

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第 48 号



Japan Society of Atmospheric Chemistry

41.	= 11
44	=
- Ibu'ta	пЛ.
	~~~

→→→→→ ―トピックス:「大気化学の将来構想 2022-2032: 各論第2集」―	Article No.
7. エアロゾル・放射・雲	
エアロゾルー放射・雲相互作用	
松井仁志, 大畑祥, 當房豊, 松木	篤
板橋秀一, 大島長, 鈴木健太郎, 佐藤陽	祐 048A01
8. 成層圈・中間圈	
成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	
·····································	11
	亮 048A02
第 18 回日本大与化学会将励赏资常记令論文	
▶10 回口本八×10十云天110頁又頁記心冊入 十写下アロゾル粒子の発生から鯰洋にたける経験と個々の粒子の友在世能との閉係に閉	ナス
イメエアロノルセーの先生から軸区における症状と回るのセーの行任状態との関係に関	ッつ ブ・ 049402
観測的研究	丁 046A03
会員からのお知らせ	
iCACGP-IGAC Joint International Atmospheric Chemistry Conference (2022)参加の報	告
藤縄環, 関谷高志, 高島久	洋 048N01
学会からのお知らせ	
第27回大気化学討論会開催報告	រ
	軍
	介 048N02
日本地球惑星科学連合 2023 年大会(InGU2023)での大気化学セッション開催のお	知らせ
	ン 048N03
第18回日本大気化学会授励賞の選者結果について日本大気化学会 運営委員	全 048N04

- 第 28, 29 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 048N06
- 日本大気化学会役員選挙の公示…………選挙管理委員内田里沙,加藤俊吾,山地一代 048N07

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:

山地一代(共同編集長), 宮﨑雄三(共同編集長), 八代尚, 大畑祥

日本大気化学会運営委員(第12期,2021年7月1日から):

金谷有剛(海洋研究開発機構),石戸谷重之(産業技術総合研究所),入江仁士(千葉大学),岩本洋子 (広島大学),内田里沙(日本自動車研究所),加藤俊吾(東京都立大学),齋藤尚子(千葉大学),坂本 陽介(京都大学),関山剛(気象研究所),竹川暢之(東京都立大学),竹谷文一(海洋研究開発機構), 宮崎雄三(北海道大学),山地一代(神戸大学)

# 7

## エアロゾル・放射・雲

### エアロゾルー放射・雲相互作用

Aerosol-radiation/cloud interactions

松井仁志, 大畑祥, 當房豊, 松木篤, 板橋秀一, 大島長, 鈴木健太郎, 佐藤陽祐

### エアロゾルー放射・雲相互作用

#### **Aerosol-radiation/cloud interactions**

## 松井仁志^{1*}, 大畑祥^{2,3}, 當房豊^{4,5}, 松木篤⁶, 板橋秀一⁷, 大島長⁸, 鈴木健太郎⁹, 佐藤陽祐^{10,11}

大気中を浮遊する微粒子(エアロゾル)は,放射・雲過程などとの相互作用を通して地球の放射収支 を変化させる。産業革命以降の人為的なエアロゾルの放出・生成の増大は,全体として温室効果気体 等による地球温暖化を部分的に相殺する役割を果たす(負の放射強制力を持つ)と考えられている。 大気中のエアロゾルの動態(時空間分布や物理化学特性など)とエアロゾルー放射・雲相互作用に関 する理解は,過去 10~15 年間での様々な観測(地上観測,航空機観測,船舶観測,衛星観測)と数 値モデル(大循環気候モデル,全球雲解像モデル,化学輸送モデル)の両面での発展とそれらを融 合した研究によって大きく進展してきた。その一方で,エアロゾルー放射・雲相互作用による放射強制 力の推定は,過去 10 年間で不確定性幅が減少しておらず,気候モデル間の推定のばらつきは依然 として大きい(IPCC 第 6 次評価報告書)。そのため,エアロゾルー放射・雲相互作用は,気候予測に おいて最も大きな不確定要因の 1 つとなっている。本稿では,大気エアロゾルの動態とエアロゾルー 放射・雲相互作用に関わる近年の知見をまとめ,現状の問題や今後の課題を展望する。

#### 1. はじめに

大気エアロゾルは、様々な人間活動・自然活動に よって大気中に放出され、その粒径や化学組成など は多岐にわたる。また、大気エアロゾルの重要性は、 環境・人体への悪影響、大気汚染、気候影響など、 局所スケールから全球スケールまで幅広い時空間ス ケールに及ぶ。エアロゾルは、太陽放射と地球放射 の散乱・吸収や雲アルベド・雲物理・降水過程への 影響を通して地球の放射収支を変化させ、これらの エアロゾルー放射・雲相互作用を通して地球の気候 変化・気候変動に影響を与える。エアロゾルとその放 射・雲過程との相互作用に関する理解は、近年の観 測および数値モデルの両面での発展とそれらを融合 した研究によって大きく進展してきている。本稿では、 大気エアロゾルー放射・雲相互作用に関わる近年 (過去 10~15 年程度)の知見をまとめ,現状の問題 や今後の課題を展望する。なお,本稿では,これらの 研究の現状と課題を網羅的に記述するのではなく, 日本の研究コミュニティがこれまで重要な役割を果た してきたトピック,今後の発展へ大きく貢献することが 期待されるトピックを選び,それらについて重点的に 記述する(ここで中心的に取り上げないトピックが重 要でないというわけではない)。

エアロゾルの物理化学特性(粒径,化学組成,放 射特性,雲凝結核特性,氷晶核特性など)とそれらを 決める大気過程に関する知見は,個々の粒子レベル でエアロゾルを測定可能な技術が開発され,エアロ ゾル各成分の室内実験・大気観測データが蓄積され ることによって大きく進展してきた。第2章の1節と2 節では,近年理解が大きく進展し,日本でも先端的 な研究が多く実施されてきた光吸収性エアロゾルと 氷晶核として働くエアロゾルに着目する。これらの大 気中の動態について,特に装置開発・大気観測を中 心とした視点から,近年得られてきた知見と現状の問 題・今後の課題をまとめる。

日本はアジアの巨大なエアロゾルの放出・生成源 の下流域に位置しており、このような地理的な特徴を 活かしてアジア域から輸送されてくるエアロゾルに関 する長期連続観測や数値モデル研究が実施されて きた。そして、このような研究によって、エアロゾルの 放出・輸送・化学変化・沈着等の様々な過程の知見 が蓄積され、越境大気汚染の理解と予測が進展して きた。第2章の3節では、エアロゾルの長期モニタリ ングと越境大気汚染に着目し、これらに関するこれま での進展と今後の発展についてまとめる。

エアロゾルー放射・雲相互作用の理解は, 現地観 測, 衛星観測, 気候モデル, 全球雲解像モデルなど が相互に影響しながら発展することによって進展して きた。日本でも, 新たなエアロゾルモデル, 気候モデ ル, 雲解像モデルの開発や世界最高性能の大型計 算機の活用等によって, 先端的なエアロゾルー放 射・雲相互作用に関する研究が実施されてきた。第3 章の1節と2節では, エアロゾルー放射相互作用と エアロゾルー雲相互作用の理解・推定の現状と将来 展望についてまとめる。

#### 2. エアロゾルの動態

#### 2.1 光吸収性エアロゾル

多様な化学組成を持つ大気中のエアロゾルは、そ の光学特性に基づき、光吸収性エアロゾルと光散乱 性エアロゾルに大別される。大気エアロゾルの主要 成分である硫酸塩・硝酸塩などの無機エアロゾルや 多くの有機エアロゾル(OA)は光散乱性である一方、 ブラックカーボン(BC)やブラウンカーボン(BrC; OA の一部)、燃焼起源粒子や鉱物ダストに含まれる酸 化鉄は光吸収性を有するエアロゾルである。エアロゾ ル全体では光散乱性エアロゾルの占める割合が高く、 エアロゾルは正味で負の放射強制力を持つ。しかし、 光吸収性エアロゾルによる正の放射強制力も少なか らず存在し、温室効果気体とともに地球温暖化に寄 与していると考えられている。本節では、これらの代 表的な光吸収性エアロゾルを対象に、研究の動向と 展望について述べる。なお、粒子の散乱・吸収特性 を支配する基本的なパラメータである複素屈折率に ついては、2.1.4 章で簡単にまとめる。

#### 2.1.1 ブラックカーボン(BC)

BC は化石燃料やバイオマスの不完全燃焼で発生 し,太陽放射を強く吸収して大気を加熱する効果を 持つ[Bond et al., 2013]。この大気加熱効果は,局地 的あるいは半球スケールの大気循環にも影響を及ぼ しうる[Allen et al., 2012]。また,雪氷面に沈着した BC はアルベドを低下させ,雪氷の融解を促進する[Aoki et al., 2011; Hadley et al., 2012]。

BC は、炭素微小球の凝集した形状であることや、 水や一般的な有機溶媒に不溶で高耐熱性があること などのユニークな特徴を持つ[Bond et al., 2013]。BC の光学特性については、複素屈折率(2.1.4章を参照) の紫外・可視光域における波長依存性が小さく、光 吸収係数がおおよそ波長に反比例することが知られ ている [Liu et al., 2018]。

BC の主要な測定法は,熱光学的手法・レーザー 誘起自熱法(LII 法)・光吸収法の 3 種類である。測 定原理の違いを明確にするため,それぞれの手法で 測定された BC を元素状炭素(elemental carbon; EC)・高耐熱性 BC (refractory BC; rBC)・等価 BC (equivalent BC; eBC)として区別することを提唱する 研究も存在する[Petzold et al., 2013]。熱光学的手法 では,フィルタに捕集された有機炭素(OC)と BC が それぞれ二酸化炭素に変換され定量される。様々な 測定プロトコルが存在し,そのプロトコルによって定 義された(operationally defined な)BC 質量濃度が求 まる[Chow et al., 2004; 2007; Cavalli et al., 2010]。LII 法では, BC 試料を用いたキャリブレーションに基づき 大気中の個々の粒子に含まれる BC 質量が定量され る[Moteki & Kondo, 2010]。光吸収法では,大気中に 浮遊あるいはフィルタに採取したエアロゾルの光吸収 係数を測定し, BC の質量吸収断面積(Mass absorption cross section; MAC)を仮定することにより 大気中の BC 質量濃度を推定する[Moosmüller et al., 2009]。光吸収法は BC 以外のエアロゾルの干渉や MACの仮定値の影響を受けやすく,大気中のBC質 量濃度の測定の観点では他の2種類に比べて間接 的な手法である。熱光学的手法と LII 法は, 試料に 含まれる光吸収性の炭素質粒子状物質の様々な形 態への測定感度が両者の間で厳密には一致しない ことや, 両者に固有の技術的制約があることから, 現 在も比較研究が進められている[Pileci et al., 2021]。

LII 法の確立は、大気中の個々の BC の粒径別数 濃度と混合状態の高時間分解能測定を可能にし, BC の空間分布や輸送・除去過程の理解は飛躍的に 進んできた[Schwarz et al., 2006; Gao et al., 2007; Moteki & Kondo, 2007; 2010]。LII 法を用いた航空機 観測は,現在のところ,上空で極めて濃度の低い BC の高度分布を直接測定できる唯一の手法であり、日 本を含む世界の研究機関が様々な地域で観測キャ ンペーンを実施してきている[Moteki et al., 2007; Matsui et al., 2011b; Schwarz et al., 2013; Schulz et al., 2019; Ohata et al., 2021a]。BC は疎水性であるため, 元来は雲凝結核(CCN)として働きづらく,降水過程 による除去(湿性除去)を受けづらい。しかし、大気中 を輸送される過程で他の親水性物質と内部混合する ことにより, BC を内部に含む粒子(BC 含有粒子)とし ての CCN 能が高まるため,他のエアロゾルと同様に, BC は主に湿性除去によって大気から除去される。 LII 法による地上・航空機・船舶観測により,これらの 混合状態の変化と湿性除去過程の観測的な理解が 進み[Moteki et al., 2007; 2012; 2019, Kondo et al., 2016; Ohata et al., 2016; Taketani et al., 2016; Mori et al., 2020b; 2021], 数値モデルの検証と精緻化に結 びついている[Oshima & Koike, 2013; Matsui et al., 2018a].

BC の長期観測は, BC 質量濃度の季節変化や長 期トレンドを捉え, BC の放出量の短期・長期変化を 理解する上で重要である。1990 年代から 2010 年代 にかけて, 北半球の多くの遠隔地の観測所において, BC 質量濃度が 1 年あたり数パーセント程度の割合 で減少傾向にあることが報告されている[Sharma et al., 2013; Dutkiewicz et al., 2014; Kutzner et al., 2018; Singh et al., 2018; Sarkar et al., 2019]。日本国内でも 減少傾向が見られ, 中国や日本国内の放出量の減 少の影響を反映していると考えられている[Kondo et al., 2012; Miyakawa et al., 2016; Yamagami et al., 2019; Kanaya et al., 2020, Mori et al., 2020a]。

以上のような研究の進展を踏まえ, さらに BC の動 態と気候影響をより定量的に理解するため, いくつか の課題を以下に挙げる。

まず、BCの放出量推定の不確定性を減らすことが 求められる。気候変動に関する政府間パネル (Intergovernmental Panel on Climate Change; IPCC) の第5次評価報告書(Assessment Report; AR5)と第 6 次評価報告書(AR6)のそれぞれに対応するモデ ル相互比較実験で使用されたBC放出量データの差 が大きいことが知られている[Hoesly et al., 2018]。例 えば, 1920年頃(2000年頃)の全球のBC排出量は, AR5 では約 2.9(5.0) Tg C year-1 と与えられたのに 対し, AR6では約2.1(5.8) TgC year⁻¹となっている。 AR6 以降も BC 放出量テータの改訂は進んでおり, 未だに放出量推定の不確定性は大きいと言える [McDuffie et al., 2020]。また, BC の放射強制力評価 の基準となる,産業革命前の BC の放出量の推定値 は、アイスコアに含まれる BC の LII 法による測定 [McConnel et al., 2007; Arienzo et al., 2017]などとの 比較を通じてさらに検証される必要がある。さらに、 気候変化に伴い様々な地域における森林火災由来 のBCが今後増加しうることや、インド北部などBCの 大放出源で今後も放出量が増加すると予測されてい る領域の動向,海氷減少のため北極海航路が開ける ことによる船舶由来の BC の将来的な増加, BC 放出 係数が相対的に高いガソリン直噴エンジン搭載の自動車[*Platt et al.*, 2017]が近年増加しつつあることなどに着目し, BC 放出量の推定の改善や変動把握のための遠隔地・放出源近傍における観測が必要である。

また、上記の課題とも関連して、BCの正確な長期 観測データの蓄積が必要である。これまで、世界各 地の大気環境モニタリングサイトにおいて、長期の運 用が比較的容易な光吸収法により推定された BC 質 量濃度が広く報告されている。しかし、上述のようにこ の値は BC 以外のエアロゾルの干渉や MAC の仮定 値の影響を受けるため、異なる観測所の BC 質量濃 度の比較やモデルの検証を統一されたスケールで 実施することが困難であった。熱光学的手法や LII 法との比較を通じて検証された光吸収法を利用した BC 質量濃度の長期観測が必要である[Kondo et al., 2011a; Ohata et al., 2021b]。

BC は輸送過程で他の成分の凝縮・凝集を受けて 混合状態が変化する。この BC 以外の物質(被覆物 質)により BC の光吸収量が増大する効果(レンズ効 果)の定量的な評価が必要である。室内実験では顕 著なレンズ効果が確認されているのに対し, 実大気 の観測では想定されるよりも小さな効果しかないこと が報告されている[Cappa et al., 2012, 2019]。近年で は,BC 粒子群全体の平均的な被覆量ではなく, 個々の粒子の混合状態の違いまで考慮することで、 このギャップを解釈する提案がなされている[Zhao et al., 2021]。BC の放射効果を推定するモデルにおい ても,このような粒子ごとの差異に起因する影響の考 慮が必要となることが考えられる。BC の放射影響の 推定は放出源における BC の粒径分布の表現に強く 依存するとのモデル研究もあり[Matsui et al., 2018a], 地上・航空機観測による BC の粒径別数濃度や粒径 別被覆量などの微物理量の観測データのさらなる蓄 積が必要である。

IPCC AR6 における BC の全球平均の有効放射強 制力は 0.11 W m⁻²(90%信頼区間は-0.20 ~ 0.42 W m⁻²)と推定されており, AR5 に比べて小さな値となっ ている。これは、AR6 では、エアロゾルー放射相互作 用による BC の正の放射強制力が、雲の変化などに よる負の大気調節(adjustments)により相殺された結 果として示されていることが一つの大きな理由である (3.1章)。しかし、その推定値の不確定性の幅は未だ に大きい。各モデル間で、BC の大気中における混 合状態の変化や輸送・除去過程、大気調節の強度と 符号にばらつきがあるためである。特に、急速に温暖 化が進行する北極域において、多くのモデルで BC 質量濃度の再現性が低いことが知られている[Lund et al., 2018]。上述の事項を含め、BC 観測との比較に 基づくモデルの検証と精緻化が必要である。

#### 2.1.2 ブラウンカーボン(BrC)

大気エアロゾルの主要成分である OA の一部は、 短波長可視から紫外領域にかけて光吸収性を持ち, その色合いからブラウンカーボン(BrC)と呼ばれる [Andreae & Gelencser, 2006]。BrC の単位質量あたり の光吸収量はその化学構造に依存する。一般に BrCの光吸収量はBCより低いものの,大気中のBrC 濃度が十分に高ければ, 放射収支や光化学反応に 少なからず影響を及ぼすと考えられる[Feng et al. 2013]。一例として、複数の全球気候モデルで計算さ れた 2010 年の大気中の BC の全質量の中央値は 0.13 Tg であるのに対し, OA は 1.91 Tg である[Gliß et al., 2021]。OA に含まれる BrC の質量割合には放 出源ごとに様々な見積もりがあり[Feng et al., 2013], 例えば, Jo et al. [2016]は全球平均の OA 質量濃度 に対して約20%と推定している。これらの推定に基づ くと、全球平均では BC の数倍程度の質量濃度の BrC が大気中に存在することになる。BrC の光吸収 量を規定する複素屈折率の虚部の値(2.1.4 章)が BC より1桁程度小さいとしても、BrC による放射影響 は無視できない[Zhang et al., 2020]。

大気中の BrC のバルクの光吸収特性は、一般に、 採取したエアロゾル試料を水や有機溶媒に溶解させ、 その液体抽出物を紫外-可視分光法で測定すること により評価される[Kirchestetter & Novakov, 2004; Moschos et al., 2018]。代替的な手法として, BrC の光 吸収が紫外・可視域の短波長側に偏っていることか ら, エアロゾルによる近赤外の光吸収はすべて BC に よるものとし, BC の光吸収の波長依存性を仮定して 紫外・可視域まで外挿することで, 測定された全吸収 から BC による寄与を差し引いて BrC の寄与を推定 する方法もある[Laskin et al., 2015; Corbin et al., 2019]。OA は無数の化学組成を持つ有機物で構成 されており, BrC はその一部であることから, BrC のみ を選択的に検出し粒径別数濃度を測定するような確 立された手法は無い。

BrCは、バイオマスや化石燃料の燃焼過程等で大 気中に直接放出される一次有機エアロゾル(POA)と、 気体の揮発性有機化合物の酸化により生成する二 次有機エアロゾル(SOA)の両方に含まれる。二次生 成に由来する BrCは、液滴やエアロゾル中の液相反 応によっても生成する[Updyke et al., 2012; Nguyen et al., 2012]。これまでに、実験室内で生成した POA や SOA に含まれる BrC の光吸収特性の測定や [Nakayama et al., 2010, 2013, 2015; Saleh et al., 2014], 様々な大気環境場における大気中の BrC の観測が 実施されてきた[Zhang et al., 2011; Lack et al., 2012]。

バイオマス燃焼由来の BrC の光吸収量への寄与 は他の起源の BrC に比べて大きく,また燃焼条件に 強く依存することなどの放出源に関する特徴や[Saleh et al., 2014],極性の低い OA に相対的に多くの BrC が含まれていることなどの化学的特性の特徴が明ら かになってきている[Chen et al., 2016]。また, BrC の 光吸収量が光酸化・分解反応を経ることにより減少す る photobleaching 効果の重要性も指摘されている [Zhao et al., 2015; Wang et al., 2018]。大気中での混 合状態の変化だけでなく,分子構造の化学変化によ っても光学特性が変化する点が BC とは異なり, BrC の放射影響評価をより複雑にしている。

気候モデルによるBrCの放射強制力の推定は、多くの場合、OA に対する BrC の質量割合と光学特性

を一定に仮定して実施されてきた。BrC は BC の 20 -70%程度(0.04-0.57 W m⁻²)の正の放射強制力を 持つと推定され[Feng et al., 2013; Lin et al., 2014], 森 林火災由来の BrC による大気加熱量は,熱帯の自 由対流圏では BC に匹敵するとの推定もある[Zhang et al., 2020]。 IPCC AR6 では、 これまでよりも BrC の 光吸収量が大きく見積もられ, OA 全体の負の放射 強制力を減少させる方向に推定が更新されている。 しかし,気候モデルにおける OA の表現の不確定性 は大きく、特に SOA 生成や POA の放出量にはモデ ル間に大きなばらつきがある[Gliß et al., 2021]。観測 された OA 質量濃度の大きさや変動のモデルによる 再現性が一般に高くないことから、OA の一部である BrC の正確なモデリング手法を開発・検証することは, さらに挑戦的な課題となっている。BrCの長期観測や 高度分布の観測は極めて限られており[Wang et al., 2018], BrC の動態把握とモデル検証のためにこれら の観測が必要である。BrCの放出源・分子構造・大気 中での化学変化に伴う光学特性の変化についての 観測的な知見を蓄積し, モデルに適切に組み込んで いくことが今後も求められる。

#### 2.1.3 酸化鉄

BCとBrCに加えて、鉱物ダストは主要な光吸収性 エアロゾルの1つとして認識されてきた。鉱物ダストを 構成する鉱物の大部分は光散乱性であるが、わずか に含まれている酸化鉄の組成と量が鉱物ダストの光 吸収性を規定する。また、鉱物ダストに含まれる自然 起源の酸化鉄だけではなく、燃焼過程等で生成する 人為起源の酸化鉄による光吸収も無視できないこと が近年明らかになってきた。この項ではこれらの自然 起源・人為起源の酸化鉄の研究の動向と展望につ いて述べる。

環境中の酸化鉄には多くの化学種が存在し,主要 なものとしてマグネタイト( $Fe_3O_4$ ), ヘマタイト( $\alpha$ - $Fe_2O_3$ ), マグヘマイト( $\gamma$ - $Fe_2O_3$ ), ゲーサイト(FeOOH), フェリハイドライト( $Fe_5HO_8 \cdot 4H_2O$ )等が挙げられる。 鉱 物ダストの全質量に対する酸化鉄の質量割合は数パ ーセント程度であり[Journet et al., 2014], 鉱物ダスト の光吸収に主に寄与していると考えられるのはヘマ タイトとゲーサイトである[Schuster et al., 2016]。ヘマタ イトとゲーサイトは,紫外・可視域の波長での複素屈 折率虚部の値が最大で1桁程度異なるため(2.1.4 章),鉱物ダスト中の両者の相対的な含有量を把握 することは重要である[Li et al., 2021; Go et al., 2022]。 また,鉱物ダストの粒径分布も放射との相互作用に 強く影響する。これらの時空間的な分布や変動の理 解は不十分であり,鉱物ダストの放出量の不確定性 も相まって,鉱物ダストの放射強制力はその符号すら まだ明らかになっていない。

現場・実験室におけるエアロゾルの化学組成分析 に加え、今後の衛星ミッションではエアロゾルの組成 や鉱物学的な情報が得られることが期待されている [Diner et al., 2018, Green et al., 2020]。 鉱物ダストの 組成の空間分布を把握し, 適切にモデルに組み込 むことが求められる。また,鉱物ダストの粒径別数濃 度を測定する確立された手法は無く,これを実現す る新しい装置の開発が必要である。粒子の形状に依 存した偏光光散乱の検出に基づき,鉱物ダストの粒 子数濃度を推定する試みが行われている[Kobayashi et al., 2014; 鷹取ら, 2015; Pan et al., 2016]。また, 個々の非水溶性粒子を光学的に検出し,その体積・ 複素屈折率・形状に依存した物理量を測定する汎用 的な微粒子測定器の開発が進められている[Moteki, 2020; 2021]。鉱物ダストの組成と粒径別数濃度の観 測は,鉱物ダストによる直接的な放射影響だけでなく, 氷晶核としての働き(2.2 章)を理解する上でも重要で ある。

酸化鉄のうち,特に光吸収性の強いマグネタイトや ヘマタイトは,これまで BC の測定に使用されてきた LII 法により選択的に検出・定量できることが示されて いる[Yoshida et al., 2016]。この手法を用いた地上・航 空機観測により,大気中には人為起源のマグネタイト の粒子が少なからず存在し[Moteki et al., 2017],その 放射効果が BrC に匹敵しうることが明らかになった [Matsui et al., 2018b]。人為起源の酸化鉄粒子の放 射影響は最新の IPCC でも評価されておらず,これま で見過ごされてきた温暖化物質と言える。

人為起源のマグネタイトやヘマタイトなどの酸化鉄 粒子の放出源の候補として, 製鉄所・自動車の排気・ 自動車や電車のブレーキ摩耗や,その他の様々な 工業活動が挙げられる。しかし、それぞれの放出源 における酸化鉄の放出量は明らかになっていない。 これまでの観測の蓄積から、アジアの都市域・遠隔地、 北極のいずれにおいてもマグネタイトと BC の濃度に 正の相関が見られており,これは人為起源の酸化鉄 の放出源が空間的に BC の放出源に近いことを示唆 している[Yoshida et al., 2020]。放射影響に加え, 燃 焼過程で生成した人為起源の粒子に含まれる鉄は, 鉱物ダストに含まれる鉄よりも溶解度が高く、海洋に 沈着して海洋生態系を活性化させ、大気中のCO2の 取り込みに影響を与えうる[Kurisu et al., 2016; 2021; Matsui et al., 2018b; Ito et. al., 2018; 2019; 2021]。人 為起源の鉄の形態と放出量・沈着量を観測的に明ら かにし、気候影響をより定量的に評価することが求め られる。

