機観測データとを組み合わせることで、北極上部対流圏および下部成層圏における大気力学場の季節変動と化学過程の季節変動を分離してそれぞれを評価した。断片的な航空機観測から連続的な時空間分布を復元し、六フッ化硫黄と二酸化炭素は主に大気力学場の変動によって、メタン、一酸化二窒素、一酸化炭素は主に成層圏における化学過程の変動によってそれぞれの季節変動スケールの時空間分布が決定されていることを示した。以上のように、稲飯氏は気球観測および流跡線解析を用いて対流圏-成層圏間の物質輸送に関する独創的な研究成果を上げ、大気化学分野で国内外の高い評価を得ており、同氏が考案し確立した研究手法は対流圏および成層圏の物質分布やその変動の解明に貢献することが期待される。以上の理由により、日本大気化学会運営委員会は、稲飯洋一会員が同賞にふさわしい実績と将来性を有するものと認める。

(日本大気化学会運営委員会)



稲飯洋一氏

受賞者氏名: 朱春茂 (海洋研究開発機構)

受賞研究課題名: 現場・リモート観測および大気輸送モデルを用いた炭素性エアロゾル発生に関する陸域生態系変動との統合的研究

受賞理由: 大気エアロゾルは光の吸収・散乱によって放射強制力を左右し、雲の凝結核や氷晶核として働くことで気候変動に影響を及ぼす。東アジア地域では人間活動や様々な自然過程によりエアロゾルの動態が大きく変動することから、気候影響評価の不確実性を減らすためにエアロゾルの化学組成や発生源を解明することが求められている。

朱春茂会員は、化学的・光学的分析法やリモートセンシング、大気輸送モデルなど種々の手法を駆使して有機エアロゾルおよびブラックカーボン (BC) の動態を解明する研究を行い、以下の成果を得た。

国内各地で採取されたエアロゾルの化学組成やブラックカーボン (BC) の動態をガスクロマトグラフィー質量分析計 (GC-MS) などの高精度分析手法を用いて解析した。沖縄のエアロゾル有機炭素の最大 30% がシベリアおよび中国東北部の家庭部門によるバイオマス燃焼に起因していることを明らかにし、冬季のバイオマス燃焼が西部北太平洋地域のエアロゾル組成へ与える重要性を初めて示した。利尻での観測から、秋の中国東北部の農業廃棄物の燃焼が北日本の大気エアロゾルの重要な発生源であることを初めて明らかにした。また、和歌山県の森林では、真菌の胞子を中心とした生態系から直接放出されるエアロゾル (PBAP) が生物起源二次有機エアロゾル (BSOA) よりも有機エアロゾルの質量濃度に大きく寄与していること、および人為起源硫酸塩が移流される場合、BSOA の生成が大きく促進されることを初めて現場観測から示した。

また、朱氏は超高解像度衛星 (解像度 2-5 m 程度) の画像を用いて北方ユーラシアの植生に関する焼失面積を精密に評価し、従来用いられてきた衛星の画像解析に基づく焼失面積は過小評価となっていたことを見出した。朱氏が提唱した修正係数は、温暖

化によって今後より顕著になりうる北方林野火災からのエアロゾル等排出量をより高精度に評価するうえで重要な情報となった。さらに朱氏は、大気輸送モデル (Flexpart v10) を改良して北極地域 BC の発生源を定量的に評価し、家庭部門による化石燃料・バイオマス燃料が従来の認識以上に大きな寄与を持つことを明らかにした。

以上のように、朱氏は様々な手法を駆使して炭素性エアロゾルの動態と、その陸域生態系に関連した発生源評価に関する統合的な研究を着実に進展させ、大気化学分野で国内外の高い評価を得ている。朱氏は現在、エアロゾルの光学的・化学的な計測法をブラウンカーボンの動態解析やマイクロプラスチックの計測に応用し、新たな地球環境物質科学の開拓にも挑んでいる。以上の理由により、日本大気化学会運営委員会は、朱春茂会員が同賞にふさわしい実績と将来性を有するものと認める。

(日本大気化学会運営委員会)



朱春茂氏

日本大気化学学会会員集会プログラム

日時:2020年11月12日(水) 13:20-13:55

場所:Web会議による開催(第25回大気化学討論会
会期中)

- 1) 谷本会長より挨拶
- 2) 横内陽子会員の追悼
- 3) 会員報告
- 4) 第25回大気化学討論会開催状況
- 5) JpGU2021での大気化学セッション
- 6) 2021年度大気化学討論会の開催方向性について
- 7) 選挙のオンライン化について
- 8) 日本学術会議関連の JpGU 声明への対応等について
- 9) 女性活躍推進 WG より
- 10) 大気化学研究誌について
- 11) 「大気化学の将来構想」について
- 12) その他

(日本大気化学学会 運営委員会)

第 18 回日本大気化学学会運営委員会議事録

第 18 回日本大気化学学会運営委員会

(大気化学研究会より通算 49 回)

日時:2020 年 11 月 9 日(火)13:00~15:30

場所:WEB 会議による開催

出席者:谷本浩志, 金谷有剛, 内田里沙, 江口菜穂, 齋藤尚子, 関山剛, 竹川暢之, 豊田栄, 中山智喜, 永島達也, 廣川淳, 森本真司, 山地一代

谷本会長より, 会期が近づいている第 25 回大気化学討論会について, LOC の尽力に感謝しつつ, 初めてのオンライン開催である点も踏まえて, 成功させることができるよう運営委員の一層の協力を望む旨, 挨拶があった。引き続き, 以下の報告・審議を行った。

1) 会員会計状況について

関山委員より報告があった。7 月の前回報告から会員数が微増したが, 会費未納者数にも増加がみられる点を確認し, 連絡等の対処を進めることとなった。会計状況については, JpGU および討論会がオンライン開催となり, 予定していた学部学生支援等が発生しなかったため, 予算にやや余裕がある点を確認し, 奨励賞メダルの補充など有効な使途候補について議論した。

2) 女性活躍推進 WG の活動について

江口委員より, 女性会員 ML の運用開始・男女共同参画学協会連絡会へのオブザーバ加入・保育支援に関するアンケート結果内容について, それぞれ報告があった。アンケート結果は「大気化学研究」冬号に掲載し周知される。第 25 回大気化学討論会への保育支援希望者はいなかった。保育支援ガイドラインについては, 学会 Web に「ダイバーシティ推進」の新規ページを作成して掲載する予定となった。

3) 第 25 回大気化学討論会準備状況について

内田委員から, プログラム関連の報告として, 今回の申し込み方法・発表件数などとともに, 今回新たに, 学生セッションやポスター発表の1分紹介を採用した点について説明があった。齋藤委員からはロジ面の報告として, オンライン方式(Zoom, スラックチャット, スラックコールの 3 つを併用する方式), 参加登録者数, 口頭発表・授賞式のリハーサル状況などの報告があり, 参加登録費の無料化, 学会会員のみへの予稿集送付などについて説明があった。中山委員からは, 学生優秀発表賞について, 運営委員が口頭・ポスター発表を審査する際の要領について, また, 人材育成 WG と学生の交歓の場を設定する点について説明があった。オンライン型のメリットとして最近の討論会より参加者数や口頭発表希望者数が増加した点があること, 発表者は招待講演者を除きみな会員である点などについて確認した。

4) JpGU2021 でのセッション準備状況について

中山委員から, JpGU2021 開催が 2021 年 5 月 30 日~6 月 6 日に, ハイブリッド形式(オンライン+現地(パシフィコ横浜ノース))で予定されており, 大気化学セッションが提案済みであること, SOLAS, SPARC セッションが共催となることについて報告があった。大気化学セッションでは言語は「J」とするが, スライドとポスターは英語を推奨する点について確認があった。

5) 次回選挙実施について

竹川委員から 2021 年 1~3 月に実施される会長および運営委員選挙をオンラインにて実施するための準備について報告があり議論した。機能面・費用面と選挙管理委員の負担面から業者を選定した案について, 議論と確認を進め, 原案どおり進めることとなった。会員集会では説明と意見収集を行うこととした。

被選挙権者が会長選挙と運営委員選挙で異なる点などを、できるだけわかりやすく情報伝達することが必要である旨の意見があった。

6) 日本学術会議関連の JpGU 声明への対応について

首相による日本学術会議の会員任命拒否に関し、JpGU からの呼びかけに対し「日本学術会議第 25 期推薦会員任命拒否に関する緊急声明」に賛同する学会として名前を連ねたことについて、金谷副会長より経緯の説明があった。会長が中心となり、本会での意思決定を担う運営委員会において、10/6~9 の 3 日間で議論した結果、賛同することとしたものであり、10/12 に会員へも周知した。今回は、検討のために必要な情報収集と整理の時間が十分に確保できなかった中での対応となった。本件については引き続き丁寧な会員からも意見を聴取したい。支持の意見もあったほか、事前に一般会員への意見照会があっても良かったとの意見があった点についても共有した。今後同様に短期間での判断が必要な際の検討や判断の在り方について議論した。

7) 奨励賞について

豊田委員から、6 月に実施した奨励賞に関する細則の改正から今回の選定までの経緯報告と提案があった。応募者数については今回増加がみられたが、応募資格の拡大というよりは周知の取り組みの効果によるものではないかとの議論があった。これまでの募集要項では、推薦書に関し和文 1200 字程度としてきたが、英語の場合の記述がなかったため、「英語 600 word 程度」として追記する方向で提案があり、了承された。細則条文の改定については精査の上で進めることとなった。入会直後の賞への応募について議論があった。JpGU の主催セッションを含め本会の会合にてまったく発表実績がないということでもなければ有資格とし、討論会参加歴などの規定を細則に設けることはせず、本会で今後活躍が期待できる