#### 2.1.4 複素屈折率

複素屈折率は粒子の散乱・吸収特性を支配する 基本的なパラメータであり、その虚部の値が粒子の 吸収特性を強く支配する。BC の複素屈折率の報告 値は実部・虚部ともにばらつきが大きく、例えば OPAC (Optical Properties of Aerosols and Clouds)の データベース[Hess et al., 1998]では可視域で1.74 + 0.44i 程度, Bond & Bergstrom [2006] では波長 550 nm で1.95 + 0.79i, Moteki et al. [2010]では波長 550 nm で2.26 + 1.26i とされている。BC の放射影響を評 価する数値モデルでも様々な異なる値が使用されて いる[Bond et al., 2013]。BrC の複素屈折率の値は組 成に依存し、またその虚部の値は紫外・可視域で波 長依存性が大きく、例えば波長 350 nm で0.07-0.17

程度, 波長 700 nm で 0.0001-0.001 程度とされてい る[e.g., Kirchstetter et al., 2004; Chen & Bond, 2010; Lin et al., 2014]。鉱物ダストの複素屈折率虚部も紫 外・可視域で強い波長依存性を持ち,その値は 0.001-0.03 程度である[e.g., Hess et al., 1998; Colarco et al., 2014]。鉱物ダストの複素屈折率虚部の値は, 組成,特に酸化鉄の含有量に強く依存する[e.g., Di Biagio et al., 2019]。純粋な酸化鉄の複素屈折率虚 部の値は,波長 500 nm で 0.67 (マグネタイト, Ackerman & Toon [1981]; Huffman & Stapp [1973]), 0.1-0.8(ヘマタイト, Zong et al. [2021]), 0.09(ゲーサ イト, Bedidi & Cervelle, [1993])などの報告がある。各 種の光吸収性エアロゾルの放射影響の評価は、これ らの複素屈折率の値に依存しており,この値の不確 実性を低減させることが共通する課題である。2.1.3 節で述べたような新たな測定器[Moteki, 2021]によっ て, 複素屈折率の高確度の推定が可能になることが 期待される。

#### 2.2 氷晶核として働くエアロゾル

氷点下において、固体物質を含んでいない雲粒 は、すぐには凍結せず、-40℃~-35℃程度にまで 下がらないと自発的には凍結しない。ところが、大気 中に氷形成のための足場(氷晶核)が存在する場合 は、-35℃より高い温度でも氷晶(氷の微小な結晶) が形成されることがある。また、-35℃以下の温度で あっても、過冷却水滴が自発的に凍結するためには、 液体の水に対する相対湿度が100%付近にまで達す る必要があるが、氷晶核が存在する場合には、それ よりもはるかに低い相対湿度でも氷晶が形成されるこ とがある。大気中において、氷晶核として働くエアロ ゾルの存在は、ごく微量であっても、氷点下での雲微 物理過程に極めて大きな影響を及ぼすことから、そ の挙動について理解することは非常に重要である [*Murray et al.*, 2021]。

近年,氷晶核として働くエアロゾルに関する研究の 分野では,非常に大きな変更や進展があった。例え

ば、これまでの気象学の分野では、氷晶核として働く エアロゾルを表す用語として、「氷晶核」もしくは「Ice Nuclei(IN)」が使われてきていた。しかし、2015 年頃 を境に、INという呼称はほとんど使われなくなり、その 代わりに「Ice Nucleating Particle(s)(INP(s))」という呼 称が広く用いられるようになった(その経緯について は、當房[2019]の中で解説)。本稿のこれ以降では、 氷晶核として働くエアロゾルを「INP」, その働きやす さを「IN 特性」と表現する。INP の計測技術は,発展 途上にあり, 計測値のばらつきも非常に大きかったこ とから,長年に渡って科学的な知見が非常に乏しい 状況が続いていた。しかし、この約 10 年のうちに、 INP の計測技術の精度を検証するための相互比較 研究が実施されるようになり、さらに新たな計測技術 の開発や改良などの動きがあった。その結果,世界 的には INP に関する研究が盛んに行われるようにな ってきている[Murray et al., 2012; Kanji et al., 2017; 當房, 2019; Huang et al., 2021]。その一方で, 現在の 日本において, INP の研究に取り組んでいる(もしく は、当該分野を取り扱うことができる)研究者は非常 に限られている状況である。

INP の研究に関しては,未解明の課題が数多く残 されている。例えば,最も基礎的な部分である「INP が氷晶を形成する理由」についてさえ,ほとんどわか っていないのが現状である。また,大気中の INP の観 測については,近年の計測技術の進展により,世界 各地で実施されるようになってきているが,それらが 大気中にどの程度存在していて,どこから供給されて いるのかは,まだよくわかっていない。さらに, INP が 雲微物理に及ぼす影響の評価についても,現在の 気候モデル内でのエアロゾルー雲相互作用の表現 方法が確立されていないこともあり,依然として不十 分な状況である。

新たな課題として、地球温暖化などの気候変動と の関連性についても注目が集まっている。例えば、 今後、地球温暖化の進行に伴う地表面付近の温度 の上昇により、中~高緯度の下層で発生する混合相 雲(氷晶と過冷却水滴が混在する雲)内では,氷晶 が減少し,水滴が増加すると予測されている[Tan et al., 2016]。その一方で,高緯度域での積雪や氷河, 海氷の融解が促進されると,雪氷に覆われていない 陸域や海域からの INP の供給が増えることも示唆さ れており[Tobo et al., 2019; Šantl-Temkiv et al., 2019; Sanchez-Marroquin et al., 2020; Inoue et al., 2021; Carlsen & David, 2022; Creamean et al., 2022], INP が将来の雲微物理に及ぼす影響は,当初予測され たシナリオよりも複雑なものになっている可能性があ る。

以上のような状況を背景として、INP に関わる研究 において、今後 10 年間に我々が取り組むべき課題 について以下に述べる。

#### 2.2.1 INP の表面構造の解析

INP は、固体の物質によって構成されており、鉱物 ダスト、微生物もしくはそれらの活動に由来する有機 物などが知られている[*Murray et al.*, 2012; *Kanji et al.*, 2017; *Huang et al.*, 2021]。一般的に、鉱物粒子の多 くは、約-12℃以下にならないと INP としてはほとん ど働かないが[*Murray et al.*, 2012; *Kanji et al.*, 2017], 近年の研究では、カリ長石を多く含む鉱物は、他の 鉱物(粘土鉱物など)よりも 5℃以上高い温度でも氷 形成を起こす(つまり IN 特性が高い)ことが示されて いる[*Atkinson et al.*, 2013]。また、細菌や真菌などの 微生物の中には、-12℃よりもはるかに高い温度で の氷形成を誘発する有機物(氷核活性タンパク質な ど)を細胞の外部に形成する種がいることが知られて いる[*Huang et al.*, 2021]。

INP を足場とした氷形成過程は、その粒子上に存 在する氷形成に適した何らかの表面構造(氷形成の 場; ice nucleation active site)が大きく関係していると 考えられている。この「氷形成の場」を特定するため の基礎研究は、今後、「そもそも INP とは何なのか?」 を明らかにするためにも重要である。

既に述べたように、カリ長石や氷核活性タンパク質

などが、高い氷形成能力を示すことが知られてきてい る。その一方で、「具体的にそれらが持つどのような 表面構造によって、氷晶の形成が誘発されるのか?」 という基礎的な部分について、我々の科学的知見は 非常に乏しいままである。近年では、ハイスピードカメ ラや電子顕微鏡などを用いて、この氷形成の場につ いて明らかにしようという新たな取り組みが行われるよ うになってきている[Kiselev et al., 2017; Holden et al., 2019; 2021]。日本には、微粒子などの表面構造の詳 細分析を得意とする研究者が多くいるため、今後、 「氷形成の場」の解明につながる研究が新たに創出 されることを期待したい。

#### 2.2.2 大気中の INP のモニタリング

実大気中の INP の濃度計測については、日本で の歴史は古く、60 年ほど前に磯野謙治教授らの研究 グループによって、国内での計測結果が報告されて いる[Isono et al., 1959; Isono & Tanaka, 1966]。しかし、 それ以降は世界的にも観測事例が少なく、科学的知 見が非常に乏しい状況が長く続いていた。

現状の INP の計測技術に関して, 特定の標準化さ れた装置が世の中に広く普及している状況とはなっ ておらず, 世界中の各研究グループが独自に開発・ 改良を進めてきたもの(雲生成チャンバーやコールド ステージ型の装置など)が使われてきている。それで も, 近年, 標準試料(鉱物試料, 微生物試料など)を 使った相互比較研究が進められたことにより, 各計測 技術による IN 特性の計測精度に関しての客観的な 評価ができるようになってきている[Tobo, 2016; DeMott et al., 2017; 2018]。

最近では、これらの各計測技術を用いて、実大気 中での INP の計測が行われるようになってきている。 実大気中での INP の計測は、今後 10 年間のうちに、 さらに盛んになることが予測され、日本でも推進され るべきだと考える。世界の動向としては、比較的短期 間の観測プロジェクトの中で INP の観測が実施され ているケースがほとんどだが、日本においては、世界 的にもほとんど例のない「INP の通年観測」が実施されてきている[Orikasa et al., 2020; Tobo et al., 2020]。 このような観測が国内外の様々な地点で数多く実施 されることにより、大気中における INP の挙動に関す る新たな科学的な知見が蓄積されることが期待される。

#### 2.2.3 INP の計測技術の開発

大気中の INP のモニタリングを進めるにあたり,既存の計測技術を用いた観測を進めていくことは重要だが,それと並行して,新たな計測技術の開発が進められることも強く推奨される。INP の計測技術を開発する上での目指すべき方向性の例としては,以下のような点が挙げられる。

- 0℃以下の幅広い温度域をカバーすると同時に、
  低濃度でも検出することができる
- ・ 計測プロセスの大部分が単純化もしくは自動化 されている
- ・ 計測値の精度(定量性)が保証されている
- 時間分解能が高い
- ・ 動作が安定しており、長期の観測にも耐えうる

#### 2.2.4 INP の変動をもたらす要素の解明

大気中の INP は、様々な要素によって変動を示す。 低~中緯度域では、アジアやアフリカの乾燥地帯で 鉱物ダストが発生した際、INP を急激に増加させるこ とが報告されている[Isono et al., 1959; DeMott et al., 2003; Tobo et al., 2020]。また、降水や高湿度の影響 下で、INP が増加することが報告されており[Isono & Tanaka, 1966; Tobo et al., 2020]、その原因について は、微生物・有機物などの大気中への放出が関係し ていることが示唆されている[Huffman et al., 2013; Prenni et al., 2013; Tobo et al., 2013, 2020]。高緯度域 では、積雪や氷河、海氷の融解が促進されると、雪 氷に覆われていない陸域や海域からの鉱物ダスト、 微生物・有機物などの大気中への放出が活性化され、 INP が増加する可能性があると指摘されている[Tobo et al., 2019; Šanth-Temkiv et al., 2019; Sanchez*Marroquin et al.*, 2020; *Inoue et al.*, 2021; *Carlsen & David*, 2022; *Creamean et al.*, 2022]_o

このように、INP の変動をもたらす要素については、 いくつかの可能性が指摘されてきているものの、その 科学的理解は極めて不十分である。そこで、大気中 の INP の観測を行う際には、INP の変動に関連しうる エアロゾルや気象データなどの計測も並行して実施 することが推奨される。特に、INP として働くエアロゾ ルの有力な候補とされる鉱物ダスト、微生物・有機物 などの固体粒子の定量的な情報(IN 特性や大気中 での濃度などの情報)が特に不足しているため、今 後、重点的に調べられることが望まれる。

#### 2.2.5 INP のパラメタリゼーション化

気候モデル内でのエアロゾルー雲相互作用の表 現にあたり, INP の寄与をどのように扱うかは, これか らの重要な課題である。気候モデル内で INP の濃度 変動を表現するための方法としては, 長年に渡って, INP を温度と湿度のみの関数として表現した経験式 [例えば, Meyers et al., 1992]が使われてきている。一 方, この約 10 年のうちに, 特定のエアロゾル(粗大粒 子, 鉱物ダストや微生物などの固体粒子)の変動を 加味した経験式[DeMott et al., 2010; 2015; Murray et al., 2012; Tobo et al., 2013]も提案されており, 気候モ デルを使った研究の中でも使われるようになってきて いる[Tan et al., 2016; Vergara-Temprado et al., 2018; Kawai et al., 2021]。

将来的に、大気中の INP の挙動について、どの程度、予測可能になるのかはわからない。ただし、上記の 2.2.1~2.2.4 章の研究項目などの遂行によって蓄積された知見を駆使し、INP をどのようにパラメタリゼーション化するのが妥当なのかを検証することは、非常に重要である。そのような取り組みを進めることで、気候モデルの中での INP の寄与に関する表現が大きく改善されることが期待される。

#### 2.3 長期モニタリングと越境大気汚染

#### 2.3.1 長期モニタリング

近年,大気エアロゾルの放出,輸送,沈着過程の 理解が進み,コンピューターの高速化に伴って大気 化学輸送モデルは日進月歩で進歩している。さらに 衛星を中心とする観測データとモデルを統合するデ ータ同化システムの導入が進んだことで全球エアロ ゾル分布の予測値は目覚ましく精緻化しつつある。し かし,こうした技術が長足に高度化しても,最終的に 数値モデルは直接観測データによって検証されなけ ればならず,衛星観測にもグラウンド=トゥルースが 必要な状況に今も昔も変わりはない。むしろ以前にも まして高い精度,データの時間的,空間的な連続性, 即時性など,直接観測に求められる要件も複雑化し ており,継続的に計られるべき項目も多岐におよぶ (GAW Report No. 227, Table 1.1.参照)[WMO, 2016]。

大気エアロゾルの長期モニタリングは1 地点のみ では地表付近のポイントデータに限られるものの,単 発の観測キャンペーンなどでは得られない長期的か つ連続的なデータが得られるメリットがある。例えば 今まさに、東アジアで起きつつあるような人為的放出、 土地利用,気候の変動に伴う中長期的なトレンドの みならず,新型コロナウイルスや原発事故など,予期 しない突発的な社会様式の変容に前後して起こる大 気質の変化に備え、追跡することができる。そしてそ うした基盤となるデータは長く継続すればするほど学 術的な価値が高まり,当該分野の科学者コミュニティ に資するのみならず,施行された環境政策の長期的 な検証などにも役立つ。我が国では,辺戸,福江,福 岡などに研究志向の大気観測拠点が設けられ,国内 におけるスーパーサイトの草分けとして牽引的な役割 を果たしてきた[Takami et al., 2007; Kaneyasu et al., 2014; Kanaya et al., 2020]。また, 極地や山岳域を代 表して北極, 南極, 富士山山頂などの遠隔地域でも 長年観測データが蓄積されてきた[Hara et al., 2021; Iwamoto et al., 2021; Mori et al., 2021]。こうした長期 モニタリングが持つ特徴や意義を改めて踏まえつつ, 今後の大気エアロゾルー雲相互作用の解明に向け た課題を整理したい。

まず,エアロゾルー雲相互作用を考える上で重要 となる CCN のフィールド研究を例に振り返ると, CCN カウンタの連続測定装置が提案され [Roberts & Nenes, 2005], CCN 活性の単一吸湿性パラメータが 提唱され κ ケーラー理論が確立されたこと[Petters & Kreidenweis, 2007]などが契機となり, その後急速に 観測事例が増えてきた。まだ装置が普及して間もな い 2010 年前後は、先発の研究グループが観測地点 や季節を変えながら数週間から数か月程度の集中 観測キャンペーンを展開し, 単発で成果を報告する ケースが中心だった。それから現在に至る10年間あ まりは,徐々にデータの連続性や観測地点の地域代 表性が問われるフェーズにシフトしてきた。後発なが ら能登半島の先端(金沢大学能登大気観測スーパ ーサイト珠洲測定局)に CCN カウンタを導入して連 続観測を開始した著者らも,後に世界の各地域で継 続的に測られた CCN 濃度の国際的な比較研究に参 画する機会を得た(のべ14カ国,23研究機関,70名 余の研究者が関与)[Schmale et al., 2017; 2018]。こ のプロジェクトには東アジアから都市部の韓国ソウル と、遠隔地を代表して能登が加わったが、いかに東ア ジア地域のエアロゾル(CCN)濃度が高く,季節変化 に富んでいるかが改めて浮き彫りになるなど、長期観 測データを統一的な観測条件(湿度,過飽和度の設 定や測定原理)で、多地点間で直接比較することの 重要性を印象付けた。ここで集められた観測データ セットは EU 主導の ACTRIS (Aerosol, Clouds and Trace Gases Research Infrastructure) プロジェクトのデ ータベースにアーカイブされ,後に日本からの貢献を 含む 39 名が参加した大気大循環モデルならびに化 学輸送モデルの相互比較研究に検証データとして 用いられた[Fanourgakis et al., 2019]。観測データと モデルの計算結果との比較から,各国で開発が進む 最新の数値モデルでも依然として CCN 濃度を 30% 程度過小評価する傾向があり(図 1), とりわけモデル

内での生物由来の SOA の生成, OA の吸湿特性, 乾性沈着, 雲内でのエイジング等の扱いに改善の余 地があることが示唆された。一方で,海洋境界層にお いて飛沫から一次的に発生する微小な海洋起源エ アロゾルが CCN 全体に占める割合の過少評価も指 摘されており, 非海洋性 CCN との切り分けも課題とし て残っている[Xu et al., 2022]。

上記のような大気エアロゾルの長期モニタリングサ イトを観測項目ごとにネットワーク化する動きは EU を 中心に活発化しており,世界気象機関(WMO),国 連教育科学文化機関(UNESCO)の政府間海洋学 委員会(IOC),国際学術連合会議(ICSU)および国 連環境計画(UNEP)がスポンサーとなっている全球 気候観測システム(GCOS)の一翼を担うべくスタート した SARGAN (in-Situ AeRosol GAW observing Network)イニシアチブ[Laj et al., 2020]の一環として, 世界 52 か所で 10~40 年にわたって計測された散乱 係数,吸収係数などの光学的特性[Coen et al., 2020] や,62 地点で 2016~2017 年に計測された粒子個数 濃度と粒径分布[Rose et al., 2021]がまとめられている。

過去に酸性雨の越境汚染問題がいち早く顕在化 した経験からか, EU では早くからこうした地上観測で の手法の標準化が図られ, かつ科学政策としてもトッ プダウンで EU 各国の連携が推進されてきた。こうし た背景も手伝って, SARGAN のような国際的なイニ シアチブを牽引し, 参加している長期モニタリングサ イトは特に EU に偏重している印象は否めない。南米, アフリカ, オセアニア, シベリアと並び, アジア地域で の相対的な観測地点の不足が指摘されている [Kulmala, 2018; Coen et al., 2020]。しかし, 近年では 日本発のスカイラジオメータの観測ネットワークである SKYNET が 2017 年に正式に WMO GAW の



図1 モデルアンサンブルによる 2011 年から 2015 年までの CCN 数濃度(過飽和度 0.2%; CCN0.2)の再現結果。黒い点は 観測の月平均値, 青と赤の実線はアンサンブルメンバーの中央値と平均を示す。網かけの範囲はすべてのモデル結果の 25%と 75%値, 緑の破線は最小値と最大値。[*Fanourgakis et al.*, 2019]

contributing network となるなど [Nakajima et al., 2020b], 日本をはじめとする東アジア地域のプレゼン スも徐々に高まりつつある。リモートセンシング観測は もともと半無人でもデータが収集でき、ネットワーキン グとの親和性が高い部類の観測項目ではあったと思 われるが, 今後は光学特性, 粒径分布, CCN, 化学 組成などの大気エアロゾル物理,化学特性の直接観 測についてもこうした流れに追随すべき時期に来て いると考えられる。近年の、数値モデルや再解析プロ ダクトへのデータ同化,衛星観測の検証等でのニー ズにスピード感をもって対応するためには、地上での 直接観測データについても統一的なフォーマットで, かつ迅速に共有されることが望ましい。オンライン化 が進んだとは言え,依然として手間がかかり高コスト 体質の直接観測データを,長期間繋げてデータベー スに供給し、国際的に歩調を合わせるとなると、それ なりの負担と責任が伴うのは事実であるが、ネットワ ーク化し、ユーザーが増えることで貴重なデータの価 値が最大化され, データを提供する側にとってもメリ ットが生まれる好循環を回していくことが,持続可能 な長期モニタリングを実現する上でも理想的だと考え られる。

地上での長期モニタリングには、単にモデルや衛 星観測への検証データを提供するという側面だけで なく、新しくモデルに組み込むべき化学反応や、自 然システムがもつ未知のフィードバックループの発見 を担う基礎研究上の重要な役割を担っていることも忘 れてはならない。特に、黄砂や海塩、硫酸塩といった 無機物主体の粒子の表面に、わずかにでも有機物 がコーティングされていれば、不均一反応の速度、 CCN、INP としての活性などを大きく変化させてしまう 可能性がある[Freedman, 2017; Gen et al., 2019]。既 存のインフラ、ベースライン観測をうまく利用しつつ、 厳選された基本項目を長期モニタリングで抑えなが ら、短期集中観測を展開して大気エアロゾルが持つ 微視的、巨視的両面での混合状態を詳細に明らか にする必要がある。 また,カーボンニュートラルに向け世界が動き出す 中で,例えば交通部門から放出するエアロゾルは従 来の燃焼由来の粒子から,今後はタイヤやブレーキ などの摩耗に伴って放出する粒子が主体となり,従 来見過ごされてきた粒子の存在が相対的に重要にな ってくる可能性も否定できない。従来の観測手法に 加えて,新たにモニタリングされるべき項目の探索と いう観点でも,マイクロプラスチックやバイオエアロゾ ルといった未解明の粒子の動態解明にも注力すべき である。

現状では、CCN カウンタやκケーラー理論が確立 されている CCN に比べると、大気中にわずかにしか 存在しない INP を正確かつ連続的に計測できる標準 的な装置もなく、IN 特性を定式化する理論も十分に 確立してはいない。今後はそうした新規の研究手法 の開発とフィールドでの試験的な運用の場としても、 長期モニタリングのサイトは活用されるべきである。ま た、従来の CCN、INP の長期モニタリングの多くは地 上で行われており、実際に雲ができる環境を代表し ていないという根本的な問題も残されている。その点 山岳域の観測サイトにかかる期待は依然大きい。航 空機観測は大がかりになるため、発展めざましいドロ ーンなどを活用して時空間的なギャップを補完するこ とも有効であろう。

また,従来は,エアロゾル-雲相互作用の研究と 謳いながらも,地上で測られる大気エアロゾルの雲核 活性と,リモートセンシングによる上空の雲,降水過 程の観測は独立して行われてきており,両者のリンク について十分な検討が行われてきたとはいいがたい。 例えば,貨物船の航路上空では船舶由来のエアロゾ ルが雲を刺激して雷が増加していることが報告されて いる[Thornton et al., 2017]。その点においても,長期 的には省庁や官学の枠組みを超えて,リモートセン シングや長寿命ガスに特化してきた観測サイト,行政 ベースの地上大気環境測定局網,大学などが独自 に開拓してきた研究志向の強い観測サイトなど,従 来独立していた地上インフラを統合的に運用し,適 宜ローコストセンサーなどもうまく取り入れながら効率 化と連携を図ることで,限られた研究リソースを新しい 研究テーマや特定の観測項目に集中できる環境を 整備していく必要があると考えられる。

#### 2.3.2 越境大気汚染

大陸の風下に位置する日本は,世界有数の大気 汚染物質の放出国である中国の影響を受けうる。酸 性雨問題への取り組みとして始まった越境大気汚染 の問題は、必ずしも酸性雨にとどまらず、光化学オキ シダント(Ox)およびエアロゾル(PM2.5)の問題として 2000年代に顕在化してきた。具体的には, 2007年春 季の日本での広域的な光化学スモッグ注意報の発 令事例[大原ら, 2008]や2013年1月の中国のPM2.5 激甚大気汚染などが挙げられる。後者については社 会的な影響も大きく、PM25という言葉は 2013 年の新 語・流行語トップテン入りとなり,国民に広く認識され るに至った。なお、この事例における越境輸送の影 響は、例年と比べて大きな増加はなかったものと報告 されている[鵜野ら, 2013]。また, 上述の人為起源に 限らず,タクラマカン砂漠やゴビ砂漠を起源とする土 壊性ダスト(黄砂)[Uno et al., 2009] もわが国の大気 環境に影響を与える要因となる。サハラ砂漠由来の ダストと比較して,黄砂は光吸収が強いことが特徴で

あり、この地域の放射収支に影響を及ぼす[Zhang et al., 2009; Huang et al., 2014]。このほか、シベリアの森 林火災 [Ikeda & Tanimoto, 2015; Yasunari et al., 2018]は特に北海道や東北地方に影響を及ぼす場 合もある。

国内の大気汚染物質放出量は1980年代以降,減 少を続けている[Kurokawa & Ohara, 2020]。ここでは 越境大気汚染に係る中国の放出量を図2に示す。主 要な大気汚染物質放出量について, MEIC (Multiresolution Emission Inventory for China) [Li et al., 2017; Zheng et al., 2018; 2021]および REAS (Regional Emission inventory in Asia) [Kurokawa et al., 2013; Kurokawa & Ohara, 2020]による 2000 年から 2020 年 までの経年変化を示す。目覚ましい経済発展に伴い 2000 年代には放出量も劇的な増加の一途を辿って いたが、その様子も現在では大きく変わってきている。 SO2 はその対策が早く, 2005 年をピークに減少傾向 に転じた(図 2(a))。SO2から生成する SO42-は日本の PM2.5の主要成分の1つであり、従来から大陸に近い 西側で高くなる経度勾配をもつことが知られていた [Aikawa et al., 2010]。中国の SO₂ 放出量の削減は, 日本の大気質改善にも寄与したと考えられる。また、 SO2 放出削減に遅れたが, NOx 放出量も 2011 年か ら減少傾向に転じた(図 2(b))。上述した激甚大気汚