人材であるかに関する評価も重視する方向で運用することとした。海外在住の会員の場合については追加検討すべき点があるか検討を続けることとした。

8) 「大気化学研究」誌第 44 号について

森本委員・山地委員から 2021 年 1 月末に発行予定の 44 号へ向けた準備について報告があった。特集は雪氷圏に関するものとし、奨励賞の受賞記事、保育支援アンケートのまとめを掲載予定である。また、JpGU の予告、役員選挙の公示等も行う予定である。

9) 学会ウェブの活用について

永島委員から、最近やや減少傾向にある学会ウェブ閲覧数の再増加を目指すための提案と議論があった。トップページに会員から提供された写真素材を掲載することにより、まずは会員自らの関与度と関心の向上を促すこと、論文やプレスリリース情報の配信などを効率的に進め、会員外の方にも届く情報を充実化することが有効であるとの方向性が見出され、情報・広報委員会での議論に活用されることとなった。また社会的に重要な課題に対する情報発信についても、本会は期待されている面があり、そうした対応についても今後の検討課題となることを確認した。

10) 2021 年秋の大気化学討論会について

谷本会長から、2021 年秋の大気化学討論会の開催方向性検討に関するこれまでの情報と問題提起があり議論した。地方での現地開催についての打診で、好意的な返答が得られているところもあるが、コロナ収束時期が見通せない中で、現地開催とリモート開催のダブルスタンバイは負担が大きいこと、現地開催が確実に可能になってからぜひ期待に応えたいとの声も寄せられている点が共有された。その点を踏まえ、現地開催はコミュニケーション面で他に代えがたいメリットがあるものの、オンラインを基本とすることが適切ではないかとの考え方を軸に検討した。背景として、IGAC 国際会議は 2020 年から先送りとなった 2021

年秋の会合もオンラインで実施する方向となったことも共有された。現地開催の場合の問題点として、キャンセル時期判断や費用負担、万一感染拡大が起きてしまった場合の責任所在が本会だけでなく、共催等していただく大学などにも及ぶ点なども挙げられた。比較的余力のありそうな関東の会員がホストを行うのであれば、現地開催の可能性についてももう少し検討しうるのではないかとの意見があった。また、今回オンラインで実施される大気化学討論会のアンケートで会員の声を聴いて判断すべきではないかとの意見もあった。それらを踏まえ、現状ではオンライン開催やむなしとの考え方を基軸としつつ、開催形態については年内を目安に決断を先送りすることとした。大気化学討論会の際の会員集会でもその方向で提示し、会員の意見を求めることとした。

11) 会員集会の予定について

金谷副会長が本日の情報などをもとに、会員に周知すべき点、意見を伺いたい点を整理し、会員集会のアジェンダ案を取りまとめた。なお、本年1月に逝去された横内陽子会員は、本会の前身である大気化学研究会において複数期にわたり運営委員や選挙管理委員長を務められ、また本会でも会計監査などでご尽力された経緯を踏まえ、会員集会にて会長の挨拶の直後に追悼(紹介と黙祷)を行うこととした。

12) その他

なし

(日本大気化学会 運営委員会)

編集後記

今号ではトピックスとして「雪氷圏と大気化学」をテーマに計 3 編の総説記事を掲載しています。極域を中心としたフィールド観測・数値モデル研究や今後の研究展開に関する内容を、それぞれの著者の方々に分かりやすく丁寧に解説して頂きました。総説記事の著者には学会員以外の方々も多く、まさに interdisciplinary なテーマとして、大気化学における今後の方向性の一つとして参考になれば幸いです。また、岡本様、江口様他の皆様からは、女性研究者の視点からの研究生活に関する貴重なご寄稿・情報提供を頂きました。全ての著者の皆様には、ご多忙のところ貴重な原稿をご執筆頂きましたこと、改めてお礼申し上げます。今後も重要な情報発信の手段として、また会員間の情報共有・情報交換の場として本誌をご活用頂けるよう工夫して参りますので、学会員の皆様には引き続きご支援賜りますようお願い申し上げます。(YM)

大気化学研究 第44号 (2021年1月31日 発行)

編集兼発行：日本大気化学会

編集委員：森本真司(共同編集長)、山地一代(共同編集長)、竹谷文一、宮崎雄三

連絡先：〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局

電話：03-5389-6237

FAX：03-3368-2822

電子メール：jpsac-post@bunken.co.jp

ホームページ：<https://jpsac.org/publications/aacr/>

《本誌掲載著作物の転載を希望される方へ》

本誌に掲載された著作物を転載される場合は、上記までご連絡ください。無断での二次使用や勝手な加工はお控えください。