図 2 MEIC および REAS 放出量インベントリによる中国の(a)SO₂, (b)NO_x, (c)NH₃, (d)NMVOC, (e)BC 放出量推計値の 2000 年から 2020 年までの経年変化。放出量は年間総計値で単位はすべて Tg。

染への対策のため,中国では 2013 年から大気汚染 防止アクション・プランなどの政策が精力的に推進さ れ,中国国内の PM_{2.5} 濃度は 2013 年から 2017 年ま での 5 年間で 3 割以上も減少するなど,大気環境が 大きく改善されてきている[*Zhang et al.*, 2019]。日本の PM_{2.5} 濃度は, 2009 年に環境基準が設定されて以来, 2010 年度から 2014 年度までは 30%前後の達成率で あったが, 2015 年度から 70%を超えるようになり,最 新の 2019 年度では 99%に至った。ここ 10 年で日本 の PM_{2.5} 汚染状況は劇的に改善されており,中国の 大気環境改善が大きく影響を及ぼしたと考えられて いる[鵜野ら, 2017]。

だが,懸念すべき点として,大気汚染要因の変化 という点が残っている。PM2.5 濃度としては改善してい るが, 例えば, 日本の西側に位置する長崎県福江島 の観測・モデル解析結果からは, 硝酸塩エアロゾル (NO3⁻)がPM2.5に占める割合,また,その濃度も増加 していることが解明された[Uno et al., 2020]。これは, SO4²⁻の減少により対イオンであったアンモニウムエア ロゾル(NH4⁺)が余剰となり, NO3⁻との反応に利用さ れるように変化していること、合わせて、農業が主たる 放出源であるNH3について,その放出量がほぼ横ば いで推移していること(図 2(c))も関連している。このよ うな変化は、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET)の長期観測から,酸性雨の要因が SO4²⁻か ら NO₃-に変化してきていることにも見られている [Itahashi et al., 2018]。また, NMVOC 放出量の減少 傾向は他に比べると緩やかである(図 2(d))。光化学 オキシダントや SOA にも一層着目をする必要があろ う。太陽光の直接吸収などにより温暖化に寄与する BC は, 最新の知見では 2013 年あたりから減少に転 じている(図 2(e))。中国は、特に 2010 年以降には経 済成長とともに放出削減という環境政策を成し遂げて きた。今後, 2030年ごろには GDP では中国は米国を 抜いて世界 1 位となる見通しである[岩田, 2019]。そ のような経済成長下でも、今後も放出削減は継続さ れると考えられる[Tong et al., 2020]。したがって, 今な

お減少に転じていないNH₃放出量は、それ自身は大 気環境基準の設定された汚染物質ではないものの、 硝酸アンモニウム(NH₄NO₃)を生成する要因となるた め、注視すべき対象と言える。

2020年には新型コロナウイルスの蔓延という不測 の事態が生じ,感染拡大防止のために中国ではロッ クダウンの措置がとられた。人間活動の制限の影響 を受け,例えば NOx 放出量は 2020年 2-4 月には 2019年同月比でそれぞれ 36,14,6%減少したが,5 月以降は 3%以内の減少幅であり,ほぼ同等の放出 水準に戻ったと推計されている[*Zheng et al.*, 2021]。 この中国のロックダウン期間中には,日本遠隔域の PM_{2.5}, SO₄²⁻, NO₃-濃度は 2018-2019年の同期間比 で 3-5割減少したことが観測された。越境輸送の減少 の影響と考えられたが, NO₃-に対しては気象場の変 動も寄与したことが数値モデルから推定されている [板橋ら, 2020]。2020年冬季は統計開始以降最も気 温の高い記録的な暖冬であり[気象庁, 2020],粒子 化しにくい気象状況も複合的に関連したと見られる。

以上のようなことから、 今後は気候変動そのものや カーボンニュートラルに向けた脱炭素の放出施策の 方向性との協調が一層欠かせないものとなろう。まず, 気候変動下の気象場の変動により, 越境輸送のパタ ーン(起こりやすさ,あるいは,起こりにくさ)がどう変 化するかを評価する必要がある。 続いて, 放出量の 点では、中国では SO₂の放出削減が最も早く、SO₄²⁻ の減少は PM2.5 濃度低減に効果的ではあったが,一 方でエアロゾルー放射相互作用の点では、それがも たらす冷却効果が弱まったことにつながったと言える。 将来に予想される高濃度 CO2下での SO2 削減は、現 状の CO2 濃度レベルにおける SO2 削減よりも, 温暖 化を一層強めるものと推定されている[Takemura, 2020]。また, BC 削減による温暖化抑制の影響は従 来以上に弱い可能性も指摘されてきている [Takemura & Suzuki, 2019]。大気汚染と気候変動の 両対策が可能となる緻密な放出シナリオの策定が求 められる[Nakajima et al., 2020a]。

越境大気汚染の観点では、東アジアスケールの領 域的な大気汚染対策と全球的な気候変動対策の両 立が不可欠である。そのためには,大陸の風下に位 置する日本において多成分かつ準リアルタイムで利 用可能な地上モニタリング網(辺戸,福江,福岡,能 登など)で越境輸送の監視を継続することが,まず第 一に越境大気汚染の実態を迅速に把握するために 必須である。捉えられた越境輸送イベントの要因を解 明するためには、数値モデルにより越境大気汚染に 影響する気象場・放出量等の個々の要素をそれぞれ 評価するなど,現象解明のための観測・モデルの両 アプローチが重要であり、それにより越境輸送の低減 に向けた政策提言が可能となるであろう。また,地上 における定点観測に加えて,高解像度化する極軌道 衛星あるいは静止衛星による面的なモニタリングとの 連携も越境輸送の把握に必要であり、放出量変動を 迅速に把握する点でも衛星計測は今後も重要である。 さらに,無人機等も含めた研究用航空機による越境 輸送の高度分布の現場観測も望まれる。モデルの高 度化に向けては、例えば新型コロナウイルスへの感 染拡大措置としてとられたロックダウンや緊急事態宣 言等に伴う劇的な変化事例からは,従来までは数値 モデルに依存していた放出削減効果の推定を,実大 気の観測からも抽出可能かもしれない。そのような実 現象をより正確に再現可能なように,数値モデルを精 緻化させる必要もあろう[Lamboll et al., 2021]。数値モ デルに含まれる不確実性の低減は、放出シナリオに 基づく将来予測研究の不確実性を低減するためにも 必要であり、モデル開発・精緻化も継続されるべきで ある。その過程における AI の利活用も発展性のある トピックとなろう[Xing et al., 2020]。

#### 3. エアロゾルと気候の相互作用

#### 3.1 エアロゾルー放射相互作用

本節では,エアロゾルー放射相互作用に関する研 究の現状と,エアロゾルー放射相互作用の推定精度 を向上させる上で重要となる研究の将来構想につい て記述する。本節の1項では、放射強制力の推定の 現状と今後の課題を述べる。2項では、エアロゾルー 放射相互作用(と一部エアロゾルー雲相互作用)の 推定において重要となるエアロゾルの物理化学特性 の推定の現状と今後の課題を述べる。3項では、数 値モデルの検証に不可欠な観測について今後の展 望を述べる。

#### 3.1.1 放射強制力

最新の IPCC AR6[Masson-Delmotte et al., 2021]に よると, 1750年を基準とした 2014年におけるエアロゾ ルによる有効放射強制力 (Effective Radiative Forcing: ERF)は -1.3±0.7 W m⁻²と推定されている (図 3(c))[Forster et al., 2021]。このうち、エアロゾル 一放射相互作用(Aerosol-Radiation Interaction; ARI) による有効放射強制力(ERFari)は -0.3±0.3 W m⁻², エアロゾルー雲相互作用(Aerosol-Cloud Interaction; ACI)による有効放射強制力(ERFaci)は -1.0±0.7 W m⁻² と推定されている(図 3(c))。IPCC AR5[Boucher et al., 2013]では, 1750 年を基準とした 2011 年における ERFari は-0.45±0.5 W m⁻²と推定 されている。ERFari の不確定性幅は AR5 から AR6 にかけてやや減少したものの,第6期結合モデル相 互比較計画(Coupled Model Intercomparison Project phase six; CMIP6) [Eyring et al., 2016]に参画する各 モデルのエアロゾルによる ERF の推定には大きなバ ラツキがあり(図 3(c)), ERFari の不確定性幅は依然 として大きい。また,地上気温や海洋熱吸収などの観 測で束縛しエアロゾルによる ERF の時間変化や気候 感度を推定する試みも行われているが、1750 年を基 準とした 2005-2014 年におけるエアロゾルによる ERF は-1.1(-1.8~-0.5 の幅, 平均値と 5-95%レンジ) Wm⁻²と推定されており、不確定性幅は依然として大 きい [Smith et al., 2021]。

瞬時放射強制力(Instantaneous Radiative Forcing; IRF)は、ある摂動(perturbation)によって引き起こさ れる大気上端における正味の放射フラックスの変化 で定義され、この IRF と大気調節の効果を足し合わ せたものが ERF となる[Forster et al., 2021]。IPCC AR6 においては、1750 年を基準とした 2014 年にお けるエアロゾルー放射相互作用による瞬時放射強制 力 IRFari は-0.25±0.2 W m⁻² と推定されており、 ERFari ( $-0.3\pm0.3$  W m⁻²)の大部分を占める。IPCC AR6 においては、観測から推定された IRFari は-0.4  $\pm 0.4$  W m⁻² であり[e.g., Kinne, 2019], モデルから推 定された IRFari ( $-0.2\pm0.2$  W m⁻²)との違いは未だ大 きい[Forster et al., 2021]。したがって、モデルでの IRFari の推定精度を向上させることが、ERFari の推 定精度の向上につながる(3.1.2 章)。そのためには、 各化学種・エアロゾル種による IRFari, ERFari を評価 することが重要である。

人為起源放出の SO₂ は SO₄²⁻を生成し, その放出 量も多いため, エアロゾルによる ERFari を構成する 化学種の中で最大の負の値を持つ(図 3(a))。IPCC AR6 では 1750 年を基準とした 2019 年における SO₂ 放出による ERF は-0.94±0.69 W m⁻² と推定されて おり, このうち, SO₂ による ERFari は-0.23 W m⁻², ERFaci は-0.70 W m⁻² と推定されている[*Szopa et al.*, 2021]。エアロゾルー 雲相互作用による寄与が大きい ものの, エアロゾルー放射相互作用も重要な役割を 果たしている(図 3(a))。人為起源放出の OC による ERF は-0.21±0.23 W m⁻² と推定されている[*Szopa et al.*, 2021]。 Thornhill et al., 2021], AR5 で推定された放射強制 力(0.40[+0.05-+0.80] W m⁻²)と比較すると小さい値 となっている[Myhre et al., 2013a, 2013b; Bond et al., 2013]。ただし, AR5 で推定された BC による放射強 制力(RFari)はERFではなく、同じ物理量を比較して いるわけではないので注意が必要である(AR6 は 2019 年を対象とするのに対し, AR5 は 2011 年を対 象とするという違いもある)。しかし、AR6 での BC によ る ERF の不確定性幅([-0.20-+0.42] W m⁻²)には, 負値と正値が含まれており、このことは BC に関する 不確定性が未だに大きく, 今後も BC に関する研究 を実施する必要があることを示している。AR6 での BC による ERF (0.11±0.31 W m⁻²)の内訳は, ERFari が 0.145 W m⁻², ERFaci が-0.037 W m⁻² と推定さ れており,エアロゾルー放射相互作用の寄与が大き  $V(\boxtimes 3(\mathbf{a}))$  [Szopa et al., 2021; Thornhill et al., 2021]. BC は、エアロゾルー放射相互作用やエアロゾルー 雲相互作用の他に,雪氷面に沈着することで,地表 面のアルベドを低下させ, ERFを変化させる。AR6 で は, BC の雪氷面への沈着による ERF は 0.08[0-+0.18] W m⁻²と推定されている[Forster et al., 2021]。 BCの雪氷面への沈着による地表面アルベド低下の 効果は極域やヒマラヤ域などで特に顕著であるので, 今後は全球規模だけでなく,領域規模に着目した研 究がより重要となる。

m⁻² と推定されており(図 3(a)) [Szopa et al., 2021;

IPCC AR6 での BC による ERF は 0.11±0.31 W

ERF などの放射フラックスは、大気上端での放



図 3 1750 年を基準とした 2019 年における気候変動をもたらす各物質の放出量変化による有効放射強制力(a)と世界平均 地上気温変化(b)への寄与,および各項目(1750-2014 年)のエアロゾルによる正味の有効放射強制力(c)。(IPCC, 2021; Figure TS.15, Figure 6.12, Figure 7.5 より)。 射フラックスの収支に着目をしているが, BC は 大気加熱を通じて大気の鉛直安定度や降水強度 に影響を及ぼすので,大気上端だけなく,大気中 や地表面での放射フラックスに着目することも 重要である[Suzuki & Takemura, 2019; Oshima et al., 2020]。また, BC の高度分布は, BC による大気加 熱効果(鉛直安定度)や放射収支に影響を及ぼす ので,モデルで BC の高度分布を高精度で推定す ることも重要である[e.g., Samset & Myhre, 2015]。

なお, IPCC AR6 での放射強制力の推定およびエ アロゾル・オゾン等に関する影響評価は、CMIP6 を 構成する放射強制力モデル相互比較計画 (Radiative Forcing Model Intercomparison Project; RFMIP)[Pincus et al., 2016]とエアロゾルおよび大気 化学に関するモデル相互比較計画(Aerosol and Model Intercomparison Chemistry Project; AerChemMIP) [Collins et al., 2017]の枠組みで実施さ れ、日本の研究チームも大きく貢献をしている[e.g., Smith et al., 2020; Oshima et al., 2020; Zanis et al., 2020; Thornhill et al., 2021]。また CMIP6 の枠組み で,新型コロナウイルス感染症(COVID-19)の流行に 伴う世界各地でのロックダウン等よる温室効果ガスや エアロゾル関連物質の排出量の減少が,放射や気 候に及ぼす影響評価も行われている[Jones et al., 2021]。今後もこのような国際的な枠組みを活かした 研究を継続することが重要である。

#### 3.1.2 エアロゾルの物理化学特性

数値モデルにおいてエアロゾルの IRFari および ERFari の推定精度を向上させるためには,エアロゾ ルの放射特性(エアロゾルの光学的深さ(aerosol optical depth; AOD),光吸収による光学的深さ (absorption aerosol optical depth; AAOD)など)や雲 核特性(CCN 特性, IN 特性など)といった物理化学 特性の推定精度を向上させることが重要である。また, エアロゾルの放射特性や雲核特性の推定精度を向 上させるためには,エアロゾル各成分の動態とそれを 決める大気過程の理解が基盤となる。これらの要素 は観測による検証が可能であるため、観測と数値モ デル計算を組み合わせた研究が多く実施されてきた。 ここでは、その現状と今後の課題について、主に数 値モデル研究の視点からまとめる。

#### 3.1.2.1 AOD と光散乱性エアロゾル

AOD や AAOD は、衛星観測や地上放射観測(米国 が中心となり運用する AERONET や日本の研究グル ープがアジア域に展開する SKYNET 等)による推定 が広く行われてきている[e.g., Holben et al., 2001; Forster et al., 2021]。衛星観測では雲域の AOD 推 定が困難であること、地上放射観測は陸域に限定さ れるなどの制約があるが,広域的なモニタリングやモ デルの検証等に欠かせない観測であるため,継続的 な研究展開が重要である。AOD に関する最新の全 球エアロゾルモデル相互比較プロジェクト AeroCom (Aerosol Comparisons between Observations and Models)による研究では、全球モデルは衛星観測や 地上放射観測による AOD (波長 550nm)の時空間分 布の特徴を概ね良く再現可能であることが示されて いる[Gliß et al., 2021]。一方, AOD の絶対値(参加し た 14 の全球モデルによる AOD の中央値)は, 衛星 観測や地上放射観測の AOD と比べて 20~40%過 小推定しており,全球平均 AOD のモデル間のばら つきも大きい(0.097~0.16の範囲,図4)。また,波長 別の AOD から定義されるオングストローム指数(エア ロゾルの粒径分布の指標となる)の観測と全球モデ ル計算の比較では、モデル計算がエアロゾルの粒径 分布の空間的・時間的な変動幅を過小推定している ことも指摘されている。このような観測とモデル計算の 差を減らしていくためには、以下に述べるような数値 モデルの高度化が必要になる。また、複数の衛星観 測間でも AOD の推定に大きなばらつきがあることが 指摘されており、観測の不確定性幅を減らしていくこ とも重要な課題である[Schutgens et al., 2020]。モデル や衛星観測の検証には, エアロゾルの鉛直分布を測



図4 全球平均のエアロゾルの光学的深さ(AOD)。エアロゾル成分の AOD に対する寄与が, 各エアロゾルモデルとそれらの 中央値(ENS-MED)について推定されている。AERONET と衛星観測(MERGED-FMI)についても全球平均の AOD が示され ている。*Gli β et al.* [2021]より。

定できるライダーによる観測や、広域でのエアロゾル の光学特性(光散乱係数・吸収係数・単散乱アルベ ドなど)の観測を継続していくことも重要である。

AOD のモデル間のばらつきの主な要因の1つとし て、SO4²⁻やOAなどの推定のばらつきが挙げられる。 SO42-に関しては、その生成過程は他のエアロゾル成 分(OAやNO3-)と比べると早い段階から数値モデル に導入され、ほぼすべてのモデルで一通り表現され ている。しかし, SO42-の生成量や大気寿命(すなわ ち除去過程)のモデル間のばらつきは依然として大き く, SO42-の大気中量はモデル間で 4.5 倍のばらつき がある[Gliß et al., 2021]。OA に関しては, OA の生成 過程の数値モデル表現について,過去10~15年の 間に大きな進展があった[e.g., Shrivastava et al., 2017]。有機化合物の揮発性に着目したモデル表現 (Volatility Basis-Set)では、従来のモデルでは十分 に考慮されてこなかった半揮発性・中間揮発性の有 機化合物 (semivolatile and intermediate-volatility organic compounds; S/IVOC)と, それらの酸化反応を 通した OA の生成過程を表現している[e.g., Donahue et al., 2006; Robinson et al., 2007]。それによって, 従 来のモデル計算では1桁程度過小推定されることが 多かった OA 質量濃度の地上観測の再現性が大きく

向上した[e.g., Tsimpidi et al., 2010; Shrivastava et al., 2011; Matsui et al., 2014]。また, 液相反応による OA 生成の理解やモデル表現も大きく進展してきた[e.g., Ervens et al., 2011; Liu et al., 2012]。しかし, 一部のモ デルではこれらの過程(両方または片方)が考慮され、 OA の生成量や大気中量が多く推定されるようになっ た一方で,半数以上のモデルではこれらの過程は考 慮されていない[Tsigaridis et al., 2014; Gliß et al., 2021]。このようなモデル表現の違いが, OA の生成 量や大気中量のモデル間のばらつきの大きな要因と なっている。今後多くのモデルで S/IVOC や液相反 応由来の OA 生成過程の導入が望まれる。また, 現 状のモデルでは、遠隔域(外洋上など)における OA 濃度とそれに占める SOA の割合の観測再現性は乏 しく(観測では SOA の割合は 90%以上なのに対し, モデル計算では半分程度)[Hodzic et al., 2020], これ らの再現性を向上させていくことも今後の課題の1つ である。

AOD のモデル間のばらつきの2つめの要因として, 自然起源エアロゾルの放出量や大気中量の推定の ばらつきが挙げられる。海塩や鉱物ダストは質量・体 積濃度が高く,可視光の AOD に対しても大きな寄与 を占める(図4)。また,海洋からの硫化ジメチルの放

出や火山由来の SO2の放出を通した自然起源 SO42-の生成,植生や海洋起源の揮発性有機化合物から の OA の生成,バイオマス燃焼由来のエアロゾル(主 に BC, OA)も AOD に寄与する。人為起源やバイオ マス燃焼起源のエアロゾルとその前駆気体の放出量 は不確定性が非常に大きいが[e.g., Reddington et al., 2016; Mallet et al., 2021], 一般的に入力データとして モデルに与えられるため、これらについて複数のモ デルで同一の放出量を与えることは比較的容易であ る。そのため、これらの成分のモデル間のばらつきは、 放出量以外の要素が要因となる。一方,海塩や鉱物 ダストの放出量は、気象場(風速や気温)や地表面状 態に強く依存し、それらの時空間変動はパラメタリゼ ーションを通してモデル内で計算される。そのため、 海塩と鉱物ダストの放出量や大気中量にはモデル間 で非常に大きなばらつきが存在する[e.g., Huneeus et al., 2011; Gliß et al., 2021; Zhao et al., 2022]。また, 海塩と鉱物ダストの放出時の粒径分布の扱いにも大 きな不確定性が存在する。近年の鉱物ダストに関す る研究では、多くの全球モデルが鉱物ダストの粒径 を観測と比べて過小推定しており、この過小推定が 鉱物ダストのエアロゾルー放射相互作用の推定に大 きな影響を及ぼすことが指摘されている[Kok et al., 2017]。自然起源エアロゾルの放出量や大気中量の 不確定性は,放射強制力の基準となる産業革命前の エアロゾルの放射効果の主な不確定要因となるととも に,産業革命前を基準とした現在までのエアロゾル - 放射・雲相互作用の推定の大きな不確定要因とな る[Carslaw et al., 2013]。そのため、 観測との比較・検 証を通して,自然起源エアロゾルの放出量・粒径分 布・大気中量とその放射効果の不確定性を減らして いくことは非常に重要な課題である。

AOD のモデル間のばらつきのその他の要因として は、エアロゾルの吸湿成長の扱い方がモデル間で異 なることが挙げられる[Burgos et al., 2020]。吸湿成長 に伴う AOD の増大量は、全 AOD の半分程度を占 めると推定されており[Gliß et al., 2021], AOD の推定 において大きな寄与を占める。Burgos et al. [2020]では、エアロゾルの吸湿成長による散乱係数の増大について、観測と全球モデル計算の詳細な比較を行っている。今後、このような観測との比較例を増やしていくことで、吸湿成長のモデル表現を制約・改良していくことが必要である。

また、NO₃⁻の推定は特にモデル間のばらつきが大 きく、SO₄^{2-や}NH₄⁺と比べると地上観測や航空機観測 の再現性も低い[*Bian et al.*, 2017]。NO₃⁻が AOD に 占める寄与は、現在気候ではそれほど大きくないと 推定されているが、将来的に NO₃⁻がエアロゾルに占 める割合は増大していく可能性があり(2.3 章)、エア ロゾルの気候影響の将来予測において重要な役割 を果たす可能性がある。多くの気候モデルでは依然 として NO₃⁻の生成過程を考慮していないため、今後 より多くのモデルで考慮していくことが必要である。

#### 3.1.2.2 AAOD と光吸収性エアロゾル

AAOD に関する最新の AeroCom による研究では, AAOD(波長 550 nm)はすべての全球モデルにおい て概ね同じような空間分布が計算される一方,全球・ 年平均の AAOD の絶対値のモデル間のばらつきは 依然として大きいことが報告されている(0.0020~ 0.0098 の範囲) [Sand et al., 2021]。AAOD のうち, BC が約 60%(36~84%), 鉱物ダストが約 30%(12~ 49%), BrC が約 10%(0~24%)を占めると推定され ているが、この内訳のモデル間のばらつきも非常に 大きい。この要因としては, MAC(2.1.1 章), 大気寿 命, 複素屈折率(の虚部) (2.1.4 章)のモデル間のば らつきが挙げられている。また、エアロゾルを内部混 合粒子として扱うモデルが増えるにつれて, 光吸収 がどのエアロゾル成分由来なのかを推定することが 難しくなり、その統一的な推定手法が十分に確立さ れていないこともモデル間のばらつきを増やす要因と なっている。BrC の光吸収のオングストローム指数は 観測と比べて過小推定の傾向にあり, BrC の光吸収 とその波長依存性の推定の高度化も必要である。

燃焼過程を通して大気中に放出される BC は、大 気中で凝縮・凝集等の変質過程を経るにつれて, SO4²⁻, OA, NO3⁻などによる被覆量が増大する[e.g., Bond et al., 2013]。この変質過程によって,太陽放射 の光吸収効率は最大2倍程度増大するとともに, CCN 活性度が大きく増大し,雲・降水過程によって 除去されやすい粒子となる[Bond et al., 2006; Stier et al., 2006]。最近 10~15 年で, BC とその被覆量の単 一粒子測定が可能となり,実大気観測から BC 含有 粒子の粒径と混合状態に関する情報が得られるよう になった[e.g., Moteki et al., 2007] (2.1 章)。 このような 観測研究の進展に追随し, BC 含有粒子の粒径と混 合状態の両方を計算可能なボックスモデルや物理・ 化学過程の本質を損なわないパラメタリゼーションが 開発されてきた[e.g., Oshima et al., 2009a, 2009b; *Riemer et al.*, 2009; *Oshima & Koike*, 2013]。そして, BC の粒径・混合状態とこれらの変質過程による変化 を直接表現可能な全球モデルによって、これらの要 素が BC の放射強制力や全球分布の推定において 重要な要素となることが示されてきた[Matsui, 2017; Matsui & Mahowald, 2017; Matsui et al., 2018a].

航空機による BC 観測と比較して, 従来の多くのモ デルでは対流圏上層(特に熱帯域)において BC 質 量濃度を1 桁以上過大推定し,北極域の対流圏中 層・下層において BC 質量濃度を1 桁以上過小推定 する傾向が見られていた[e.g., Koch et al., 2009; Schwarz et al., 2013]。近年の研究では, 従来モデル 内で別々に計算されていた積雲内でのエアロゾルの 輸送過程と活性化・降水除去過程を統一的に計算 することで,対流圏上層での BC 濃度の観測再現性 が大きく改善することが示されている[Wang et al., 2013; Yu et al., 2019; Liu & Matsui, 2021]。また, 水雲 と氷雲におけるエアロゾルの降水除去効率を個別に 考慮することによって,北極域のBC濃度の観測再現 性が大きく改善する可能性も指摘されている[Qi et al., 2017a; Liu & Matsui, 2021]。さらに, BC の北極域へ の長距離輸送過程において, 雲の最大過飽和度の

時空間分布の推定と、それと整合的なBCの活性化・ 降水除去過程の計算が重要な要素となることも指摘 されている[Moteki et al., 2019; Matsui & Moteki, 2020; Matsui & Liu, 2021]。このように、今後のBCの 数値モデル計算においては、多くのモデルにおいて BC の変質過程をより詳細に導入することに加え、エ アロゾル過程と雲・降水過程を統一的に計算可能に することが重要である。このようなモデルの高度化は、 BC だけではなく、全エアロゾルの推定精度に影響を 与え、エアロゾルー雲相互作用の高度化にも大きく 寄与することが期待される(3.2 章)。

これまでの研究では非球形の BC を直接的に考慮 した気候モデルはほとんどない。任意の形状のエア ロゾルの放射特性を計算可能な手法(離散双極子近 似など)を用い, BC の形状が全球の放射特性に及 ぼす効果を明らかにすることも現在いくつかの研究グ ループで進められている課題の1つである。また, BC の長距離輸送過程における乾性沈着の重要性を指 摘する研究もあり[*Qi et al.*, 2017b; *Wu et al.*, 2018], 観 測との比較によって乾性沈着過程の不確定性を減ら すことも課題である。このような粒子の形状と乾性沈 着の推定は,次に述べる鉱物ダストの放射特性と空 間分布の推定でも重要となる。

3.1.2.1 章で述べたように、鉱物ダストの放出量の 推定や粒径分布の表現には大きな不確定性があり、 モデル間の大きなばらつきの要因となっている。これ らの要素に加え、鉱物ダストの光吸収という観点では、 鉱物ダストの鉱物組成の扱いが重要になる。ヘマタイ トやゲーサイトなどの有色酸化鉄は、太陽放射を吸 収し、AAOD への寄与も大きい(2.1 章)。しかし、一 般的な気候モデルでは、すべての鉱物ダストを単一 の複素屈折率を持つ粒子(平均的な鉱物組成を持っ た鉱物ダスト)と仮定しており、鉱物ダストの個々の鉱 物組成を陽に表現した気候モデルはほとんどない。 鉱物ダストの鉱物組成は場所によって大きく異なるた め[e.g., Nickovic et al., 2012]、様々な鉱物組成を直 接表現可能なモデルを開発していくことは、鉱物ダス トの光吸収量の推定高度化において重要な課題で ある。

BrC の研究は, 過去約 10 年間において大きく進展してきた(2.1 章)。BrC の放出・生成過程は, ごく一部のモデルでは導入されているが[e.g., Feng et al., 2013; Jo et al., 2016], ほぼすべての気候モデルでは 直接的には考慮されていない。これらの過程を多くのモデルに導入し, 短波長域での OA の光吸収量の 推定精度を向上させることは, エアロゾルの光吸収量 と光化学反応への影響の両面での推定高度化において重要な課題となると考えられる。

#### 3.1.2.3 CCN

CCN 数濃度に関する全球モデルの相互比較では, 世界各地の CCN 数濃度の観測データとの比較が実 施され,多くの地点でモデル計算が過小推定の傾向 にあることが示されている(2.3 章)[Fanourgakis et al., 2019]。CCN 数濃度のモデル間のばらつきは大きく (1 桁程度)(図 1), エアロゾルの放射効果(エアロゾ ルー放射相互作用)と雲粒数濃度への影響(エアロ ゾルー雲相互作用)の両方の観点で大きな不確定要 因となっている。CCN 数濃度の推定は、一次粒子の 粒径分布,新粒子生成過程による粒子の生成,凝縮 等による既存粒子の成長, エアロゾルの吸湿特性, 除去過程など様々な物理化学特性・大気過程に依 存するため,その不確定要因の解明は容易ではない。 例えば、OAの生成過程や吸湿特性の扱いにはモデ ル表現の改善の余地があり、これらの改善を通して CCN 数濃度の推定高度化に繋げていくことが重要な 課題の1 つである。OA の生成過程については、 3.1.2.1 章で述べたように, S/IVOC や液相反応での 生成過程の導入が重要である。これらの過程の導入 によって OA の生成量が増大すると, エアロゾルはよ り大きな粒径まで凝縮過程等によって成長し, CCN 数濃度の過小推定を改善できる可能性がある。また, OAの吸湿特性については、OAの揮発性やO:C比 (酸化の程度)に依存して吸湿特性が変化することが

指摘されており[e.g., Jimenez et al., 2009], これらの知 見を多くのモデルに導入することが必要となる。

CCN 数濃度の不確定要因の 1 つとして, 新粒子 生成過程が挙げられる。新粒子生成は,硫酸ガス (H₂SO₄)などの低揮発性の気体成分からの核生成に よって粒径 1 nm 程度の超微小粒子が生成し, 凝縮 過程等によって CCN として機能する粒径(数十~百 nm 程度)まで成長する過程である[e.g., Kulmala, 2003]。新粒子生成は、特に既存粒子の少ない外洋 域や自由対流圏において頻繁に起こり, エアロゾル 数濃度の重要な供給源となる。新粒子生成の理解は, 超微小粒子やH₂SO₄などの直接観測を可能とする装 置開発やその技術を用いた世界各地(森林地域,都 市域,自由対流圏,極域など)での大気観測によっ て過去 10~15 年の間に急速に進んだ[e.g., Kulmala et al., 2013; Bianchi et al., 2016; Tröstl et al., 2016]. また,これらの実験・観測に基づく数値モデル研究で は, H₂SO₄, アンモニア, 有機化合物, 大気イオンに 依存した核生成パラメタリゼーションが数多く開発・導 入され,新粒子生成由来の二次粒子が CCN 数濃度 の主要な割合を占めうること[e.g., Spracklen et al., 2008; Merikanto et al., 2009; Matsui et al., 2011a; Gordon et al., 2017], エアロゾルー雲相互作用の推 定にも大きな影響を与えうること[e.g., Makkonen et al., 2012; Gordon et al., 2016], などが明らかにされてきた。 しかし、これらの近年提唱されてきた核生成メカニズ ム(特に有機化合物や大気イオンに依存したパラメタ リゼーション)を導入した気候モデルは現時点ではほ とんどなく、多くのモデルに導入していくことが今後の 課題の 1 つである。最新のモデルにおいても、外洋 域の対流圏上層における超微小粒子やCCN 数濃度 の観測再現性は乏しく[Williamson et al., 2019], 新粒 子生成や OA 生成過程の改良等を通してこれらの観 測再現性を向上させていくことが必要である。

#### 3.1.2.4 INP

INP は,氷点下の比較的高温(-35~0℃)の雲内

において氷晶の核として働き、氷晶の形成を促す固 体粒子である(2.2章)。氷点下の雲内では、氷と水に 対する飽和水蒸気圧が異なるため,一旦氷晶が形成 されるとそれらは急速に成長し、既存の水滴を蒸発さ せる。そして, 雲の物理特性(雲水量・雲氷量, 雲粒 の有効半径など)を低緯度から高緯度の対流圏上層 や極域の対流圏下層の広い範囲で変化させ,放射 収支や降水過程などに影響を及ぼす。2.2 章で述べ たように、INP に関する観測的な知見は過去約 10 年 で急速に発展し、鉱物ダスト、バクテリア・胞子・花粉 などの生物粒子(バイオエアロゾル),海洋起源の OA, 燃焼起源の BC などが, 主要な INP であること が明らかにされてきた[e.g., Hoose et al., 2010; Murray et al., 2012; Wilson et al., 2015]。また, これらの観測 的知見に基づき,エアロゾル各成分の IN 特性に関 するパラメタリゼーションが作成されてきた(2.2 章) [e.g., DeMott et al., 2010; Niemand et al., 2012; Ullrich et al., 2017]。多くの気候モデルでは, INP 数を温度 や湿度のみの関数として表現しており,エアロゾルの 濃度や化学組成に依存した INP 数を推定可能なモ デルは数少ない(2.2 章)。CMIP6 に参加しているモ デルにおいても,エアロゾルと氷雲の相互作用を扱う モデルは少なく,エアロゾルによる ERF の推定にお いて大きな不確定性要因となっている[Smith et al., 2020; Thornhill et al., 2021]。 鉱物ダストや BC はほぼ すべての全球エアロゾルモデルで考慮されているが, 今後はこれらの IN 特性のパラメタリゼーションを多く のモデルに導入することが求められる。特に鉱物ダス トは組成によってIN特性が大きく異なること(カリ長石 の IN 特性が高いなど)が明らかにされており [Atkinson et al., 2013], 各鉱物組成とそれぞれの IN 特性を陽に表現することが重要な課題である。また、 バイオエアロゾルや海洋起源のOAは、これらの成分 自体が多くのモデルで考慮されていないため,これら の成分とその IN 特性の両方をモデルに導入すること が求められる。近年の研究では、固体粒子のIN特性 は、同じ組成であっても放出起源や放出環境によっ

て大きく変わりうることが示されてきている[Tobo et al., 2019; Schill et al., 2020]。このような放出起源・環境に 依存した IN 特性の違いについても直接表現できる モデル開発が求められる。

#### 3.1.3 エアロゾルの観測と数値モデル

全球規模のエアロゾルの時空間分布の理解には, 高精度での観測が基盤となる。これまでに日本の研 究グループにより,様々な地上・航空機・船舶・衛星 観測が実施されてきた。例えば,近年,日本の研究 グループにより BC 濃度を高精度で長期的に測定可 能な測定器(COSMOS)が開発され,2007 年以降, 東アジア域および北極域を中心に地上観測が展開 されている [e.g., Kondo et al., 2009; Sinha et al., 2017; Kanaya et al., 2020]。これらの高精度の BC 濃度観測 は,これまでに多くのモデル計算との比較に活用さ れ,モデルの改良に大きな貢献をしている。今後は, エアロゾルの放出量が増大することが予想される南 アジア域や東南アジア域など,より広域での様々な エアロゾル成分の観測を展開することが望まれる。

近年の衛星観測では、グリーンランド氷床表面の アルベド低下が確認されており[Box et al., 2012], BC や鉱物ダストの沈着により氷床表面の融解が加速し ている確信度が高いことが指摘されている[Meredith et al., 2019]。また, このアルベド低下への雪氷微生 物による影響も指摘されている[Uetake, et al., 2016]。 CMIP6 でのモデル研究によると、北極域では、BC は 二酸化炭素に次いで二番目に大きい正の有効放射 強制力を持つ可能性が指摘されている[Oshima et al., 2020]。このため、極域においては、エアロゾルの大 気観測だけでなく,沈着と関係する積雪観測も同時 に継続して実施することが重要である[e.g., Sinha et al., 2018; Kinase et al., 2020; Mori et al., 2021]。この ような中で,近年の北極温暖化のもとでグリーンランド 氷床上の大気,雪氷,雪氷微生物がどのように氷床 変動に影響するかを明らかにするため、2011年以降、 日本の研究グループにより SIGMA (Snow Impurity

and Glacial Microbe effects on abrupt warming in the Arctic)及び SIGMA-II プロジェクトがグリーンランドに おいて実施されている[e.g., Aoki et al., 2014; 青木ら, 2021]。極域での観測データはとくに貴重であるため, これらのデータはモデルの検証にとって非常に有用 である。近年の北極評議会の北極圏監視・評価プロ グラム作業部会 (Arctic Monitoring and Assessment Program; AMAP)での短寿命気候強制力因子 (Short-Lived Climate Forcers; SLCFs)に関する評価 報告書においても, エアロゾルを含む SLCFs が北極 の気候,大気質,および人間の健康に及ぼす影響を 総合的に評価する重要性が指摘されており[AMAP, 2021], 今後も信頼性の高い観測研究とモデル研究 を継続して実施することが重要である。

ここ 20 年で,エアロゾルに関する航空機観測が世 界各地で実施されてきている。 例えば, 東アジア域で は 2001 年春に ACE Asia (Aerosol Characterization Experiment Asia) [Huebert et al., 2003] & TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) [Jacob et al., 2003], 北極域では 2008 年春と夏に ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) [Jacob et al., 2010]、太平洋広域では 2009-2011 年にかけて HIPPO (HIAPER Pole-to-Pole Observations) [Wofsy et al., 2011]などの大規模な航空機観測が実施された。 日本の研究グループを中心として実施された航空機 観測としては、エアロゾルの主要な放出源である東ア ジア域や西太平洋域において,2009 年 3-4 月, 2013年2-3月,7月にA-FORCE(Aerosol Radiative Forcing in East Asia) 航空機観測[Oshima et al., 2012; Kondo et al., 2016]が行われている。これらの航空機 観測は,エアロゾルの輸送過程や除去過程の理解 に大きく貢献するとともに、モデルのエアロゾルの高 度分布の再現性の向上などに多大な貢献をしてきた [e.g., Koch et al., 2009; Samset et al., 2014; Liu & Matsui, 2021]。今後も、日本の研究グループを中心 として, 独創的な航空機観測を実施していくことが望 まれる。

北極域に近いヨーロッパやアメリカでは、SO₂放出 規制の導入前の 1970 年頃をピークに大気中のエア ロゾル濃度が急速に増大しており、グリーンランド南 東部で取得されたアイスコアの分析からも、エアロゾ ル濃度の変遷が観測されている[e.g., *lizuka et al.*, 2018]。また、アイスコア観測と同位体組成分析を組 み合わせることで、過去の大気中の SO₄²の生成メカ ニズムに関する研究なども行われている[*Hattori et al.*, 2021]。アイスコア観測は、過去のモデル計算を検証 できる貴重なデータであり、産業革命前から現在まで のエアロゾルの動態と放射強制力の不確定性を減ら すことができるほぼ唯一の観測である。今後も大気化 学研究者と雪氷研究者との積極的な連携を実施して いくことが望まれる。

これまでに述べてきたような,モデルの改良・検証 に必要となる観測の実施を長期的に可能にする上で, エアロゾル等の測定器を正しく運用し,目的に応じて ハードウェア・ソフトウェアの改良や開発を行える若手 人材の育成や,観測で得られた知見を適切にモデ ルに導入し,モデル研究の視点からより必要性の高 い観測についてフィードバックできるような若手人材 を育成していくことも,今後の重要な課題である。

#### 3.1.4 まとめ

エアロゾルー放射相互作用の放射強制力とそれら を決めるエアロゾルの物理化学特性・時空間分布の 推定には依然として大きなモデル間のばらつきが存 在しており、これらのばらつきの程度は過去約 10 年 で十分に減少しているとは言えない。一方、個々の 物理化学特性やエアロゾル過程(混合状態, OA の 生成過程・吸湿特性, BC の変質過程, BrC の放出・ 生成過程、新粒子生成など)に関する知見は、過去 約 10 年で大きく進展してきた。現在は、このような要 素をいち早く導入したモデルと導入していないモデ ルの両方が存在している段階にあり、このことがモデ ル間のばらつきが減少していない要因の 1 つと考え られる。今後は、近年理解が進展した知見を多くのモ デルで導入していくことが重要な課題となる。それに 対し、既存のほぼすべてのモデルで観測再現性の 低い要素(粒径分布,極域や対流圏上層での OA・ CCN 数など)や考慮されていない要素(IN 特性,鉱 物ダストの組成や鉱物種、バイオエアロゾルなど)も 存在する。これらの過程を数値モデルに導入し、そ の時空間分布や放射強制力を明らかにしていくこと も重要な課題である。また、物理化学コアテーマの章 で述べられた多相化学反応などの生成物や、陸域・ 海洋の章で述べられたバイオエアロゾルやダストなど の表面構造・組成や官能基が、エアロゾルの光学特 性や雲核特性とどう結びつくのかを解明することも重 要な課題である。

全球規模のエアロゾルの時空間分布と気候影響 の理解には、高精度の地上・船舶観測、航空機観測、 衛星観測、アイスコア分析などの情報が不可欠であ る。特に、1)極域などのモデル間のばらつきが特に大 きい領域、2)南アジア域や東南アジア域などの今後 もエアロゾル濃度の増大が予想される領域、3)外洋 域や対流圏上層など観測が少ない領域、における観 測と数値モデル検証が重要になる。

IPCC AR6 によると、世界平均気温は、AR6 で想定 する全ての放出シナリオにおいて、少なくとも今世紀 半ばまでは上昇を続けることが報告されている [Masson-Delmotte et al., 2021]。AR6 で想定される放 出シナリオでは、温室効果ガスと異なり、SO2 などの 人為起源エアロゾルに関連する放出量は 2100 年ま でに減少しており、SO4²などの生成が抑制されること で、温暖化が助長される可能性が指摘されている [Szopa et al., 2021]。また、将来的に地球温暖化が進 行すると、中・高緯度域で、より大規模な森林火災の 発生頻度が増大する可能性が指摘されており[Veira et al., 2016; AMAP, 2021]、極域等での積雪融解によ る鉱物ダストの発生が増えることが予想される [Prospero et al., 2012]。これらは、将来、相対的に自 然起源エアロゾルの重要性が増すことを意味してい る。また将来的に、大気中エアロゾルが減少すると、 エアロゾルに対する雲アルベド効果の感度が増大す る可能性がある[Carslow et al., 2013]。このため、今後 は、人為起源エアロゾルだけでなく、自然起源エアロ ゾルも含め、より定量的かつ総合的なエアロゾルの推 定や評価が重要になると考えられる。

#### 3.2 エアロゾル-雲相互作用

エアロゾルー雲相互作用は大気科学において最 も精力的に調べられてきた研究テーマの一つである。 エアロゾルが CCN や INP となって雲を変質させるこ とは 1950 年代から知られていたが[Squires, 1958], そ の後の航跡雲の発見による現象論的な裏付け [Conover, 1966; Coakley et al., 1987]や気候系への顕 著な冷源としての認識[Twomey et al., 1984; Charlson et al., 1992]を経て, エアロゾルー雲相互作用は現在 では気象学の一分野としての雲物理学から気候科学 まで幅広い分野にまたがる重要な研究テーマとなっ ている。

それらの研究をまとめた IPCC によれば, エアロゾ ルー雲相互作用による有効放射強制力(ERFaci)は-0.45 W m⁻²(AR5[Boucher et al., 2013]による 1750-2011 年の値), -1.0 W m⁻²(AR6[Forster et al., 2021] による 1750-2014 年の値)と見積もられ, 温室効果ガ スが地球を温める効果を部分的に相殺していると考 えられている。しかしながら、その見積もりの不確実 性幅は IPCC AR5 (-1.2 ~ 0.0 W m⁻²)から AR6 (-1.7 ~-0.3 W m⁻²)までの約 10 年間で縮まっておらず, エ アロゾルー雲相互作用の不確実性の低減は依然とし て気候科学における主要な課題である。このエアロゾ ルー雲相互作用による放射強制力の不確実性は, 気候予測の文脈において気候感度(二酸化炭素倍 増に対する全球平均地表気温の昇温の感度)の不 確実性とも連動している。 例えば,気候感度の推定 に 20 世紀に観測された全球的な気温変化を用いる 際には、この気温変化に顕著に影響したと考えられ ているエアロゾル冷却効果の定量的情報が鍵となる。 実際,気候感度の不確実性幅が初めて縮まったことを複数の証拠から示した最新の報告[Sherwood et al., 2020]では,エアロゾルー雲相互作用による放射強制力の不確実性が冷却側に大きく伸びている[Bellouin et al., 2020]ことから,これと整合的に 20 世紀の気温変化を説明するために必要な高い気候感度の可能性は棄却されていない。

エアロゾルー雲相互作用に関する気候研究のア プローチには大きく分けて,(i)衛星観測,(ii)大循環 気候モデル, (iii)全球雲解像モデルの3 つがある。 衛星観測は全球をカバーできる利点を持つ一方,搭 載センサが感度を持つ大気の限られた側面だけを観 測できるという制限のため,直接得られる情報や知見 には自ずと限界がある。しかし,近年の能動型衛星 の実現による衛星観測の発達はこの限界を大きく広 げつつあり,エアロゾルー雲相互作用の衛星観測研 究にも顕著な進展をもたらしている。衛星観測と並行 して発展してきた大循環気候モデルによる研究も現 在ひとつの転換点を迎えており,大循環モデルに一 通りは導入されたエアロゾルー雲相互作用の過程を いかに高度化して放射強制力の不確実性を軽減し ていくかを問われる局面となっている。この方向性で は、伝統的な気候モデルの粗い格子サイズでは雲を 解像できない根源的な問題がますます顕在化し,全 球を数 km の水平解像度で覆うことのできる新しい全 球雲解像モデルの次世代モデルとしての有効性が 高まっている。その一方,解像度だけでは解決でき ない雲・降水素過程のモデル表現に関する問題も明 るみになりつつあり、その解決は二種類のモデルに 共通した課題と言える。

このように,近年のエアロゾルー雲相互作用の気 候研究では,これら3 つがそれぞれに進展しながら 互いに影響し合うことでエアロゾルー雲相互作用の 気候影響の理解が全体として進んでいるのが現状で ある。本節でもこの3 つの各々について研究の現状 と将来展望を述べ,最後に全体をまとめる。

#### 3.2.1 衛星観測によるエアロゾルー雲相互作用研究 の現状と展望

エアロゾルー雲相互作用の気候影響を観測的に 理解するために有効なのは全球をカバーできる衛星 観測である。衛星によるエアロゾル・雲の定量的観測 は 1980 年代からその可能性が指摘され始め, 1990 年代から 2000 年代にかけてエアロゾル・雲に感度を 持つ可視・近赤外域の受動型センサを搭載した様々 な衛星が各国で実現したことで,エアロゾル・雲の光 学特性や微物理特性の全球分布が得られるようにな った[Husar et al., 1997; Higurashi & Nakajima, 1999; Han et al., 1994; Nakajima & Nakajima, 1995; Kawamoto et al., 2001; Platnick et al., 2003; Remer et al., 2005; Nakajima et al., 2009]。これらに基づくエア ロゾルと雲の相関統計によって,両者の相互作用を 全球規模で観測的に調べる研究が数多く行われてき た[e.g., Nakajima et al., 2001; Breon et al., 2002; Sekiguchi et al., 2003; Lebsock et al., 2008]。その結果, エアロゾル増加に伴って雲粒有効半径が減少する効 果[Twomey, 1974]の傾向は比較的ロバストに見られる が,降水生成を介した雲水量への影響[Albrecht, 1989]は雲タイプや気象場にも依存して複雑であるこ とがわかった[Sato & Suzuki, 2019]。

このことから、エアロゾル摂動に対する雲・降水系の応答には複雑に相互作用する微物理過程や力学 過程が応答を様々に弱める"バッファリング機構"が 内在している可能性が提唱されている[Stevens & Feingold, 2009]。この作業仮説の検証も含めてエアロ ゾルー雲相互作用を理解するために、雲・降水系の エアロゾル摂動への応答を素過程レベルで観測的 に捉える必要性が認識されるようになった。このような 背景の中で2000年代後半に実現した能動型衛星観 測は、雲レーダやライダを搭載することによって、受 動型センサではわからなかった雲・エアロゾルの鉛直 分布の観測を可能とした[Stephens et al., 2008; Winker et al., 2010]。これは、受動型センサとの複合 利用も相俟って、エアロゾルー雲相互作用の観測的 理解に新たな展開を生み出してきた。特に,水雲の 微物理過程とそれに対するエアロゾルの影響につい て, CloudSat 衛星搭載の雲レーダがもたらした降雨 生成の観測情報によって,現実大気での降雨生成 過程のありよう[Nakajima et al., 2010; Suzuki et al., 2010; Takahashi et al., 2017]やそのエアロゾル依存性 [Lebsock et al., 2008; L'Ecuyer et al., 2009; Wang et al., 2012; Suzuki et al., 2013a], さらに降雨の有無による エアロゾル摂動への雲応答の違い[Chen et al., 2014; Michibata et al., 2016]などが観測的に明らかとなって きた。

今後の衛星観測研究では,能動型・受動型センサ を組み合わせることで、水雲のプロセス理解をさらに 深めていくとともに,氷を含む高緯度の混合相雲や 低緯度の対流雲についてもエアロゾル摂動への応答 を素過程レベルで理解していくことが必要である。混 合相雲へのエアロゾルの影響を見るために, 極域で の混合相の航跡雲を衛星で解析した Christensen et al. [2014]では、氷を含む雲の応答は水雲に比べて 顕著に小さく,そこには降水過程が介在していること が示唆されている。エアロゾルー雲相互作用の傍証と して古くから知られる航跡雲は,火山噴火や都市大 気汚染などとともに,エアロゾルの点源放出に対する 雲の応答 [Rosenfeld, 2000; Eguchi et al., 2011; Malavelle et al., 2017]を同一気象場の条件で観測で きる「天然の実験室」として、近年その意義が一般化 されて捉えられている[Toll et al., 2019; Christensen et al., 2021]。このような衛星観測情報の蓄積と解析によ って,様々な環境条件における点源放出エアロゾル への雲応答の観測的理解が今後重要である。また, 上層に氷を含む低緯度の深い対流雲において,エ アロゾル増加によって対流が活発化して降水が増加 するという Convective Invigoration の仮説[Rosenfeld et al., 2008]についてもこれを支持する衛星事例解析 [e.g., Storer et al., 2014] が報告されている一方, "バッ ファリング機構"によって正味の変化は小さいとする 議論もあり,決着はついていない。

また,従来の衛星観測では見ることが難しかった 雲・降水によるエアロゾルの湿性沈着についても,エ アロゾルの主要な除去過程であることから観測的な 理解が今後望まれる。これについては,異なる周回 軌道の衛星観測を巧みに複合することによって,対 流性擾乱の通過前後でのエアロゾル鉛直分布の変 化を統計的に調べた研究もあり[Sauter & L'Ecuyer, 2017; Sauter et al., 2019],衛星観測の高度な解析に よってプロセス理解の新たな可能性が開かれることを 示唆している。

エアロゾルー雲相互作用に関するこれらの未解明 な側面をその支配メカニズムも含めて調べるために は、エアロゾルから雲・弱い降水を経て強い降水に至 る一連の過程を切れ目なく捉える衛星観測情報が今 後必要となる。日欧合同で 2023 年に打ち上げ予定 の EarthCARE 衛星に搭載されるドップラー雲レーダ や高スペクトル分解ライダは,対流・雲微物理・エアロ ゾル種別に関する新しい観測情報をもたらすと期待 されている[Illingworth et al., 2015]。また米国では, 国立アカデミーによる衛星地球観測に関する Decadal Survey 報告書 [National Academies of Sciences, Engineering and Medicine, 2018]の勧告に 基づいて、2030年頃の打上げを目指して Atmosphere Observing System (AOS) ミッションの検 討が NASA で進められており,雲レーダ・降水レー ダ・ライダの同時搭載によってエアロゾル・雲・対流・ 降水をシームレスに観測することがひとつの目玉に 位置づけられている。これらの新しい衛星観測情報 によって,エアロゾルへの雲応答を複雑なものにして いる微物理過程と力学過程の相互作用が解明され ていくことが期待される。

#### 3.2.2 GCM によるエアロゾルー雲相互作用研究の現 状と展望

大循環気候モデル (General Circulation Model; GCM)によるエアロゾルー雲相互作用研究の主な動 機は,エアロゾルが雲との相互作用を介して気候系 に与える放射強制力を定量化して,気候変化の将来 予測に役立てることである。これは,産業革命以来の 全球平均気温の上昇を定量的に説明するために, 気候系に対する冷源として人為起源エアロゾルによ る負の放射強制力を考える必要があったことに端を 発する[Mitchell et al., 1995]。当初はエアロゾルー放 射相互作用がその主要因と考えられたが,現在では エアロゾルー放射相互作用とエアロゾルー雲相互作 用の和による負の放射強制力がこの冷源と理解され ている。

エアロゾルー雲相互作用が負の放射強制力を生 み出すメカニズムとして、エアロゾル増加による CCN の増加が雲粒半径を縮めて,これが降雨生成の抑制 による雲水の増加などを通じて雲のアルベドを高める 効果[Twomey, 1974; Albrecht, 1989]が 1990 年代から 各国の GCM に導入され始めた。これらのモデル結 果は,前節で述べたように並行して発展してきた衛星 観測によるエアロゾルー雲相互作用の定量的解析と 比較されてきた[e.g., Lohmann & Lesins, 2002; Suzuki et al., 2004; Quaas et al., 2004]。これらの比較研究は, 衛星観測で得られたエアロゾルと雲の相関関係を雲 物理的に解釈するのに役立つとともに, エアロゾルー 雲相互作用のモデル表現に系統的なバイアスがある ことも明らかにした。すなわち、GCM はエアロゾルに よる雲水の増加を過大評価する傾向があること [Quaas et al., 2009; Michibata et al., 2016], そのひと つの要因としてエアロゾル増加に対する降雨抑制の 感度が過大であること[Wang et al., 2012], その背景 にあるモデルバイアスとして GCM では降雨生成が現 実よりも早すぎること[Stephens et al., 2010; Suzuki et al., 2013b, 2015; Jing et al., 2017]などが見出された。

GCM と衛星観測との比較は,近年ではこのような モデルの評価からさらに一歩進んで,モデルの雲・ 降水過程の表現を観測的に拘束する段階に入りつ つある。このアプローチでは,能動型・受動型を含む 複数センサを適切に組み合わせた衛星解析によって 雲・降水素過程のシグナルを観測パラメータ間の統 計的関係として診断する。その上で、その観測情報 を指針としてモデル当該過程のパラメータ化に含ま れる不確実性を軽減し、さらにはその定式化そのも のを拘束する[e.g., Suzuki et al., 2015]。これによって、 従来の大循環気候モデリングでチューニングの対象 とされてきた不確実な雲物理パラメータの拘束が可 能となったが、この拘束条件はエアロゾルー雲相互 作用による放射強制力を大きく変化させ、20世紀の 全球平均気温変化の再現性を損なわせるだけの影 響を持つことが同時に明らかとなった[Suzuki et al., 2013b; Jing et al., 2019]。

このことは GCM に誤差補償が内在していることを 示唆しており、その要因の一端はモデルが現実の雲 物理過程を表現する自由度が限られていることに求 められる。すなわち、現在気候において観測される平 均的な大気状態を再現するモデル物理のパラメータ 設定には複数通りの可能性があるが、限られた自由 度内でのそのような設定の違いは、エアロゾル放出 量変化に対する雲・降水の応答に違いをもたらす結 果、エアロゾルー雲相互作用の放射強制力に顕著な 違いを生む[Mulmenstadt et al., 2020]。このことは、平 均的な大気状態だけでなく、エアロゾルー雲相互作 用に関わる物理過程のモデル表現を観測的に拘束・ 高度化する必要性を改めて示唆している。

そこで、従来のGCMでは診断変数として簡略化さ れて扱われてきた降水を予報変数として扱う「予報型 降水スキーム」が近年開発され、GCM に導入され始 めている[Posselt & Lohmann, 2009; Gettelman & Morrison, 2015; Michibata et al., 2019]。このように雲・ 降水過程のモデル表現の自由度が増えることで、降 雨過程の表現とエアロゾルー雲相互作用による放射 強制力の現実的な幅を両立でき、従来モデルに見ら れた誤差補償が軽減される兆しも報告されている [Michibata & Suzuki, 2020]。

今後のGCM研究では, 雲の粒子成長やその帰結 である降水生成などの雲物理過程や, それらの大気 力学やエアロゾルとの相互作用の表現を衛星観測と の緊密な連携によってさらに高度化し,前節で述べ た衛星解析による雲・降水素過程の観測的理解を GCM に順次適切に組み込んでいくことがまず重要 である。その上で,そのような観測情報に基づくモデ ル素過程の高度化がエアロゾルー雲相互作用による 放射強制力へ与える影響を定量的に評価し,エアロ ゾル・雲・降水の粒子に関わるミクロな物理がエネル ギー収支のマクロな物理にどのように関係しているか を様々な感度実験によって理解していくことが有効で ある。

この方向性においてまず理解が求められるのは, 氷を含む混合相雲へのエアロゾルの影響とそれによ る放射影響[Heyn et al., 2017]や, GCM では基本的 に表現されてこなかった対流雲とエアロゾルの相互 作用である。前述の「予報型降水スキーム」では従来 モデルで無視されてきた降雪の温室効果も考慮され るようになり,衛星観測に比べて過大評価であった雲 水応答やそれに伴う負の放射強制力が顕著に緩和 されることも報告されている[Michibata et al., 2020]。 氷相に関するエアロゾルー雲相互作用の理解が進 むことで,放射強制力の定量的評価は大きく更新さ れる可能性がある。

また、従来のエアロゾルー雲相互作用の気候研究 であまり注目されてこなかった、湿性沈着を通じた 雲・降水によるエアロゾル質量収支への影響も重要 である。上述のモデル雲物理とエネルギー収支の間 の誤差補償は、部分的には湿性沈着を介したフィー ドバックにも起因している。すなわち、モデルの降雨 生成プロセスを衛星観測の情報で拘束した結果、湿 性沈着が変わり、それを通じてエアロゾル放出量変 化に対する雲・降水の気候応答が顕著に増幅したと 考えられる[Jing & Suzuki, 2018]。現在の GCM で不 確実性の大きい湿性沈着のモデル表現を、前節の 衛星観測との高度な比較によって評価・拘束していく ことが望まれる。

述べてきたような大循環気候モデリングは、ミクロな 粒子とマクロな気候の関係性を理解し、将来予測へ 役立てるための理論ツールとして有用である一方, 伝統的に水平格子サイズが粗いために雲を直接解 像できないという根源的な困難を抱え続けている。こ れを乗り越えるために,これまで GCM に高解像度の 雲解像モデルを埋め込んで計算を行う Super parameterization [*Grabowski & Smolarkiewicz*, 1999; *Khairoutdinov & Randall*, 2001; *Randall et al.*, 2003] や Multiscale Modeling Framework (MMF [*Wang et al.*, 2011])といった手法が提案されてきたが,これら の手法は高解像モデルの境界条件が全球モデルに よって制約されるため,エアロゾルー雲相互作用によ る大気へのフィードバックを十分に取り込むことがで きない。

そこで、全球を網羅して雲を直接解像した数値モ デル(全球雲解像モデル; Global Cloud Resolving Model; GCRM)を用いた数値実験が日本のグルー プを中心に行われてきた。次節以降ではこれらの研 究を紹介するとともに、今後の 10 年における高解像 モデルを用いたエアロゾルー雲相互作用研究の見 通しを述べる。

#### 3.2.3 GCRM によるエアロゾルー雲相互作用研究の 現状と展望

GCRM の名前に含まれる「雲解像」という言葉は、 雲を直接解像するという意味であり、雲を格子で直接 表現(解像)できるモデルという文脈で使われることが ある。しかし、より厳密に言えば、「雲解像」という言葉 は、「気象場との相互作用をより原理的に解く雲微物 理モデルによって雲を表現している」という意味で用 いられてきた。GCRM を用いたエアロゾルー雲相互 作用研究は、日本の研究コミュニティによって開発さ れた全球非静力学大気モデル Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model (NICAM) [Satoh et al., 2014; Tomita et al., 2005]とエアロゾル化学輸送モ デル Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS) [Takemura et al., 2005]を結合 した NICAM-SPRINTARS モデルによって行われて きた。このような非静力学モデルによる数値実験の強 みが活きるのは,静力学平衡が成り立たないような小 さい空間スケールの現象の再現であり,高い空間解 像度での計算を必要とする。日本のコミュニティは地 球シミュレータ,京,富岳といった歴代の世界最高性 能の大型計算機を利用できる強みを活かし,エアロ ゾルー雲相互作用研究を実施してきた。

NICAM-SPRINTARS を用いた全球高解像度計算 は地球シミュレータ上で Suzuki et al.[2008]によって初 めて実施され、その後 2012 年に運用を開始したスー パーコンピュータ「京」でも実施された。Suzuki et al.[2008]では 7km 解像度で 8 日間の計算が実施さ れたが、Sato et al.[2016]は3.5 km 解像度で14日間、 Goto et al.[2020]は14 km 解像度で3 年間の計算を 行なった。これらの雲を解像した計算では、中緯度か ら北極に輸送される BC の量が増加し、GCM に見ら れる北極域における BC の過小評価の改善につなが る可能性を示した(図 5a-c)。また、Sato et al.[2018]は 14 km 解像度での1 年間の計算を解析し、エアロゾ

ルが増加した際に、エアロゾルー雲相互作用によっ て雲水量は単調に増えるだけでなく、領域ごとの増 減傾向について衛星観測に類似した多様性を再現 することに成功した(図 5d-f)。この結果は, エアロゾ ルが増加した際にエアロゾルー雲相互作用によって 雲水量が増えるという GCM の前提となっている定説 [Albrecht, 1989]に再考を促すものであり、この結果の 発表をきっかけに世界的に議論が巻き起こり現在も 議論が続いている[Bellouin et al., 2020]。このような雲 解像モデルによる成果は,雲解像の根幹である「雲 の効果を雲微物理モデルによって計算する」ことによ ってもたらされてきたと考えることができる。すなわち, GCMの経験的なパラメタリゼーションでは表現できな いエアロゾルの変動に対する雲の応答を, 雲微物理 モデルと気象場の相互作用をより原理的に解くことで 表現できるようになったことが, 主たる要因であるとい える(例えば前述の Sato et al. [2018]ではエアロゾル が変化した時の蒸発プロセスの応答が雲微物理モデ ルによって表現できるようになったと考察している)。



図 5 (a-c)NICAM による計算と観測によって得られた北極域の BC の 1 ヶ月平均濃度の季節変化。(a), (b), (c)はそれぞれ Alert, Zeppelin, Utqiagivk における結果を表し, 黒線は観測, 黄色, 緑線は水平解像度が 14 km, 56 km の雲解像モデル(雲 微物理モデルを利用した計算)の結果, 青線と水色線は, NICAM で GCM と同じスキーム(雲微物理モデルを利用しない計 算)を用いて, 水平解像度 56 km, 220 km で計算した結果を表す[*Goto et al*, 2020]。元論文の縦軸のラベルの表記に誤りが あったため, 著者の了承を得てラベルを修正している。(d-f)エアロゾルが増加した際に雲が増えるか減るかの指標 (Susceptibility)の全球分布。(d), (e), (f)はそれぞれ, A-Train, NICAM, GCM(MIROC)から推定された Susceptibility である [*Sato et al*, 2018]。

このように、この 10 年ほどで、全球雲解像モデルと 大型計算機を用いた高解像度計算によってエアロゾ ルー雲相互作用に関する新たな知見が生まれており、 雲を解像できない GCM が抱える不確実性の原因を 明らかにすることに貢献してきた。これは世界最高性 能を持つ大型計算機を気候科学の分野が利用でき る日本の強みを示している。

これらの研究成果を受け、この 10 年で海外でも全 球規模の雲解像モデルの開発が進んでいる。例え ば、米国では Model for Prediction Across Scales (MPAS, *Skamarock et al.*, [2012]),ドイツでは ICOsahedral Nonhydrostatic (ICON, [*Zängl et al.*, 2015; *Giorgetta et al.*, 2018])といったモデルが全球 規模の雲解像モデルとして開発されており、最近で はこれらの GCRM の相互比較も行われている [*Stevens et al.*, 2019]。これらのモデルによって、次の 10年の間にはNICAM-SPRINTARSと同様の計算が 可能になると思われ、GCRM を用いたアプローチは 現在の GCM を中心としたものに取って替わり、エア ロゾルー雲相互作用研究の主流になると考えられる。

このようなモデリングのシフトに伴って、GCM に対 してこれまで行われてきたのと同様に、GCRM につ いても衛星観測によるエアロゾルー雲相互作用のプ ロセス表現の評価や拘束が今後盛んに行われていく ことが予想される。NICAM-SPRINTARS ではそのよう なモデル評価も早い段階で行われ、雲による降雨の 生成が GCM と同様に早すぎることやそのエアロゾル ー雲相互作用への影響が報告されている[Suzuki et al., 2011; 2013a]。これらの結果から、エアロゾルー雲 相互作用の要である雲・降水過程のモデル表現は解 像度だけでは解決しない問題であり、より根源的な素 過程レベルでのモデル高度化を GCRM でも行なっ ていく必要性が示唆される。

GCRM のさらなる高度化においても、日本の優位 性を活かしていくことが重要である。日本の研究コミュ ニティでは、2021 年に運用を開始した富岳において も、全球雲解像モデルを用いた研究が推進されてお り, 次の 10 年においても, 当面の間は, この全球雲 解像モデルと大型計算機を用いた大規模数値実験 やそれらに基づくモデル高度化は日本の強みとなる と考えられる。

富岳を用いて可能になることとして,具体的には, 京では計算資源の制約から実施することが困難であ った更なる高解像度での計算や長期間の積分が一 つのターゲットになるであろう。NICAM は前述のよう に,気象場との相互作用をより原理的に解く雲微物 理モデルによって雲を表現している点において雲解 像モデルであると認識されている。「雲解像」という言 葉はこの「雲の効果を雲微物理によって表現する」と いう意味で用いられてきた。この 10 年で得られた全 球雲解像モデルによる成果はこの点の強みを反映し たものである。

一方「雲解像」という言葉は「雲を直接表現できる 空間解像度での実験」という意味で捉えられることも 多い。その点では、実際には NICAM の空間解像度 より小さい空間スケールを持つ雲が地球上の多くを 占め、その意味では完全な雲解像モデルとは呼べな い。そのため、これまでエアロゾルを含む形では実施 されたことのない 1 km 前後の空間解像度での数値 実験の実施や、空間解像度は少し下がるものの、数 十年にわたる長期の積分とそれを用いた気候研究が 次のターゲットになる。

雲解像モデルは雲を微物理モデルによって陽に 表現しているため,気候変化時の雲の応答に関して も経験則ではなく,より原理的な物理法則に基づい た計算が可能になる。これによって,雲の表現に起 因するエアロゾルー雲相互作用の不確実性の改善 が期待される。

しかしながら、気候研究として全球雲解像モデル を使って過去の気候状態の再現をするためには、数 多くの実験とモデルの改良が必要になる。GCM は長 い歴史の中でこのような改良を重ねて現在の気候研 究の基本ツールとなった。日本においては全球雲解 像モデルを用いた数値実験で世界をリードしてきて おり、雲解像モデルを用いた気候研究を実施するための土壌がある。そこで、雲解像モデルを用いた気候実験を世界に先駆けて実施できれば次の10年が経過した後もエアロゾルー雲相互作用の研究分野で世界をリードできる可能性がある。

GCRM の強みはさらに, エアロゾルー雲相互作用 のもう一つの大きなテーマであるエアロゾルの INP と しての効果の研究にも活かされる。INP の効果は GCM では不確実性の大きいパラメータ化に依存して 調べられているが, GCRM では雲を解像することでよ り原理的な物理法則に基づいた形で INP の効果を 表現できるため, その気候影響の評価にも GCRM は 強みを発揮することが期待される。全球雲解像モデ ルを用いた INP の気候影響評価も次の 10 年で取り 組むべき課題である。

#### 3.2.4 さらなる高解像モデルによるエアロゾルー雲相 互作用実験

述べてきたように、この 10 年で最先端の全球モデ ルは GCM から雲解像モデルにシフトしつつあるが、 これよりもう一回り高解像度なモデルとしてラージ・ エディー・シミュレーション(Large Eddy Simulation; LES)モデルがある。LES モデルを用いたエアロゾ ルー雲相互作用研究も数多く行われており(例えば、 [*Yamaguchi et al.*, 2017]), 雲の詳細な構造を再現 できることによってエアロゾルー雲相互作用のプロ セス理解に大きな貢献をしてきた。しかし、計算機 能力の制限によって、現時点では限定的な領域で しか計算が行われていない。

過去 10 年で GCM から雲解像モデルにシフトして きたように, 次の 10 年では LES を用いた全球実験 が可能になると見込まれている[Satoh et al., 2019]。 このような全球 LES モデルを用いたエアロゾルー雲 相互作用の研究はエアロゾルー雲相互作用の理解 を深化させることに寄与すると考えられるため, 今後 全球 LES モデルの開発に取り組んでいる機関とも 連携し, GCRM からシームレスに繋がる形で全球 LES モデルでのエアロゾルー雲相互作用研究をい ち早く進めることも重要である。

#### 3.2.5 まとめ

エアロゾルー雲相互作用の研究は,衛星観測・大 循環気候モデル・全球雲解像モデルの各アプローチ について着目すべき進展が見られる。今後はその 各々について, 述べてきたような目指すべき方向性 があるが、それに加えて、これら3 つのアプローチを 横断的に結びつけてエアロゾルー雲相互作用の気 候影響の理解を全体として加速させていくことが重要 である。衛星観測とモデルの連携においては、 与え られた衛星観測データをモデルの評価・検証に用い る方向だけでなく、モデルの挙動を拘束し、モデルの 不確実性を低減させるためにどんな観測情報が必要 であるかを能動的に検討して,衛星データの新たな 解析手法の開発や新規の衛星観測計画の立案に役 立てる方向の研究が必要である。特に、モデルにお ける雲・降水過程の定式化(パラメータ化)を観測情 報によっていかに拘束・高度化できるかが今後の鍵 であり、そのための衛星観測そのものも従来の物理 量の推定から,物理量の複合による素過程の推定へ とシフトしていくことが想定される。すなわち,複数の 観測パラメータを適切に組み合わせた統計解析によ って,パラメータ間の関係性を決めている物理素過 程のシグナルを逆に見出した上で,対応するモデル 統計との比較によって当該過程のモデル表現を評 価・拘束するアプローチが有効であろう。モデル物理 の不確実性のうち解像度だけで解決しない部分は GCMとGCRM に共通する課題であり、 今後 10 年で 想定される前者から後者へのモデリングのシフトにお いて,より顕在化する問題であろう。これに対して,上 述した高次の観測情報を活用してアプローチしてい くことが重要である。日本は全球雲解像モデルと大型 計算機を用いたエアロゾルー雲相互作用の研究に おいて世界をリードしてきた実績があり、今後はそれ をさらに上述の衛星観測との連携で遂行していくこと

が重要になる。また LES モデルに代表されるようなさ らなる高解像度の全球モデルの開発についても,次 の 10 年で気候計算を実施することは難しいが,さら に 10 年先にも日本がエアロゾルー雲相互作用に関 連した分野で世界をリードするための次世代への投 資と位置づけて開発に取り組むことも重要である。こ れらのモデル開発では,従来のパラメータ化に替わ って,多大な計算コストを要する第1原理的な計算手 法を機械学習で模倣することで計算速度と精度を両 立させる試み[e.g., Gettelman et al., 2021]も積極的に 検討していく必要がある。

上記を考慮すると、次世代モデルの開発やそれを 使った計算を実施するにあたり、最先端の計算機は 必須のものである。そのため、富岳をはじめとした大 型計算機を用いて、気象・気候分野において成果を 上げ、その成果を研究者が広く国民に発信していく ことが重要である。それらを通して、国民に最先端の 大型計算機が国民の生活に貢献し、現代社会にお いてなくてはならないものであるという認識をしてもら うことで、国民の後押しを受けて大型計算機を用いた 研究を実施する環境を整えていくことも重要であろう。 また、2021年に共用利用を開始した富岳の設計がそ うであったように、最先端の計算機を設計する段階で は、様々な分野からモデルの仕様や新しい計算機に 要求される性能などの調査が実施される(例えば文 部科学省,2022)。このような調査に研究分野として 協力することで、新しい大型計算機を利用しやすくな ると期待される。計算機開発に関する調査研究事業 は、研究者個人の科学的な興味とは合致しないこと もあるが、気象・気候分野、大気化学分野として最先 端の計算機を使える環境を整えるという観点では、 個々の研究者が分野全体の発展に貢献するために、 積極的に取り組むことが重要であろう。

#### 4. おわりに

本稿では、大気中のエアロゾルの動態とその放 射・雲過程との相互作用について、大気化学分野の 内外の両方の視点から、現状と展望をまとめた。その 内容のサマリーを表 1 に示す。エアロゾルとその放 射・雲過程との相互作用の理解は、実験・観測と数 値モデル開発・計算が相補的に発展することによっ て急速に進展してきた。しかしその一方で、エアロゾ ルー放射・雲相互作用の放射強制力の不確定性(気 候モデル間の推定のばらつき)は依然として大きい。 本稿で述べてきたように、エアロゾルー放射・雲相互 作用の推定の信頼性を高めていくためには、観測と 数値モデル計算の両面で解決すべき課題が多く残 されており、それらの課題解決に向けた研究が必要 である。
## 表1 エアロゾル-放射・雲相互作用の研究の現状と展望のまとめ

究極のゴール	・エアロゾルの組成ごとの粒径別数濃度や総質量濃度の時空間分布を把握し、予測で
は何か。	きること。
	・個々のエアロゾル粒子ならびにその総体としての全エアロゾルの,光学特性・吸湿性・
	雲凝結核特性・氷晶核特性などの諸特性を把握・予測できること。
	・現場観測や衛星観測により検証・拘束された数値モデルを用いて,エアロゾルー放射
	相互作用やエアロゾルー雲相互作用に関わる諸過程を適切に表現し、信頼性の高い
	気候予測・環境影響予測を実現すること。
この10年での	・エアロゾルの組成や物理化学特性(吸湿性・雲凝結核特性・氷晶核特性など)を測定
世界的な動向	する技術が発展し、世界的に各種エアロゾルの室内実験・大気観測データが蓄積され
や日本での研	た。それに対応して、数値モデルにおける、エアロゾルの混合状態・吸湿性・雲凝結核
光の強み	能などの諸特性や、新粒子生成・二次有機エアロゾル生成・湿性沈着などの諸過程の
	表現が改善された。日本では特に、地理的にアジア大陸の下流に位置することを生か
	した観測やモアル研究により、エアロソルの放出・輸达・化学変化・化看等の諸適程の
	知見か畜積され、越現大気汚染の影響やエアロソルの放射強制力の推定か改善され
	(こしいる。) ・  、  、  、  、  、  、  、  、  、  、  、  、  、
	・ 阐生観測・ 八個泉 X 医て / ル・ 王 歩 会 肝像 て / ル 加 伯 丘 に 影 書 しょ かり 光 茂 し 、 エ / ロゾ ル 一 雫 相 互 作 田 の 理 敏 が 進 し で き た 御 尼 毎 測 で け 能 動 刑 セ い せ レ 色 動 刑 セ い
	ログル 会伯互下用の理解が進んてきた。衛星観測では、能動生ビンタと文動生ビン
	「今の後日村川により、二アビアルド朝に対する芸心石の観測的な生肝が進んに。 家で 宣兵かどの世界最高性能の大型計算機の活用に上り 日本け全球雪解像モデルに上ろ
	エアロゾルー 雪相互作用の研究をリードしてきた。
現在の重要な	・最新の IPCC 第6次評価報告書においても、エアロゾルー放射相互作用とエアロゾル
ギャップ	- 雲相互作用による放射強制力の推定の不確定性幅は第5次評価報告書から減少し
	ておらず,各気候モデル間の推定のばらつきは依然として大きい。これらの放射強制力
	を決めるエアロゾルの物理化学特性・時空間分布の推定も、依然としてモデル間のばら
	つきが大きい。
	・エアロゾルの時空間分布,特に極域や外洋域や対流圏上層におけるエアロゾルの動
	態の把握と数値モデルによる再現が不十分である。また,アイスコア分析に基づく過去
	のエアロゾルの動態把握や数値モデルの検証が不十分である。
	・氷晶核として働くエアロゾル(INP)の大気存在量・動態,氷晶を形成するメカニズムの
	理解が个十分である。
	・欧州と比較して、相対的にアンア、南米、アフリカ、オセアニア、シベリアの長期モニタ
	リンク観測拠品か个足している。
	・エノロノル投動に対する芸・陣小ボの応答の理解は小十万でめる。特に、小を古む芸の広気を表過担レベルで理解していくことが必要である
	・エアロゾル・雪・隆水に関わる表温程のモデル表現け観測によって十分に拘すされて
	ークログル 云 陸小に肉がる宗過祖の ビアル 私先は既例にようで「方に持来されていた」
それらを踏ま	・エアロゾルー放射相互作用とエアロゾルー雪相互作用による放射強制力の推定の不
え、今後10年	確定性幅は、現場観測や衛星観測データの蓄積、観測と数値モデルの統合、数値モ
の研究をドラ	デルの精緻化や高解像度化により減少させることができるか?
イブする key	・室内実験・観測で得られるエアロゾル過程(混合状態,有機エアロゾルの生成過程・吸
question or 作	湿特性, ブラックカーボンの変質過程, ブラウンカーボンの放出・生成過程, 新粒子生
業仮説	成など)の知見を, 適切に数値モデルに導入できるか?
	・INP の持つどのような表面構造によって,氷晶の形成が誘発されるのか?多地点にお
	ける INP の長期観測により, INP の動態を明らかにできるか?そのための新たな計測技
	術を開発できるか? INP の数濃度を数値モデルで適切に表現できるか?
	・地上リモートセンシング観測に加えて,エアロゾルの光学特性,粒径分布,雲凝結核,
	INP, 化学組成の持続可能な長期観測網を, 日本を含む東アジアで構築できるか?

	・大気汚染要因の将来変化を定量的に予測できるか?大気汚染と気候変動の両方へ
	の対策が可能となる放出シナリオの策定に貢献できるか?
	・既存のほとんどのエアロゾルモデルで十分に考慮されていない要素(氷晶核特性,鉱
	物ダストの鉱物組成,バイオエアロゾルなど)を数値モデルに導入し,その時空間分布
	や放射強制力を明らかにしていくことができるか?
	・人為起源エアロゾルだけでなく,自然起源エアロゾルの気候変化に対する応答も含
	め、より定量的かつ総合的なエアロゾルと気候との相互作用の推定・評価を実現できる
	カゝ?
	・雲レーダ・降水レーダ・ライダを同時搭載した新しい衛星観測ミッションにより,エアロゾ
	ルへの雲応答を複雑にしている微物理過程と力学過程の相互作用を解明できるか?こ
	の複合的な観測情報をどのように活用してエアロゾル・雲・降水の重要な素過程を観測
	的に診断できるか?
	・大循環気候モデル(GCM)において、氷を含む混合相雲へのエアロゾルの影響とそれ
	による放射影響や,対流雲とエアロゾルの相互作用を解明できるか?全球雲解像モデ
	ル(GCRM)により過去の気候状態を再現し、気候研究に結びつけることができるか?
	GCRM からシームレスに繋がる形で全球 LES モデルでのエアロゾルー雲相互作用研
	究をいち早く進めることができるか?
	・これらのモデルにおけるエアロゾル・雲・降水素過程の表現を衛星観測情報に基づい
	てどのように拘束・高度化できるか?
	・機械学習を活用して,モデル素過程の高精度化と高速化をどのように両立できるか?
主な連携相手	日本気象学会,日本雪氷学会,日本地球惑星科学連合,日本エアロゾル学会,
となる外部学	IGAC, ESA-JAXA EarthCARE 衛星ミッション, NASA AOS 衛星ミッション
術研究団体と	
国内外研究プ	
ロジェクト等	

## 5. 参考文献

- Ackerman, T. P. & O. B. Toon (1981), Absorption of visible radiation in atmosphere containing mixtures of absorbing and nonabsorbing particles, *Appl. Opt.*, 20, 3661–3668.
- Aikawa, M. et al. (2010), Significant geographic gradients in particulate sulfate over Japan determined from multiple-site measurements and a chemical transport model: Impacts of transboundary pollution from the Asian continent, *Atmos. Environ.*, 44. 381-391,

doi:10.1016/j.atmosenv.2019.10.025.

- Albrecht, B. A. (1989), Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science*, *245*(4923), 1227–1230.
- Allen, R. J., S. C. Sherwood, J. R. Norris & C. S. Zender (2012), Recent Northern Hemisphere tropical expansion primarily driven by black carbon and tropospheric ozone, *Nature*, 485, 350–354. doi:10.1038/nature11097

- AMAP, (2021), Impacts of Short-lived Climate Forcers on Arctic Climate, Air Quality, and Human Health. Summary for Policy-makers. Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), Tromsø, Norway. 20 pp
- Andreae, M. O. & A. Gelencsér (2006), Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3131–3148, doi:10.5194/acp-6-3131-2006.
- 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. Atmos., 116, D11114, doi:10.1029/2010JD015507.
- Aoki, T., S. Matoba, J. Uetake, N. Takeuchi & H. Motoyama (2014), 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.

- 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(2), 169-191.
- Arienzo, M. M. et al. (2017), Holocene black carbon in Antarctica paralleled Southern Hemisphere climate. J. Geophys. Res. Atmos, 122, 6713–6728, doi:10.1002/2017JD026599.
- Atkinson, J. D., et al. (2013), The importance of feldspar for ice nucleation by mineral dust inmixed-phase clouds, *Nature*, 498, 355-358, doi:10.1038/nature12278.
- Bedidi, A. & B. Cervelle (1993), Light scattering by spherical particles with hematite and goethite like optical properties: effect of water impregnation. *J. Geophys. Res.*, 98, 11941–11952, doi:10.1029/93jb00188.
- Bellouin, N. et al. (2020), Bounding Global Aerosol Radiative Forcing of Climate Change. *Rev. Geophys.* 58(1), doi:10.1029/2019RG000660
- Bian, H., et al. (2017), Investigation of global particulate nitrate from the AeroCom phase III experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 12911-12940, doi:10.5194/acp-17-12911-2017.
- Bianchi, F., et al., (2016), New particle formation in the free troposphere: A question of chemistry and timing, *Science*, 352 (6289), 1109-1112, doi:10.1126/science.aad5456.
- Bond, T. C. & R. W. Bergstrom (2006), Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review, *Aerosol Sci. Technol.* 40, 27–67, doi:10.1080/02786820500421521
- Bond, T. C., G. Habib and R. W. Bergstrom (2006), Limitations in the enhancement of visible light absorption due to mixing state, *J. Geophys. Res.*, 111, D20211, doi:10.1029/2006JD007315.
- Bond, T. C. et al. (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, J. Geophys. Res. Atmos., 118, 1–173. doi:10.1002/jgrd.50171.
- Boucher, O. et al. (2013), Clouds and Aerosols. In T. F. Stocker,D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. Allen, J. Boschung,

et al. (Eds.), Climate Change 2013 - The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the FifthAssessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (pp. 571–658). Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press.

- Box, J. E., et al. (2012), Greenland ice sheet albedo feedback: thermodynamics and atmospheric drivers, The Cryosphere, 6, 821–839, https://doi.org/10.5194/tc-6-821-2012.
- Breon, F.-M., D. Tanre & S. Generoso (2002), Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite. *Science*, 295, 834-838, doi:10.1126/science.1066434.
- Burgos, M. A., et al. (2020), A global model-measurement evaluation of particle light scattering coefficients at elevated relative humidity, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 10231-10258, doi:10.5194/acp-20-10231-2020.
- Cappa, C. D. et al. (2012), Radiative absorption enhancements due to the mixing state of atmospheric black carbon, *Science*, 337, 1078–1081, doi:10.1126/science.1223447.
- Cappa, C. D. et al. (2019), Light absorption by ambient black and brown carbon and its dependence on black carbon coating state for two california, USA, cities in winter and summer, J. Geophys. Res. Atmos., 124, 1550–1577, doi:10.1029/2018jd029501.
- Carlsen, T. & R. O David (2022), Spaceborne evidence that icenucleating particles influence high-latitude cloud phase, *Geophys. Res. Lett.*, 49, e2022GL098041.
- Carslaw, K. S., et al. (2013), Large contribution of natural aerosols to uncertainty in indirect forcing, *Nature*, 503, 67-71, doi:10.1038/nature12674.
- Cavalli, F., M. Viana, K. E. Yttri, J. Genber & J.-P. Putaud (2010), Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 79–89, doi:10.5194/amt-3-79-2010.
- Charlson, R. J. et al. (1992), Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science*, 255, 423-430.

- Chen, Q., F. Ikemori & M. Mochida (2016), Light absorption and excitation-emission fluorescence of urban organic aerosol components and their relationship to chemical structure, *Environ. Sci. Technol.*, 50, 10859–10868, doi:10.1021/acs.est.6b02541.
- Chen, Y. & T. C. Bond (2010), Light absorption by organic carbon from wood combustion, *Atmos. Chem. Phys.* 10, 1773–1787.
- Chen, Y.-C., M. W. Christensen, G. L. Stephens & J. H. Seinfeld (2014), Satellite-based estimate of global aerosol-cloud radiative forcing by marine warm clouds. *Nat. Geosci.*, 7, 643-646.
- Chow, J. C. et al. (2004), Equivalence of elemental carbon by thermal/optical reflectance and transmittance with different temperature protocols. *Environ. Sci. Technol.*, 38, 4414– 4422, doi:10.1021/es034936u.
- Chow, J. C. et al. (2007), The IMPROVE_A temperature protocol for thermal/optical carbon analysis: Maintaining consistency with a long-term database. J. Air Waste Manage. 57(9), 1014–1023, doi:10.3155/1047-3289.57.9.1014.
- Christensen, M. W., K. Suzuki, B. Zambri & G. L. Stephens (2014), Ship track observations of a reduced shortwave aerosol indirect effect in mixed-phase clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 41, 6970-6977, doi:10.1002/2014GL061320.
- Christensen, M. W. et al. (2021), Opportunistic experiments to constrain aerosol effective radiative forcing. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* [preprint], doi:/10.5194/acp-2021-559, in review.
- Coakley, J. A., R. L. Bernstein, P. A. Durkee (1987), Effect of ship-stack effluents on cloud reflectivity. *Science*, 237, 1020-1022, doi:10.1126/science.237.4818.1020.
- Coen, C. et al. (2020), Multidecadal trend analysis of in situ aerosol radiative properties around the world, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 8867–8908, doi.org/10.5194/acp-20-8867-2020.
- Colarco, P. R. et al. (2014), Impact of radiatively interactive dust aerosols in the NASA GEOS-5 climate model: Sensitivity

to dust particle shape and refractive index, *J. Geophys. Res., Atmos.*, 119, 753–786, doi:10.1002/2013JD020046.

- Collins, W. J., et al. (2017), AerChemMIP: Quantifying the effects of chemistry and aerosols in CMIP6. Geoscientific Model Development, 10(2), 585–607. doi:10.5194/gmd-10-585-2017.
- Conover, J. H. (1966), Anomalous cloud lines. J. Atmos. Sci., 23, 778-785.
- Creamean, J. M. et al. (2022), Annual cycle observations of aerosols capable of ice formation in central Arctic clouds, *Nat. Commun.*, 13, 3537.
- Corbin, J. C. et al. (2019), Infrared-absorbing carbonaceous tar can dominate light absorption by marine-engine exhaust, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 2:12, doi:10.1038/s41612-019-0069-5.
- DeMott, P. J. et al. (2003), African dust aerosols as atmospheric ice nuclei, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 1732.
- DeMott, P. J. et al. (2010), Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 107, 11217-11222, doi:10.1073/pnas.0910818107.
- DeMott, P. J. et al. (2015), Integrating laboratory and field data to quantify the immersion freezing ice nucleation activity of mineral dust particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 393-409.
- DeMott, P. J. et al. (2017), Comparative measurements of ambient atmospheric concentrations of ice nucleating particles using multiple immersion freezing methods and a continuous flow diffusion chamber, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 11227-11245.
- DeMott, P. J. et al. (2018), The Fifth InternationalWorkshop on Ice Nucleation phase 2 (FIN-02): Laboratory intercomparison of ice nucleation measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 6231-6257.
- Di Biagio et al. (2019), Complex refractive indices and singlescattering albedo of global dust aerosols in the shortwave spectrum and relationship to size and iron content, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 15503–15531, doi:10.5194/acp-19-

15503-2019.

- Diner, D. J. et al. (2018), Advances in multiangle satellite remote sensing of speciated airborne particulate matter and association with adverse health effects: from MISR to MAIA, J. Appl. Remote Sens., 12, 042603, doi:10.1117/1.JRS.12.042603.
- Donahue, N. M., A. L. Robinson, C. O. Stanier & S. N. Pandis (2006), Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics, *Environ. Sci. Technol.*, 40, 2635-2643, doi:10.1021/es052297c.
- Dutkiewicz, V. A. et al. (2014), Forty-seven years of weekly atmospheric black carbon measurements in the Finnish Arctic: Decrease in black carbon with declining emissions, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 7667–7683, doi:10.1002/2014JD021790.
- Eguchi, K. et al. (2011), Modulation of cloud droplets and radiation over the north Pacific by sulfate aerosol erupted from mount Kilauea. *SOLA*, 7, 077-080, doi:10.2151/sola.2011-020.
- Ervens, B., B. J. Turpin & R. J. Weber (2011), Secondary organic aerosol formation in cloud droplets and aqueous particles (aqSOA): a review of laboratory, field and model studies, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 11069–11102, doi:10.5194/acp-11-11069-2011.
- Eyring, V. et al. (2016), Overview of the Coupled Model Intercomparison Project Phase 6 (CMIP6) experimental design and organization. *Geosci. Model Dev.*, 9, 1937–1958. doi:/10.5194/gmd-9-1937-2016
- Fanourgakis, G. S. et al. (2019), Evaluation of global simulations of aerosol particle and cloud condensation nuclei number, with implications for cloud droplet formation, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 8591-8617, doi:10.5194/acp-19-8591-2019.
- Feng, Y., V. Ramanathan & V. R. Kotamarthi (2013), Brown carbon: a significant atmospheric absorber of solar radiation?, *Atmos. Chem.*, *Phys.*, 13, 8607-8621, doi:10.5194/acp-13-8607-2013.
- Forster, P. T. et al. (2021), The Earth's Energy Budget, Climate

Feedbacks, and Climate Sensitivity. In Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, V., et al. (eds.)]. Cambridge University Press. In Press.

- Freedman, M. A. (2017), Phase separation in organic aerosol. Chem. Soc. Rev., 46, 7694–7705, doi.org/10.1039/C6CS00783J.
- Gao, R. S. et al. (2007), A novel method for estimating lightscattering properties of soot aerosols using a modified single-particle soot photometer. *Aerosol Sci. Tech.*, 41, 125–135. doi:10.1080/02786820601118398.
- Gen, M., et al. (2019), Electrospray surface-enhanced Raman spectroscopy (ES-SERS) for studying organic coatings of atmospheric aerosol particles. *Aerosol. Sci. Tech.*, 53(7), 760-770, doi.org/10.1080/02786826.2019.1597964.
- Gettelman, A. & H. Morrison (2015), Advanced two-moment bulk microphysics for global models. Part I: Tests and comparison with other schemes. J. Climate, 28, 1268-1287, doi:10.1175/JCLI-D-14-00102.1.
- Gettelman, A. et al. (2021), Machine learning the warm rain process. J. Adv. in Model. Earth Sys., 13, e2020MS002268, doi:10.1029/2020MS002268.
- Giorgetta, M. A. et al. (2018), ICON-A, the Atmosphere Component of the ICON Earth System Model: I. Model Description. J. Adv. in Model. Earth Sys., 10(7), 1613– 1637.
- Gliß, J. et al. (2021), AeroCom phase III multi-model evaluation of the aerosol life cycle and optical properties using groundand space-based remote sensing as well as surface in situ observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 87–128, doi:10.5194/acp-21-87-2021.
- Go, S. et al. (2022), Inferring iron-oxide species content in atmospheric mineral dust from DSCOVR EPIC observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 1395–1423, doi:10.5194/acp-22-1395-2022.

- Gordon, H. et al. (2016), Reduced anthropogenic aerosol radiative forcing caused by biogenic new particle formation, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 113, 12053-12058, doi:10.1073/pnas.1602360113.
- Gordon, H. et al. (2017), Causes and importance of new particle formation in the present-day and preindustrial atmospheres, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 122, 8739-8760, doi:10.1002/2017JD026844.
- Goto, D. et al. (2020), Global aerosol simulations using NICAM.16 on a 14 km grid spacing for a climate study: improved and remaining issues relative to a lowerresolution model. *Geosci. Model Dev.*, 13(8), 3731–3768.
- Grabowski, W. W. & P. K. Smolarkiewicz (1999), CRCP: A Cloud Resolving Convection Parameterization for modeling the tropical convecting atmosphere. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, 133(1–4), 171–178.
- Green, R. O. et al. (2020), The Earth Surface Mineral Dust Source Investigation: An Earth Science Imaging Spectroscopy Mission, 2020 IEEE Aerospace Conference, 1–15, doi:10.1109/AERO47225.2020.9172731.
- Hadley, O. L. & T. W. Kirchstetter (2012), Black-carbon reduction of snow albedo. *Nat. Clim. Change*, 2, 437–440, doi:10.1038/nclimate1433.
- Han, Q., W. B. Rossow & A. A. Lacis (1994), Near-global survey of effective droplet radii in liquid water clouds using ISCCP data. J. Climate, 7, 465-497.
- Hara, K. et al. (2021), Characterization of aerosol number size distributions and their effect on cloud properties at Syowa Station, Antarctica, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 12155–12172, doi.org/10.5194/acp-21-12155-2021.
- Hattori, S. et al. (2021), Isotopic evidence for acidity-driven enhancement of sulfate formation after SO2 emission control, *Sci. Adv.* 7, 19, eabd4610, doi:/10.1126/sciadv.abd4610.
- Hess, M., P. Koepke & I. Schult (1998), Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 79, 831–844, doi:10.1175/ 1520-

0477(1998)079<0831:OPOAAC > 2.0.CO;2.

- Heyn, I. et al. (2017), Assessment of simulated aerosol effective radiative forcings in the terrestrial spectrum. *Geophys. Res. Lett.*, 44, 1001-1007, doi:10.1002/2016GL071975.
- Higurashi, A. & T. Nakajima (1999), Development of a twochannel aerosol retrieval algorithm on a global scale using NOAA AVHRR. J. Atmos. Sci., 56, 924-941.
- Hodzic, A. et al. (2020), Characterization of organic aerosol across the global remote troposphere: a comparison of ATom measurements and global chemistry models, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 4607-4635, doi:10.5194/acp-20-4607-2020.
- Hoesly, R. M. et al. (2018), Historical (1750–2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the Community Emissions Data System (CEDS). *Geosci. Model Dev.*, 11, 369–408, doi:10.5194/gmd-11-369-2018.
- Holben, B. N. et al. (2001), An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol optical depth from AERONET. J. Geophys. Res., 106(D11), 12067– 12097. doi:/10.1029/2001jd900014
- Holden, M. A. et al. (2019), High-speed imaging of ice nucleation in water proves the existence of active sites, *Sci. Adv.*, 5, eaav4316.
- Holden, M. A., J. M. Campbella, F. C. Meldrum, B. J. Murray, & H. K. Christenson (2021), Active sites for ice nucleation differ depending on nucleation mode, *Proc. Natl Acad. Sci.* USA, 118, e2022859118.
- Hoose, C., J. E. Kristjánsson & S. M. Burrows (2010), How important is biological ice nucleation in clouds on a global scale?, *Environ. Res. Lett.*, 5, 024009, doi:10.1088/1748-9326/5/2/024009.
- Huang, J. et al. (2014), Climate effects of dust aerosols over East Asian arid and semiarid regions. J. Geophys. Res. Atmos., 119, 11398-11416, doi:10.1002/2014JD021796.
- Huang, S. et al. (2021), Overview of biological ice nucleating particles in the atmosphere, *Environ. Int.*, 146, 106197.

- Huebert, B. J. et al. (2003), An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, J. Geophys. Res., 108(D23), 8633, doi:10.1029/2003JD003550.
- Huffman D. R. & J. L. Stapp (1973), Interstellar dust and related topics, J. M. Greenberg & H. C. Van de Hulst, eds. *Reidel, Boston*, 297–301.
- Huffman, J. A. et al. (2013), High concentrations of biological aerosol particles and ice nuclei during and after rain, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 6151-6164.
- Huneeus, N. et al. (2011), Global dust model intercomparison in AeroCom phase I, Atmos. Chem. Phys., 11, 7781-7816, doi:10.5194/acp-11-7781-2011.
- Husar, R. B., J. M. Prospero & L. L. Stowe (1997), Characterization of tropospheric aerosols over the oceans with the NOAA advanced very high resolution radiometer optical thickness operational product. *J. Geophys. Res.*, 102, 16889-16909.
- 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, doi:/10.1002/2017JD026733.
- Ikeda, K. & H. Tanimoto (2015), Exceedances of air quality standard level of PM_{2.5} in Japan caused by Siberian wildfires, *Env. Res. Lett.*, 10, 105001, doi: 10.1088/1748-9326/10/10/105001.
- Illingworth, A. et al. (2015), The EarthCARE satellite: The next step forward in global measurements of clouds, aerosols, precipitation and radiation. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 1311-1332, doi:10.1175/BAMS-D-12-00227.1.
- Inoue, J., Y. Tobo, F. Taketani & K. Sato (2021), Oceanic supply of ice-nucleating particles and its effect on ice cloud formation: A case study in the Arctic Ocean during a coldair outbreak in early winter, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL094646.
- Isono, K., M. Komabayashi & A. Ono (1959), The nature and the origin of ice nuclei in the Atmosphere, J. Meteorol. Soc.

Jpn., 37, 211-233.

- Isono, K. & T. Tanaka (1966), Sudden increase of ice nucleus concentration associated with thunderstorm, J. Meteorol. Soc. Jpn., 44, 255-259.
- Itahashi et al. (2018), A 15-year record (2001-2015) of the ratio of nitrate to non-sea-salt sulfate in precipitation over East Asia, Atmos. Chem. Phys., 18. 2835-2852, doi:10.5194/acp-18-2835-2018.
- 板橋秀一,王哲,弓本桂也,鵜野伊津志 (2020),COVID-19 に対する中国のロックダウン期間における PM_{2.5}越境 輸送の変容,大気環境学会誌,55,239-247.
- Ito, A., G. Lin & J. E. Penner (2018), Radiative forcing by lightabsorbing aerosols of pyrogenetic iron oxides. *Sci. Rep.* 8, 7347, doi:10.1038/s41598-018-25756-3.
- Ito, A. et al. (2019), Pyrogenic iron: The missing link to high iron solubility in aerosols, *Sci. Adv.*, 5, eaau7671, doi: 10.1126/sciadv.aau7671.
- Ito, A. et al. (2021), Ocean fertilization by pyrogenic aerosol iron, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 4, doi:10.1038/s41612-021-00185-8.
- Iwamoto, Y. et al. (2021), Aerosol-Cloud Interaction at the Summit of Mt. Fuji, Japan: Factors Influencing Cloud Droplet Number Concentrations, *Appl. Sci.*, 11, 8439, doi.org/10.3390/app11188439.
- 岩田一政 (2019), 2060 デジタル資本主義,日本経済新聞出版社, p238, ISBN 978-4-532-35843-3.
- Jacob, D. J. et al. (2003), Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) aircraft mission: Design, execution, and first results, *J. Geophys. Res.*, 108(D20), 9000, doi:10.1029/2002JD003276
- Jacob, D. J. et al. (2010), The Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS) mission: Design, execution, and first results, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5191–5212, doi:10.5194/ acp-10-5191-2010.
- Jimenez, J. L. et al. (2009), Evolution of organic aerosols in the atmosphere, *Science*, 326, 1525-1529, doi:10.1126/science.1180353.

- Jing, X. et al. (2017), A multimodel study on warm precipitation biases in global models compared to satellite observations. J. Geophys. Res. Atmos., 122,
  - doi:10.1002/2017JD027310.
- Jing, X. & K. Suzuki (2018), The impact of process-based warm rain constraints on the aerosol indirect effect. *Geophys. Res. Lett.*, 45, doi:10.1029/2018GL079956.
- Jing, X., K. Suzuki & T. Michibata (2019), The key role of warm rain parameterization in determining the aerosol indifect effect in a global climate model. *J. Climate*, 32, 4409-4430, doi:10.1175/JCLI-D-18-0789.1.
- Jo, D. S., R. J. Park, S. Lee, S.-W. Kim, and X. Zhang (2016), A global simulation of brown carbon: implications for photochemistry and direct radiative effect, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 3414-3432, doi:10.5194/acp-16-3413-2016.
- Jones, C. D., et al. (2021), The climate response to emissions reductions due to COVID-19: Initial results from CovidMIP. Geophys. Res. Lett., 48, e2020GL091883, doi:10.1029/2020GL091883.
- Journet, E., Y. Balkanski and S. P. Harrison (2014), A new data set of soil mineralogy for dust-cycle modeling. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 3801–3816. doi:10.5194/acp-14-3801-2014.
- Kanji, Z. A. et al. (2017), Overview of ice nucleating particles, *Meteorol. Mono.*, 58, 1.1–1.33.
- 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, doi:/10.5194/acp-20-6339-2020.
- Kaneyasu, N. et al. (2014), Impact of long-range transport of aerosols on the PM2. 5 composition at a major metropolitan area in the northern Kyushu area of Japan. Atmos. Environ., 97, 416-425.
- Kawai, K., H. Matsui & Y. Tobo (2021), High potential of Asian dust to act as ice nucleating particles in mixed-phase clouds simulated with a global aerosol-climate model, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 126, e2020JD034263.

- Kawamoto, K., T. Nakajima & T. Y. Nakajima (2001), A global determination of cloud microphysics with AVHRR remote sensing. J. Climate, 14, 2054-2068.
- Khairoutdinov, M. & D. A. Randall (2001), A cloud resolving model as a cloud parameterization in the NCAR Community Climate System Model: Preliminary results. *Geophys. Res. Lett.*, 28, 3617-3620.
- Kinase, T. et al. (2020), 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.
- Kinne, S. (2019), Aerosol radiative effects with MACv2, Atmos. Chem. Phys., 19, 10919–10959, doi:/10.5194/acp-19-10919-2019.
- Kirchstetter, T. W., T. Novakov & P. V. Hobbs (2004), Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon. *J. Geophys. Res. Atmos.* 109, D21, doi:10.1029/2004JD004999.
- Kiselev, A. et al. (2017), Active sites in heterogeneous ice nucleation—the example of K-rich feldspars, *Science*, 355, 367-371.
- 気象庁 (2020), 2020 年冬の天候の特徴とその要因について,

https://www.jma.go.jp/jma/press/2004/14b/kentoukai2020 0414.html

- Kobayashi, H. et al. (2014), Development of a polarization optical particle counter capable of aerosol type classification, *Atmos. Environ.* 97, 486–492, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.05.006.
- Koch, D. et al. (2009), Evaluation of black carbon estimations in global aerosol models, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 9001-9026, doi:10.5194/acp-9-9001-2009.
- Kok, J. F. et al. (2017), Smaller desert dust cooling effect estimated from analysis of dust size and abundance, *Nat. Geosci.*, 10, 274-278, doi:10.1038/ngeo2912.
- Kondo, Y., et al. (2009), Stabilization of the mass absorption cross section of black carbon for filter-based absorption

photometry by the use of a heated inlet, *Aerosol Sci. Technol.*, 43, 741-756, doi:10.1080/02786820902889879.

- Kondo, Y. et al. (2011a), Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filterbased photo-absorption techniques. *Aerosol Sci. Technol.*, 45, 295–312, doi:10.1080/02786826.2010.533215.
- Kondo, Y. et al. (2012), Reduction of black carbon aerosols in Tokyo: Comparison of real-time observations with emission estimates, *Atmos. Environ.*, 54, 242–249, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.02.003.
- Kondo, 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.
- Kulmala, M. (2003), How particles nucleate and grow, *Science*, 302, 1000-1001, doi:10.1126/science.1090848.
- Kulmala, M., et al. (2013), Direct observations of atmospheric aerosol nucleation, *Science*, 339, 943-946, doi:10.1126/science.1227385.
- Kulmala, M. (2018), Build a global Earth observatory, *Nature*, 553, 21-23.
- Kurisu, M., Y. Takahashi, T. Iizuka & M. Uematsu (2016), Very low isotope ratio of iron in fine aerosols related to its contribution to the surface ocean, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 11119–11136, doi:10.1002/2016JD024957.
- Kurisu, M., K. Sakata, M. Uematsu, A. Ito & Y. Takahashi (2021), Contribution of combustion Fe in marine aerosols over the northwestern Pacific estimated by Fe stable isotope ratios, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 16027–16050, doi:10.5194/acp-21-16027-2021.
- Kurokawa, J. et al. (2013), Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008:
  Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13. 11019-11058, doi:10.5194/acp-13-11019-2013.
- Kurokawa, J. & T. Ohara (2020), Long-term historical trends in

air pollutant emissions in Asia: Regional Emission
inventory in ASia (REAS) version 3, *Atmos. Chem. Phys.*,
20. 12761-12793, doi:10.5194/acp-20-12761-2020.

- Kutzner, R. D. et al. (2018), Long-term monitoring of black carbon across Germany. *Atmos. Environ.*, 185, 41–52, doi:10.1016/j.atmosenv.2018.04.039
- Lack, D. A. et al. (2012), Brown carbon and internal mixing in biomass burning particles, *P. Natl. Acad. Sci. USA.*, 109, 14802–14807. doi:10.1073/pnas.1206575109.
- Laj, P. et al. (2020), A global analysis of climate-relevant aerosol properties retrieved from the network of Global Atmosphere Watch (GAW) near-surface observatories, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 4353–4392, doi.org/10.5194/amt-13-4353-2020.
- Lamboll, R. D. et al. (2021), Modifying emissions scenario projections to account for the effects of COVID-19: protocol for CovidMIP, *Geosci. Model Dev.*, 14, 3683-3695, doi:10.5194/gmd-14-3683-2021.
- Laskin, A., J. Laskin & S. A. Nizkorodov (2015), Chemistry of atmospheric brown carbon, *Chem. Rev.*, 115, 4335–4382, doi:10.1021/cr5006167.
- Lebsock, M. D., G. L. Stephens & C. Kummerow (2008), Multisensor satellite observations of aerosol effects on warm clouds. J. Geophys. Res., 113, D15205, doi:10.1029/2008JD009876.
- L'Ecuyer, T. S., W. Berg, J. Haynes, M. Lebsock & T. Takemura (2009), Global observations of aerosol impacts on precipitation occurrence in warm maritime clouds. J. Geophys. Res., 114, D09211, doi:10.1029/2008JD011273.
- Li, L. et al. (2021), Quantifying the range of the dust direct radiative effect due to source mineralogy uncertainty. *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 3973–4005. doi:10.5194/acp-21-3973-2021.
- Li, M. et al. (2017), Anthropogenic emission inventories in China: a review, *National Science Review*, 4. 834-866, doi:10.1093/nsr/nwx150.
- Lin, G. et al. (2014), Radiative forcing of organic aerosol in the

atmosphere and on snow: Effects of SOA and brown carbon, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 7453–7476, doi:10.1002/2013JD021186.

- Liu, C., C. E., Chung, Y. Yin & M. Schnaiter (2018), The absorption Ångström exponent of black carbon: From numerical aspects. *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 6259–6273, doi:10.5194/acp-18-6259-2018.
- Liu, M. & H. Matsui (2021), Improved simulations of global black carbon distributions by modifying wet scavenging processes in convective and mixed-phase clouds, J. Geophys. Res. Atmos., 126, e2020JD033890, doi:10.1029/2020JD033890.
- Liu, J., L. W. Horowitz, S. Fan, A. G. Carlton, & H. Levy II (2012), Global in-cloud production of secondary organic aerosols: Implementation of a detailed chemical mechanism in the GFDL atmospheric model AM3, J. Geophys. Res., 117, D15303, doi:10.1029/2012JD017838.
- Lohmann, U. & G. Lesins (2002), Stronger constraints on the anthropogenic indirect aerosol effect. *Science*, 298, 1012-1015.
- Lund, M. T. et al. (2018). Concentrations and radiative forcing of anthropogenic aerosols from 1750 to 2014 simulated with the Oslo CTM3 and CEDS emission inventory, *Geosci. Model Dev.*, 11, 4909–4931, doi:10.5194/gmd-11-4909-2018.
- Makkonen, R. et al. (2012), Air pollution control and decreasing new particle formation lead to strong climate warming, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 1515-1524, doi:10.5194/acp-12-1515-2012.
- Malavelle, F. et al. (2017), Strong constraints on aerosol-cloud interactions from volcanic eruptions. *Nature*, 546, 485-491.
- Mallet, M. et al. (2021), Climate models generally underrepresent the warming by Central Africa biomassburning aerosols over the Southeast Atlantic, *Sci. Adv.*, 7, eabg9998, doi:10.1126/sciadv.abg9998.

Masson-Delmotte, V. et al. (2021), IPCC 2021: Climate Change

2021: The Physical science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press.

- Matsui, H. (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 1. Model design, J. Adv. Model. Earth Syst., 9, 1921–1947, doi:10.1002/2017MS000936.
- Matsui, H., D. S. Hamilton & N. M. Mahowald (2018a), Black carbon radiative effects highly sensitive to emitted particle size when resolving mixing-state diversity, *Nat. Commun.*, 9, 3446, doi:10.1038/s41467-018-05635-1.
- Matsui, H. & M. Liu (2021), Importance of supersaturation in Arctic black carbon simulations, J. Climate, 34, 7843–7856, doi:10.1175/JCLI-D-20-0994.1.
- Matsui, H. & N. Mahowald (2017), Development of a global aerosol model using a two-dimensional sectional method: 2.
  Evaluation and sensitivity simulations, *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 9, 1887–1920, doi:10.1002/2017MS000937.
- Matsui, H. & N. Moteki (2020), High sensitivity of Arctic black carbon radiative effects to subgrid vertical velocity in aerosol activation, *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2020GL088978, doi:10.1029/2020GL088978.
- Matsui, H. et al. (2011a), Impact of new particle formation on the concentrations of aerosols and cloud condensation nuclei around Beijing, J. Geophys. Res., 116, D19208, doi:10.1029/2011JD016025.
- Matsui, H. et al. (2011b), Seasonal variation of the transport of black carbon aerosol from the Asian continent to the Arctic during the ARCTAS aircraft campaign. J. Geophys. Res., 116, D05202, doi:10.1029/2010JD015067.
- Matsui, H. et al. (2014), Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia: implications for anthropogenic–biogenic interaction and controllable amounts, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9513–9535, doi:10.5194/acp-14-9513-2014.
- Matsui, H. et al. (2018b), Anthropogenic combustion iron as a

complex climate forcer, *Nat. Commun.*, 9, 1593, doi:10.1038/s41467-018-03997-0.

- McConnell, J. R. et al. (2007), 20th-Century industrial black carbon emissions altered arctic climate forcing. *Science*, 317, 1381–1384. doi:10.1126/science.1144856.
- McDuffie, E. E. et al. (2020), A global anthropogenic emission inventory of atmospheric pollutants from sector- and fuelspecific sources (1970–2017): an application of the Community Emissions Data System (CEDS). *Earth Syst. Sci. Data*, 12, 3413–3442. doi:10.5194/essd-12-3413-2020.
- Meredith, M., et al. (2019), Polar Regions. In: IPCC Special Report on the Ocean and Cryosphere in a Changing Climate [H.-O. Pörtner, D.C. Roberts, V. Masson-Delmotte, P. Zhai, M. Tignor, E. Poloczanska, K. Mintenbeck, A. Alegría, M. Nicolai, A. Okem, J. Petzold, B. Rama, N.M. Weyer (eds.)]. In press.
- Merikanto, J., D. V. Spracklen, G. W. Mann, S. J. Pickering, & K. S. Carslaw (2009), Impact of nucleation on global CCN, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8601-8616, doi:10.5194/acp-9-8601-2009.
- Meyers, M. P., P. J. DeMott & W. R. Cotton (1992), New primary ice-nucleation parameterizations in an explicit cloud model, *J. Appl. Meteorol.*, 31, 708-721.
- Michibata, T., K. Suzuki, Y. Sato & T. Takemura (2016), The source of discrepancies in aerosol-cloud-precipitation interactions between GCM and A-Train retrievals. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 15413-15424, doi:10.5194/acp-16-15413-2016.
- Michibata, T., K. Suzuki, M. Sekiguchi & T. Takemura (2019), Prognostic precipitation in the MIROC6-SPRINTARS GCM: Description and evaluation against satellite observations. J. Adv. Mod. Earth Sys., 11, doi:10.1029/2018MS001596.
- Michibata, T. & K. Suzuki (2020), Recondiling compensating errors between precipitation constraints and the energy budget in a climate model. *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2020GL088340, doi:10.1029/2020GL088340.

- Michibata, T., K. Suzuki & T. Takemura (2020), Snow-induced buffering in aerosol-cloud interactions. *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 13771-13780, doi:10.5194/acp-20-13771-2020.
- Mitchell, J. F. B., T. C. Johns, J. M. Gregory & S. F. B. Tett (1995), Climate response to increasing levels of greenhouse gases and sulphate aerosols. *Nature*, 376, 501-504.
- Miyakawa, T. et al. (2016). Emission regulations altered the concentrations, origin, and formation of carbonaceous aerosols in the Tokyo metropolitan area. *Aerosol Air Qual. Res.*, 16, 1603–1614. doi:10.4209/aaqr.2015.11.0624.
- 文部科学省 (2004) https://www.mext.go.jp/b_menu/boshu/ detail/mext_00217.html (最終アクセス日: 2022 年 10 月 12 日).
- Moosmüller, H., R. K. Chakrabarty & W. P. Arnott (2009), Aerosol light absorption and its measurement: A review. J. Quant. Spectrosc. Ra., 110, 844–878. doi:10.1016/j.jqsrt.2009.02.035.
- Mori, T. et al. (2020a), Changes in black carbon and PM_{2.5} in Tokyo in 2003–2017. *Proc. Jpn. Acad. Ser. B*, 96, 122-129, doi: 10.2183/pjab.96.010.
- Mori, T. et al. (2020b), Seasonal variation of wet deposition of black carbon in Arctic Alaska. J. Geophys. Res. Atmos., 125, e2019JD032240, doi:10.1029/2019JD032240.
- Mori, T. et al. (2021), Seasonal variation of wet deposition of black carbon at Ny-Ålesund, Svalbard, J. Geophys. Res. Atmos., 126, e2020JD034110. doi:/10.1029/2020JD034110.
- Moschos, V. et al. (2018), Source apportionment of brown carbon absorption by coupling ultraviolet-visible spectroscopy with aerosol mass spectrometry. *Environ. Sci. Technol. Lett.*, 5, 302–308. doi:10.1021/acs.estlett.8b00118.
- Moteki, N. (2020), Capabilities and limitations of the singleparticle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 243, 106811, doi:10.1016/j.jqsrt.2019.106811.

Moteki, N. (2021), Measuring the complex forward-scattering

amplitude of single particles by self-reference interferometry: CAS-v1 protocol, *Opt. Express*, 29, 20688-20714, doi:10.1364/OE.423175.

- Moteki, N. & Y. Kondo (2007), Effects of mixing state on black carbon measurements by laser-induced incandescence, *Aerosol Sci. Technol.*, 41, 398-417, doi: 10.1080/02786820701199728.
- Moteki, N. & Y. Kondo (2010), Dependence of laser-induced incandescence on physical properties of black carbon aerosols: Measurements and theoretical interpretation. *Aerosol Sci. Technol.*, 44, 663–675. doi:10.1080/02786826.2010.484450.
- Moteki, N., Y. Kondo & S. Nakamura (2010), Method to measure refractive indices of small nonspherical particles: Application to black carbon particles. *J. Aerosol Sci.*, 41, 513–521, doi:10.1016/j.jaerosci.2010.02.013.
- Moteki, N., T. Mori, H. Matsui, & S. Ohata (2019), Observational constraint of in-cloud supersaturation for simulations of aerosol rainout in atmospheric models, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 2:6, doi:10.1038/s41612-019-0063-y.
- Moteki, N. et al. (2007). Evolution of mixing state of black carbon particles: Aircraft measurements over the western Pacific in March 2004. *Geophy. Res. Lett.*, 34, L11803, doi:10.1029/2006GL028943.
- Moteki, N. 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. et al. (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating. *Nat. Commun.* 8, 15329, doi:10.1038/ncomms15329.
- Mulmenstadt, J. et al. (2020), Reducing the aerosol forcing uncertainty using observational constraints on warm rain processes. Sci. Adv., 6, eaaz6433, doi:10.1126/sciadv.aaz6433.
- Murray, B. J., D. O'Sullivan, J. D. Atkinson & M. E. Webb (2012), Ice nucleation by particles immersed in supercooled

cloud droplets, *Chem. Soc. Rev.*, 41, 6519-6554, doi:10.1039/c2cs35200a.

- Murray, B. J., K. S. Carslaw & P. R. Field (2021), Opinion: Cloud-phase climate feedback and the importance of icenucleating particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 665-679.
- Myhre, G. et al. (2013a). Radiative forcing of the direct aerosol effect from AeroCom Phase II simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 1853–1877, doi:/10.5194/acp-13-1853-2013.
- Myhre, G. et al. (2013b). Anthropogenic and natural radiative forcing. In Intergovernmental Panel on climate change, climate change 2013-The physical Science Basis (pp. 659–740). Cambridge: Cambridge University Press. doi:/10.1017/CBO9781107415324.018.
- Nakajima, T., A. Higurashi, K. Kawamoto & J. E. Penner (2001), A possible correlation between satellite-derived cloud and aerosol microphysical parameters. *Geophys. Res. Lett.*, 28, 1171-1174.
- Nakajima, T. Y., H. Masunaga & T. Nakajima (2009), Nearglobal scale retrieval of the optical and microphysical properties of clouds from the Midori-II GLI and AMSR data. J. Rem. Sens. Soc. Japan, 29, 29-39.
- Nakajima, T. Y. & T. Nakajima (1995), Wide-area determination of cloud microphysical properties from NOAA AVHRR measurements for FIRE and ASTEX regions. J. Atmos. Sci., 52, 4043-4059.
- Nakajima, T. Y., K. Suzuki & G. L. Stephens (2010), Droplet growth in warm water clouds observed by the A-Train. Part II: A multisensor view. J. Atmos. Sci., 67, 1897-1907.
- Nakajima, T. et al. (2020a), A development of reduction scenarios of the short-lived climate pollutants (SLCPs) for mitigating global warming and environmental problems, *Progress in Earth and Planetary Science*, 7:33. 21p, doi:10.1186/s40645-020-00351-1.
- Nakajima, T. et al. (2020b), An overview of and issues with sky radiometer technology and SKYNET, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 4195–4218, doi.org/10.5194/amt-13-4195-2020.

Nakayama, T., K. Sato, M. Tsuge, T. Imamura & Y. Matsumi

(2015), Complex refractive index of secondary organic aerosol generated from isoprene/NO_x photooxidation in the presence and absence of SO₂, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 7777–7787, doi:10.1002/2015JD023522.

- Nakayama, T. et al. (2010), Laboratory studies on optical properties of secondary organic aerosols generated during the photooxidation of toluene and the ozonolysis of αpinene, J. Geophys. Res., 115, D24204, doi:10.1029/2010JD014387.
- Nakayama, T. et al. (2013), Wavelength and NO_x dependent complex refractive index of SOAs generated from the photooxidation of toluene, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 531– 545, doi:10.5194/acp-13-531-2013.
- National Academies of Sciences, Engineering and Medicine (2018), Thriving on our changing planet: A decadal strategy for earth observation from space. Washington, DC: The National Academies Press. doi:/10.17226/24938.
- Nguyen, T. B. et al. (2012), Formation of nitrogen-and sulfurcontaining light-absorbing compounds accelerated by evaporation of water from secondary organic aerosols, J. Geophys. Res. Atmos., 117, D01207, doi:10.1029/2011JD016944.
- Nickovic, S., A. Vukovic, M. Vujadinovic, V. Djurdjevic, & G. Pejanovic (2012), Technical Note: High-resolution mineralogical database of dust-productive soils for atmospheric dust modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 845-855, doi:10.5194/acp-12-845-2012.
- Niemand, M. et al. (2012), A particle-surface-area-based parameterization of immersion freezing on desert dust particles, *J. Atmos. Sci.*, 69, 3077–3092, doi:10.1175/JAS-D-11-0249.1.
- 大原利眞, 鵜野伊津志, 黒川純一, 早崎将光, 清水厚 (2008), 2007 年 5 月 8, 9 日に発生した広域的な光化学オゾン 汚染-オーバービュー-, *大気環境学会誌*, 43, 198-208.
- Ohata, S., N. Moteki, T. Mori, M. Koike & Y. Kondo (2016), A key process controlling the wet removal of aerosols: new observational evidence. *Sci. Rep.*, 6, 34113.

doi:10.1038/srep34113.

- Ohata, S. et al. (2021a). Arctic black carbon during PAMARCMiP 2018 and previous aircraft experiments in spring. Atmos. Chem. Phys., 21, 15861–15881, doi:10.5194/acp-21-15861-2021.
- Ohata, S. et al. (2021b). Estimates of mass absorption cross sections of black carbon for filter-based absorption photometers in the Arctic. *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 6723– 6748. doi:10.5194/amt-14-6723-2021.
- Orikasa, N. et al. (2020), Seasonal variations of atmospheric aerosol particles focused on cloud condensation nuclei and ice nucleating particles from ground-based observations in Tsukuba, Japan, *SOLA*, 16, 212-219.
- Oshima, N. & M. Koike (2013) Development of a parameterization of black carbon aging for use in general circulation models, *Geosci. Model Dev.* 6, 263–282, doi:10.5194/gmd-6-263-2013.
- Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang & Y. Kondo (2009a), Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: 2. Aerosol optical properties and cloud condensation nuclei activities, *J. Geophys. Res.*, 114, D18202, doi:10.1029/2008JD011681.
- Oshima, N. et al. (2009b), Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resoled model: Model development and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 114, D06210, doi:10.1029/2008JD010680.
- Oshima, N. et al. (2012), Wet removal of black carbon in Asian outflow: Aerosol Radiative Forcing in East Asia (A-FORCE) aircraft campaign, *J. Geophys. Res.*, 117, D03204, doi:10.1029/2011JD016552.
- Oshima, N. et al. (2020), Global and Arctic effective radiative forcing of anthropogenic gases and aerosols in MRI-ESM2.0. *Progress in Earth and Planetary Science*, 7, 38. doi:/10.1186/s40645-020-00348-w.
- Pan, X. et al. (2016), Polarization properties of aerosol particles over western Japan: classification, seasonal variation, and implications for air quality, *Atmos. Chem. Phys.* 16, 9863–

9873, doi:10.5194/acp-16-9863-2016.

- Petters, M. D. & S. M. Kreidenweis (2007), A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1961–1971, doi.org/10.5194/acp-7-1961-2007.
- Petzold, A. et al. (2013), Recommendations for reporting black carbon measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8365–8379, doi:10.5194/acp-13-8365-2013.
- Pileci, R. E. et al. (2021), Comparison of co-located refractory black carbon (rBC) and elemental carbon (EC) mass concentration measurements during field campaigns at several European sites. *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 1379–1403, doi:10.5194/amt-14-1379-2021.
- Pincus, R., Forster, P. M., & Stevens, B. (2016), The radiative forcing model intercomparison project (RFMIP): Experimental protocol for CMIP6. Geoscientific Model Development, 9(9), 3447–3460. doi:10.5194/gmd-9-3447-2016.
- Platnick, S. et al. (2003), The MODIS cloud products: Algorithms and examples from Terra, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 41, 459-473.
- Platt, S. M. et al. (2017), Gasoline cars produce more carbonaceous particulate matter than modern filterequipped diesel cars. *Sci. Rep.*, 7, 4926, doi:10.1038/s41598-017-03714-9.
- Posselt, R. & U. Lohmann (2009), Sensitivity of the total anthropogenic aerosol effect to the treatment of rain in a global climate model. *Geophys. Res. Lett.*, 36, L02805, doi:10.1029/2008GL035796.
- Prenni, A. J. et al. (2013), The impact of rain on ice nuclei populations at a forested site in Colorado, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 227-231.
- Prospero, J. M., J. E. Bullard & R. Hodgkins (2012), Highlatitude dust over the North Atlantic: Inputs from Icelandic proglacial dust storms, *Science*, 335, 1078-1082, doi:10.1126/science.1217447.
- Qi, L, Q. Li, C. He, X. Wang & J. Huang (2017a), Effects of the

Wegener-Bergeron-Findeisen process on global black carbon distribution, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 7459-7479, doi:10.5194/acp-17-7459-2017.

- Qi, L., Q. Li, Y. Li & C. He (2017b), Factors controlling black carbon distribution in the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 1037-1059, doi:10.5194/acp-17-1037-2017.
- Quaas, J., O. Boucher & F.-M.,Breon (2004), Aerosol indirect effects in POLDER satellite data and in the LMDZ GCM.
  J. Geophys. Res., 109, D08205, doi:10.1029/2003JD004317.
- Quaas, J. et al. (2009), Aerosol indirect effects general circulation model intercomparison and evaluation with satellite data. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8697-8717.
- Randall, D. A., M. Khairoutdinov, A. Arakawa & W. Grabowski (2003), Breaking the cloud parameterization deadlock. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 1547-1564, doi:10.1175/BAMS-84-11-1547.
- Reddington, C. L. et al. (2016), Analysis of particulate emissions from tropical biomass burning using a global aerosol model and long-term surface observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 11083-11106, doi:10.5194/acp-16-11083-2016.
- Remer, L. A. et al. (2005), The MODIS algorithm, products, and validation. J. Atmos. Sci., 62, 947-973, doi:10.1175/JAS3385.1.
- Riemer, N., M. West, R. A. Zaveri & R. C. Easter (2009), Simulating the evolution of soot mixing state with a particle-resolved aerosol model, *J. Geophys. Res.*, 114, D09202, doi:10.1029/2008JD011073.
- Roberts, G. & A. Nenes (2005), A Continuous-Flow Streamwise Thermal-Gradient CCN Chamber for Atmospheric Measurements, *Aerosol Sci. Tech.*, 39, 206–221, doi.org/10.1080/027868290913988.
- Robinson, A. L. et al. (2007), Rethinking organic aerosols: Semivolatile emissions and photochemical aging, *Science*, 315, 1259-1262, doi:10.1126/science.1133061.
- Rose, C. et al. (2021), Seasonality of the particle number concentration and size distribution: a global analysis

retrieved from the network of Global Atmosphere Watch (GAW) near-surface observatories, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* [preprint], doi.org/10.5194/acp-2020-1311.

- Rosenfeld, D. (2000), Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution. *Science*, 287, 1793-1796, doi:10.1126/science.287.5459.1793.
- Rosenfeld, D. et al. (2008), Flood or drought: How do aerosols affect precipitation?, *Science*, 321, 1309-1313, doi:10.1126/science.1160606.
- Saleh, R. et al. (2014), Brownness of organics in aerosols from biomass burning linked to their black carbon content, *Nat. Geosci.*, 7, 647–650, doi:10.1038/ngeo2220.
- Samset, B. H. & G. Myhre (2015), Climate response to externally mixed black carbon as a function of altitude, J. Geophys. Res. Atmos., 120, 2913-2927, doi:10.1002/2014JD022849.
- Samset, B. H. et al. (2014), Modelled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12465-12477, doi:10.5194/acp-14-12465-2014.
- Sanchez-Marroquin, A. et al. (2020), Iceland is an episodic source of atmospheric ice-nucleating particles relevant for mixed-phase clouds, *Sci. Adv.*, 6, eaba8137.
- Sand, M. et al. (2021), Aerosol absorption in global models from AeroCom phase III, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 15929-15947, doi:10.5194/acp-21-15929-2021.
- Šantl-Temkiv, T. et al. (2019), Biogenic sources of ice nucleating particles at the high Arctic site Villum Research Station, *Environ. Sci. Technol.*, 53, 10580-10590.
- Sarkar, C., A. Roy, A. Chatterjee, S. K. Ghosh & S. Raha (2019), Factors controlling the long-term (2009–2015) trend of PM_{2.5} and black carbon aerosols at eastern Himalaya, India. *Sci. Total Environ.*, 656, 280–296, doi:10.1016/j.scitotenv.2018.11.367.
- Sato, Y. & K. Suzuki (2019), How do aerosols affect cloudiness? Science, 363, 580-581, doi:10.1126/science.aaw3720.
- Sato, Y. et al. (2016), Unrealistically pristine air in the Arctic

produced by current global scale models. Sci. Rep., 6, 26561. doi:10.1038/srep26561.

- Sato, Y. et al. (2018), Aerosol effects on cloud water amounts were successfully simulated by a global cloud-system resolving model. *Nat. Commun.*, 9(1), 985. doi:10.1038/s41467-018-03379-6.
- Satoh, M. et al. (2014), The Non-hydrostatic Icosahedral Atmospheric Model: description and development. *Prog. in Earth and Planet. Sci.*, *1*(1), 18. doi:10.1186/s40645-014-0018-1.
- Satoh, M. et al. (2019), Global Cloud-Resolving Models. Current Climate Change Reports. doi:/10.1007/s40641-019-00131-0.
- Sauter, K. & T. S. L'Ecuyer (2017), Observational evidence for the vertical redistribution and scavenging of Saharan dust by tropical cyclones. *Geophys. Res. Lett.*, 44, 6421-6430, doi:10.1002/2017GL074166.
- Sauter, K. et al. (2019), The observed influence of tropical convection on the Saharan dust layer. J. Geophys. Res: Atmos., 124, doi:10.1029/2019JD031365.
- Schill, G. P. et al. (2020), Widespread biomass burning smoke throughout the remote troposphere, *Nat. Geosci.*, 13, 422-427, doi:10.1038/s41561-020-0586-1.
- Schmale, J. et al. (2017), Collocated observations of cloud condensation nuclei, particle size distributions, and chemical composition, *Sci Data*, 4, 170003, doi.org/10.1038/sdata.2017.3
- Schmale, J. et al. (2018), Long-term cloud condensation nuclei number concentration, particle number size distribution and chemical composition measurements at regionally representative observatories, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 2853–2881, doi.org/10.5194/acp-18-2853-2018.
- Schulz, H. et al. (2019), High Arctic aircraft measurements characterising black carbon vertical variability in spring and summer, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 2361–2384, doi:10.5194/acp-19-2361-2019.
- Schuster, G. L., O. Dubovik & A. Arola (2016), Remote sensing

of soot carbon – Part 1: Distinguishing different absorbing aerosol species, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 1565–1585, doi:10.5194/acp-16-1565-2016.

- Schutgens, N. A. J. et al. (2020), An AeroCom–AeroSat study: intercomparison of satellite AOD datasets for aerosol model evaluation, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 12431-12457, doi:10.5194/acp-20-12431-2020.
- Schwarz, J. P. et al. (2006). Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere. J. Geophys. Res., 111, D16207, doi:10.1029/2006JD007076.
- Schwarz, J. P. et al. (2013), Global-scale seasonally resolved black carbon vertical profiles over the Pacific. *Geophys. Res. Lett.*, 40, 5542–5547. doi:10.1002/2013GL057775.
- Sekiguchi, M. et al. (2003), A study of the direct and indirect effects of aerosols using global satellite data sets of aerosol and cloud parameters. J. Geophys. Res., 108(D22), 4699, doi:10.1029/2002JD003359.
- Sharma, S. et al. (2013), 16-year simulation of arctic black carbon: Transport, source contribution, and sensitivity analysis on deposition. J. Geophys. Res. Atmos., 118, 943– 964, doi:10.1029/2012JD017774.
- Sherwood, S. C. et al. (2020), An assessment of Earth's climate sensitivity using multiple lines of evidence. *Rev. Geophys.*, 58, e2019RG000678, doi:10.1029/2019RG000678.
- Shrivastava, M. et al. (2011), Modeling organic aerosols in a megacity: comparison of simple and complex representations of the volatility basis set approach, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6639-6662, doi:10.5194/acp-11-6639-2011.
- Shrivastava, M. et al. (2017), Recent advances in understanding secondary organic aerosol: Implications for global climate forcing, *Rev. Geophys.*, 55, 509-559, doi:10.1002/2016RG000540.
- Singh, V., K. Ravindra, L. Sahu & R. Sokhi (2018), Trends of atmospheric black carbon concentration over United

Kingdom, *Atmos. Environ.*, 178, 148–157, doi:10.1016/j.atmosenv.2018.01.030.

- Sinha, P. R., et al. (2017), Evaluation of ground-based black carbon measurements by filter-based photometers at two Arctic sites. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 122, 3544–3572. doi:10.1002/2016JD025843.
- Sinha, P. R. et al. (2018), Seasonal progression of the deposition of black carbon by snowfall at Ny-Ålesund, Spitsbergen, J. Geophys. Res. Atmos., 123, 997-1016, doi:/10.1002/2017JD028027.
- Skamarock, W. C. et al. (2012), A multiscale nonhydrostatic atmospheric model using centroidal Voronoi tesselations and C-grid staggering. *Mon. Wea. Rev.*, 140(9), 3090– 3105.
- Smith, C. J. et al. (2020), Effective radiative forcing and adjustments in CMIP6 models. *Atmos. Chem. Phys.*, 20(16), 9591–9618. doi:/10.5194/acp-20-9591-2020
- Smith, C. J. et al. (2021), Energy budget constraints on the time history of aerosol forcing and climate sensitivity. J. Geophys. Res. Atmos., 126, e2020JD033622. doi:/10.1029/2020JD033622
- Spracklen, D. V. et al. (2008), Contribution of particle formation to global cloud condensation nuclei concentrations, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L06808, doi:10.1029/2007GL033038.
- Squires, P. (1958), The microstructure and colloidal stability of warm clouds. *Tellus*, 10(2), 262-271, doi:10.1111/j.2153-3490.
- Stephens, G. L. et al. (2008), CloudSat mission: Performance and early science after the first year of operation. J. Geophys. Res., 113, D00A18, doi:10.1029/2008JD009982.
- Stephens, G. L. et al. (2010), Dreary state of precipitation in global models. J. Geophys. Res., 115, D24211, doi:10.1029/2010JD014532.
- Stevens, B. & G. Feingold (2009), Untangling aerosol effects on

clouds and precipitation in a buffered system. *Nature*, 461, 607-613, doi:10.1038/nature08281.

- Stevens, B. et al. (2019), DYAMOND: the DYnamics of the Atmosphere general circulation Modeled On Nonhydrostatic Domains. *Prog. Earth Planet. Sci.*, 6:61, doi:10.1186/s40645-019-0304-z.
- Stier, P., J. H. Seinfeld, S. Kinne, J. Feichter & O. Boucher (2006), Impact of nonabsorbing anthropogenic aerosols on clear-sky atmospheric absorption, *J. Geophys. Res.*, 111, D18201, doi:10.1029/2006JD007147.
- Storer, R., S. C. van den Heever & T. S. L'Ecuyer (2014), Observations of aerosol-induced convective invigoration in the tropical east Atlantic. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119, 3963-3975, doi:10.1002/2013JD020272.
- Suzuki, K., J.-C., Golaz & G. L. Stephens (2013a), Evaluating cloud tuning in a climate model with satellite observations. *Geophys. Res. Lett.*, 40, 4464-4468, doi:10.1002/grl.50874.
- Suzuki, K., T. Y. Nakajima & G. L. Stephens (2010), Particle growth and drop collection efficiency of warm clouds as inferred from joint CloudSat and MODIS observations. J. Atmos. Sci., 67, 3019-3032, doi:10.1175/2010JAS3463.1.
- Suzuki, K., G. L. Stephens, S. C. van den Heever & T. Y. Nakajima (2011), Diagnosis of the warm rain process in cloud-resolving models using joint CloudSat and MODIS observations. J. Atmos. Sci., 68, 2655-2670, doi:10.1175/JAS-D-10-05026.1.
- Suzuki, K., G. L. Stephens & M. D. Lebsock (2013b), Aerosol effect on the warm rain formation process: Satellite observations and modeling. *J. Geophys. Res.*, 118, doi:10.1029/2012JD018722.
- Suzuki, K. & T. Takemura (2019), Perturbations to global energy budget due to absorbing and scattering aerosols. J. Geophys. Res. Atmos., 124, 2194–2209. doi:/10.1029/2018JD029808
- Suzuki, K. et al. (2004), A study of the aerosol effect on a cloud field with simultaneous use of GCM modeling and satellite observation. J. Atmos. Sci., 61, 179-194.

- Suzuki, K. et al. (2008), Global cloud-system-resolving simulation of aerosol effect on warm clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 35(19), L19817. doi:/10.1029/2008GL035449.
- Suzuki, K. et al. (2015), Evaluation of the warm rain formation process in global models with satellite observations. J. Atmos. Sci., 72, 3996-4014, doi:10.1175/JAS-D-14-0265.1.
- Szopa, S. V. et al. (2021), Short-Lived Climate Forcers. In Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, V., P. et al. (eds.)]. Cambridge University Press. In Press.
- Takahashi, H., K. Suzuki & G. Stephens (2017), Land-ocean differences in the warm-rain formation process in satellite and ground-based observations and model simulations. Q. J. R. Meteorol. Soc., 143:1804-1815, doi:10.1002/qj.3042.
- Takami, A. et al. (2007), Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation, J. Geophys. Res., 112, D22S31, doi:10.1029/2006JD008120.
- 鷹取 翔,小林 拓,松本 潔 (2015), 偏光光散乱式粒子数 計測装置による鉱物粒子濃度推定方法の検討, エア ロゾル研究, 30, 270–274.
- Takemura, T., T. Nozawa, S. Emori, T. Y. Nakajima & T. Nakajima (2005), Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transportradiation model. *J. Geophys. Res.*, 110(D2), D02202. doi:10.1029/2004JD005029.
- Takemura, T. & K. Suzuki (2019), Weak global warming mitigation by reducing black carbon emissionns, *Sci. Rep.*, 9:4419, doi:10.1038/s41598-019-41181-6.
- Takemura, T. (2020), Return to different climate states by reducing sulphate aerosols under future CO₂ concentrations, *Sci. Rep.*, 10:21748, doi:10.1038/s41598-020-78805-1.
- Taketani, F. et al. (2016), Shipborne observations of atmospheric black carbon aerosol particles over the Arctic Ocean, Bering Sea, and North Pacific Ocean during September

2014, J. Geophys. Res. Atmos., 121, 1914-1921, doi:10.1002/2015JD023648.

- Tan, I., T. Storelvmo & M. D. Zelinka (2016), Observational constraints on mixed-phase clouds imply higher climate sensitivity, *Science*, 352, 224-227.
- Thornhill, G. D. et al. (2021), Effective radiative forcing from emissions of reactive gases and aerosols—A multi-model comparison, *Atmos. Chem. Phys.*, 21(2), 853–874. doi:/10.5194/acp-21-853-2021
- Thornton, J. A. et al. (2017), Lightning enhancement over major oceanic shipping lanes, *Geophys. Res. Lett.*, 44(17), 9102-9111, doi.org/10.1002/2017GL074982.
- Tobo, Y. (2016), An improved approach for measuring immersion freezing in large droplets over a wide temperature range, *Sci. Rep.*, 6, 32930.
- 當房豊 (2019), 混相雲内でのエアロゾルの氷晶核として の役割, 大気化学研究, 41, 041A02.
- Tobo, Y. et al. (2013), Biological aerosol particles as a key determinant of ice nuclei populations in a forest ecosystem, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 10100-10110.
- Tobo, Y. et al. (2019), Glacially sourced dust as a potentially significant source of ice nucleating particles, *Nat. Geosci.*, 12, 253-258, doi:10.1038/s41561-019-0314-x.
- Tobo, Y. et al. (2020), Seasonal trends of atmospheric ice nucleating particles over Tokyo, J. Geophys. Res. Atmos., 125, e2020JD033658.
- Toll, V., M. Christensen, J. Quaas & N. Bellouin (2019), Weak average liquid-cloud-water response to anthropogenic aerosols. *Nature*, 572, doi:10.1038/s41586-019-1423-9.
- Tomita, H., H. Miura, S. Iga, T. Nasuno and M. Satoh (2005), A global cloud-resolving simulation: Preliminary results from an aqua planet experiment. *Geophys. Res. Lett.*, 32(8), 1–4. doi:10.1029/2005GL022459
- Tong, D. et al. (2020), Dynamic projection of anthropogenic emissions in China: methodology and 2015-2050 emission pathways under a range of socio-economic, climate policy, and pollution control scenarios, *Atmos. Chem. Phys.*, 20,

5729-5757, doi:10.5194/acp-20-5729-2020.

- Tröstl, J. et al. (2016), The role of low-volatility organic compounds in initial particle growth in the atmosphere, *Nature*, 533, 527-531, doi:10.1038/nature18271.
- Tsigaridis, K. et al. (2014), The AeroCom evaluation and intercomparison of organic aerosol in global models, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10845-10895, doi:10.5194/acp-14-10845-2014.
- Tsimpidi, A. P. et al. (2010), Evaluation of the volatility basis-set approach for the simulation of organic aerosol formation in the Mexico City metropolitan area, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 525-546, doi:10.5194/acp-10-525-2010.
- Twomey, S. (1974), Pollution and the planetary albedo. *Atmos. Environ.*, 8, 1251-1256.
- Twomey, S. A., M. Piepgrass and T. L. Wolfe (1984), An assessment of the impact of pollution on global cloud albedo. *Tellus B*, 36:5, 356-366, doi:10.3402/tellusb.v36i5.14916.
- Uetake, J. et al. (2016), Microbial community variation in cryoconite granules on Qaanaaq Glacier, NW Greenland, *FEMS Microbiol. Ecol.*, 92, fiw127, doi: 10.1093/femsec/fiw127.
- Ullrich, R. et al. (2017), A new ice nucleation active site parameterization for desert dust and soot, *J. Atmos. Sci.*, 74, 699–717, doi:10.1175/JAS-D-16-0074.1.
- Uno, I. et al. (2009), Asian dust transported one full circuit around the globe, *Nat. Geosci.*, 2, 557-560, doi:10.1038/NGEO583.
- 鵜野伊津志ら (2013),何故 2013 年冬季の中国で PM_{2.5} が 高濃度になったか?,大気環境学会誌,48,274-280.
- 鵜野伊津志ら (2017), PM_{2.5} 越境問題は終焉に向かっているのか?, 大気環境学会誌, 52, 177-184.
- Uno, I. et al. (2020), Paradigm shift in aerosol chemical composition over regions downwind of China, *Scientific Reports*, 10:21748, doi:10.1038/s41598-020-63592-6.
- Updyke, K. M., T. B. Nguyen & S. A. Nizkorodov (2012), Formation of brown carbon via reactions of ammonia with

secondary organic aerosols from biogenic and anthropogenic precursors, *Atmos. Environ.*, 63, 22–31, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.09.012, 2012.

- Veira, A., G. Lasslop & S. Kloster (2016), Wildfires in a warmer climate: Emission fluxes, emission heights, and black carbon concentrations in 2090–2099, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 3195–3223, doi:10.1002/2015JD024142.
- Vergara-Temprado, J. et al. (2018), Strong control of Southern Ocean cloud reflectivity by ice-nucleating particles, *Proc. Natl Acad. Sci. USA*, 115, 2687-2692.
- Wang, M. et al. (2011), The multi-scale aerosol-climate model PNNL-MMF: model description and evaluation. *Geosci. Model Dev.*, 4(1), 137–168.
- Wang, M. et al. (2012), Constraining cloud lifetime effects of aerosols using A-Train satellite observations. *Geophys. Res. Lett.*, 39, L15709, doi:10.1029/2012GL052204.
- Wang, H. et al. (2013), Sensitivity of remote aerosol distributions to representation of cloud-aerosol interactions in a global climate model, *Geosci. Model Dev.*, 6, 765-782, doi:10.5194/gmd-6-765-2013.
- Wang, X. et al. (2018), Exploring the observational constraints on the simulation of brown carbon. *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 635–653. doi:10.5194/acp-18-635-2018.
- Williamson, C. J. et al. (2019), A large source of cloud condensation nuclei from new particle formation in the tropics, *Nature*, 574, 399-403, doi:10.1038/s41586-019-1638-9.
- Wilson, T. W. et al. (2015), A marine biogenic source of atmospheric ice-nucleating particles, *Nature*, 525, 234-238, doi:10.1038/nature14986.
- Winker, D. et al. (2010), The CALIPSO mission: A global 3D view of aerosols and clouds. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 1211-1229, doi:10.1175/2010BAMS3009.1.
- WMO (2016), GAW Report No. 227, WMO/GAW Aerosol Measurement Procedures, Guidelines and Recommendations, 2nd Edition, ISBN: 978-92-63-11177-7.
- Wofsy, S. C. et al. (2011), HIAPER pole-to-pole observations

(HIPPO): Fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols, *Philos. Trans. R. Soc.*, 369, 2073–2086, doi:10.1098/rsta.2010.0313.

- Wu, M. et al. (2018), Impacts of aerosol dry deposition on black carbon spatial distributions and radiative effects in the Community Atmosphere Model CAM5, J. Adv. Model. Earth Syst., 10, 1150-1171, doi:10.1029/2017MS001219.
- Xing, J. et al. (2020), Deep learning for prediction of the air quality response to emission changes, *Environ. Sci. Technol.*, 54. 8589-8600, doi:10.1021/acs.est.0c02923.
- Xu, W. et al. (2022), Sea spray as an obscured source for marine cloud nuclei, *Nat. Geosci.*, 15, 282-286, doi:10.1038/s41561-022-00917-2.
- Yamagami, M., F. Ikemori, H. Nakashima, K. Hisatsune & K. Osada (2019), Decreasing trend of elemental carbon concentration with changes in major sources at Mega city Nagoya, Central Japan, *Atmos. Environ.*, 199, 155–163. doi:10.1016/j.atmosenv.2018.11.014.
- Yamaguchi, T., G. Feingold & J. Kazil (2017), Stratocumulus to Cumulus Transition by Drizzle. J. Adv. in Model. Earth Sys., 9(6), 2333–2349.
- Yasunari, T. et al. (2018), Extreme air pollution events in Hokkaido, Japan, tracked back to early snowmelt and largescale wildfires over East Eurasia: Case studies. *Sci. Rep.* 8, 6413, doi:10.1038/s41598-018-24335-w.
- Yoshida, A. et al. (2016), Detection of light-absorbing iron oxide particles using a modified single-particle soot photometer. *Aerosol Sci. Tech.*, 50, 1–4, doi:10.1080/02786826.2016.1146402.
- Yoshida, A. 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.
- Yu, P. et al. (2019), Efficient in-cloud removal of aerosols by deep convection, *Geophys. Res. Lett.*, 46, 1061-1069, doi:10.1029/2018GL080544.

- Zängl, G., D. Reinert, P. Rípodas & M. Baldauf (2015), The ICON (ICOsahedral Non-hydrostatic) modelling framework of DWD and MPI-M: Description of the nonhydrostatic dynamical core. *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 141(687), 563–579.
- Zanis, P. et al. (2020), Fast responses on pre-industrial climate from present-day aerosols in a CMIP6 multi-model study, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 8381–8404, doi:/10.5194/acp-20-8381-2020
- Zhang, X. et al. (2011), Light-absorbing soluble organic aerosol in Los Angeles and Atlanta: A contrast in secondary organic aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L21810, doi:10.1029/2011GL049385.
- Zhang, A. et al. (2020), Modeling the global radiative effect of brown carbon: a potentially larger heating source in the tropical free troposphere than black carbon, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 1901–1920, doi:10.5194/acp-20-1901-2020.
- Zhang, D. F. et al. (2009), Simulation of dust aerosol and its regional feedbacks over East Asia using a regional climate model, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1095–1110, doi:10.5194/acp-9-1095-2009.
- Zhang, Q. et al. (2019), Drivers of improved PM_{2.5} air quality in China from 2013 to 2017, *Proc. Natl Acad. Sci.*, 116, 24463–24469, doi:10.1073/pnas.1907956116.
- Zhao, A., C. L. Ryder & L. J. Wilcox, (2022), How well do the CMIP6 models simulate dust aerosols?, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 2095–2119, doi:/10.5194/acp-22-2095-2022.
- Zhao, G., T. Tan, Y. Zhu, M. Hu and C. Zhao (2021), Method to quantify black carbon aerosol light absorption enhancement with a mixing state index, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 18055– 18063. doi:10.5194/acp-21-18055-2021.
- Zhao, R. et al. (2015), Photochemical processing of aqueous atmospheric brown carbon, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 6087– 6100. doi:10.5194/acp-15-6087-2015.
- Zheng, B. et al. (2018), Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmos. Chem. Phys.*, 18. 14095-14111,

doi:10.5194/acp-18-14095-2018.

- Zheng, B. et al. (2021), Changes in China's anthropogenic emissions and air quality during the COVID-19 pandemic in 2020, *Earth Syst. Sci. Data*, 13. 2895-2907, doi:10.5194/essd-13-2895-2021.
- Zong, R. et al. (2021), Impact of hematite on dust absorption at wavelengths ranging from 0.2 to 1.0 μm: an evaluation of literature data using the T-matrix method. *Opt. Express*, 29, 17405–17427, doi:10.1364/OE.427611.

原稿受領日: 2022 年 5 月 17 日 掲載受理日: 2022 年 11 月 20 日

#### 著者所属:

- 1. 名古屋大学 大学院環境学研究科
- 2. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所
- 3. 名古屋大学 高等研究院
- 4. 国立極地研究所
- 5. 総合研究大学院大学 複合科学研究科
- 6. 金沢大学 環日本海域環境研究センター
- 7. 電力中央研究所
- 8. 気象庁 気象研究所
- 9. 東京大学 大気海洋研究所
- 10. 北海道大学 大学院理学研究院
- 11. 理化学研究所 計算科学研究センター

## * 責任著者:

Hitoshi Matsui <matsui@nagoya-u.jp>



## 成層圏・中間圏の大気化学の諸問題

Issues of Atmospheric Chemistry in the Stratosphere and Mesosphere

江口菜穂,山下陽介,秋吉英治,酒井哲,長濱智生,冨川喜弘,中島英彰, 杉田考史,坂崎貴俊,斉藤拓也,水野亮

## 成層圏・中間圏の大気化学の諸問題

## Issues of Atmospheric Chemistry in the Stratosphere and Mesosphere

## 江口菜穂¹,山下陽介²,秋吉英治²,酒井哲³,長濱智生⁴,冨川喜弘⁵, 中島英彰²,杉田考史²,坂崎貴俊⁶,斉藤拓也²,水野亮^{4*}

成層圏は,対流圏と力学的な相互作用や物質交換で相互に影響を及ぼしあっている。成層圏に分布 の極大をもつオゾン層は、太陽からの有害な紫外線を吸収して地球上の生態系を守るだけでなく、紫 外線による加熱と赤外線による冷却を通して、大気のエネルギー収支で重要な役割を果たしており、 地球の気候を考える上でも重要である。オゾン自身も温室効果ガスであるが、人為的オゾン層破壊対 策を通して代替ガスとして使用されるようになった HCFC や HFC なども長寿命の強力な温室効果ガス として働くため、こうしたオゾン層破壊対策の気候影響も成層圏に関わる課題として研究し、追跡して いなければいけない。人為的オゾン層破壊の最も著しい顕れであるオゾンホールにより、大気の循環 場が影響を受けていることなども示唆されており、化学気候モデルでオゾンと気候の相互作用を取り 扱うことが重要となっている。成層圏エアロゾルは、大規模な火山噴火や近年大規模化および長期化 している森林火災を通して1-2年で全球的に成層圏の環境を変化させ、大気循環や化学反応に影響 を与える。また,中間圏は太陽,磁気圏などの地球外の環境変動の影響を直接受けやすく,それらの 影響がより下層の大気組成や気候にどのように及んでいくのか関心が高まり、研究が進展しつつある。 観測的な課題としては、対流圏と成層圏の遷移領域において、より微細で精緻な観測データが継続 的に取得されることが極めて重要である。また中間圏以上では、これまで限られた観測点のみで得ら れてきた下部熱圏を含む領域の全球的な気象場データが超高層物理学の研究者らからも求められ、 SMILES などのミリ波,サブミリ波観測で培われた手法をさらに進化させた分野融合的な研究の発展 の可能性も議論されている。

## 1. 対流圏と成層圏の結合/物質交換

## 1.1 対流圏界面の定義

対流圏と成層圏の境は、一般的に気温減率による 対流圏界面(lapse rate tropopause)定義される [WMO, 1957]。しかし、成層圏-対流圏間の物質交換 (Stratosphere - Troposphere Exchange; 以後 STE) [e.g., Holton et al., 1995]に着目した場合,注目する 物理量(水蒸気、オゾン、放射等)によって、対流圏 界面高度は異なることが知られている。これは、対流 圏的性質から成層圏的性質に徐々に遷移する対流 圏界面遷移層 (tropical/extratropical transition layer; TTL/ExTL)として2000 年代前半に活発に議論され, 熱帯対流圏界面の捉え方に対するパラダイムシフト が起き,現在では広く認識されている [e.g., *Fueglistaler et al.*, 2009; *Gettelman et al.*, 2011]。また, 二重対流圏界面 (double tropopause)や多重対流圏 界面 (multiple tropopause)といって,上下方向に複 数の対流圏界面が存在することもある。これは主に冬 季の亜熱帯ジェット極側で見られる[*Randel et al.*, 2007]。さらに対流圏界面逆転層 (tropopause) inversion layer)や対流圏界面褶曲(tropopause folding)といった,成層圏へ伝播する波活動や物質 輸送の観点で重要な圏界面も存在する。逆転層はそ の安定度が高いため,成層圏の力学場のエネルギ 一源である波活動が上方伝播できず,結果的にSTE 過程も不活発となる。一方で対流圏界面褶曲現象は, 主に中緯度ジェットの湾曲によって引き起こされるこ とが多く,中緯度と低緯度域において,物質面である 温位面を跨ぐ空気の交換・混合が行われている [Holton et al., 1995]。

#### 1.2 対流圏界面付近の観測の困難さ

気温減率の圏界面は一般的に最低気温で定義される圏界面よりも数 km 下に位置し,さらに,熱帯域において晴天下での放射加熱率が 0 K/day となる放射的対流圏界面(radiative tropopause)は,積雲対流が浮力を失う,TTL の下端高度(約14 km)に近い。 極域,熱帯問わず,気温減率の対流圏界面とオゾンによる ozone tropopause においても季節によってその差に違いはあるが,高度が異なる[e.g., Fueglistaler al., 2009]。ここで注目すべきは,これらの各対流圏界

面の時空間スケールは小さく(変動が激しく),複雑 である点である。そのため、対象とする化学種の寿命 によって,時間方向にも短期間に密に観測する必要 がある。一方で、中間圏以下では極低温となることか ら放射量(特に赤外域)が弱く、人工衛星による観測 も高スペクトル分解能で、かつ大気を横から観測する リム(周縁)放射観測や掩蔽観測が望ましい。また、 地上からの観測においては、微量気体成分の供給 源(水蒸気や一酸化炭素は下部対流圏,オゾンは中 部成層圏)から離れていることから濃度が低く、高精 度での観測が求められる。結果的に上部対流圏から 成層圏の観測は対流圏中下層に比べて極めてデー タの量が不足し、質も低く、不十分である。以上のこと から,対流圏界面近傍の力学,化学,放射過程を精 密に論ずる場合,時間・鉛直方向に分解能の高い観 測が必要不可欠である。

### 1.3 STE 研究の不確定性要因

上述したように, STE 研究には高度な観測データ が必要である。昨今の人工衛星観測による気温, 微 量気体成分の鉛直分解能は, 受動型センサーのリム



図 1 成層圏および中間圏における大気化学に係る諸現象の概観。それぞれの高度,緯度帯で大気の循環,輸送,化学反応等を通して,大気分子の生成・消滅や放射収支で重要な役割を演じる分子や現象を示すキーワードが描かれている。

観測では, 数 km と粗く, 成層圏-対流圏間の物質循 環を定量的に捉えることが難しい。その結果,力学, 化学, 放射過程の詳細な機構が明らかとなっていな い。高分解能な観測の欠損は数値モデルの不確定 性を増している原因でもあり、対流圏内だけで議論し がちな気候変動研究の不確定性を残している一因と 考えられる。例えば、二酸化炭素収支の消失源とし ての成層圏以高の役割や,それによる放射収支バラ ンスの変化による対流圏気候へのフィードバック過程 などである。近年では、数値計算リソースの大幅な向 上から鉛直高分解能かつ中間圏,熱圏も含めた大 気大循環モデルの計算が可能となってきた。一方, 本章 7 節で指摘するように、中層大気を観測する人 工衛星の停滞(同一測器による長期観測によって技 術進展がなく,観測データ質の向上が得られていな いという意味)が継続しているため、より微細で繊細な 成層圏-対流圏間(中間圏-成層圏間も)の物質交換 を理解するためには,飛翔体(気球,航空機,ロケット 等)や人工衛星による観測の充実が今後も必要不可 欠である。ESA では地球の放射収支に寄与する水蒸 気,温度の鉛直プロファイルと雲頂高度を観測するこ とを目的とし、広範囲の遠赤外域(15~100 µm)を高 分解能(0.5 cm⁻¹)で観測する FORUM ミッションが 2025 年中頃に打ち上げを予定している。これにより 上部対流圏 (upper troposphere; UT)の水蒸気を2 km 鉛直分解能,1 ppmv の不確定性で観測が可能とな り、地球の遠赤外域の放射収支を定量的に理解する ことが可能となる。

#### 1.4 成層圏と対流圏の関係と STE

成層圏の南北循環場である Brewer-Dobson 循環 (BDC)は、対流圏から伝播してきた惑星規模の波の 砕波によって、極向きの流れを生じることで駆動され ている[*Brewer*, 1949; *Holton et al.*, 1995; *Plumb*, 2002]。 BDC は2つの経路, shallow branch と deep branch が ある。shallow branch は成層圏最下部 (lowermost stratosphere)に現れ,熱帯域で空気の上昇と亜熱帯 と中緯度域で空気の下降を伴う。一方の deep branch は上部成層圏に到達し,中高緯度域で空気の下降 を伴う。特に波の活動度は夏季より冬季に活発であ るため,低緯度夏半球側から高緯度冬半球側への 流れが生じる。一般的に惑星波の活動度は北半球 冬季の方が活発であるので,南北両半球で循環強 度に差がある。

低緯度では上昇流,極域では下降流となることか ら,一般的に赤道域で対流圏から成層圏への空気 塊の輸送が,逆に極域で成層圏から対流圏への輸 送が行われている。さらにBDCは低緯度の上部成層 圏を中心に生成されたオゾンや熱帯対流圏界面を 通過してきた対流圏起源の物質(オゾン破壊物質 (Ozone Depleting Substance; ODS)を含む)を極向き に輸送する働きがあり,成層圏の全域における化学 過程にも影響を与えている。上述した BDC は deep branch に対応し,これらの deep branch および shallow branch は成層圏内の大気年齢(Age of Air; AoA)に深く関係している[*Hall & Plumb*, 1994; *Waugh & Hall*, 2002]。また STE に関して,前者は数 年,後者は数か月程度の時間スケールをもっている [*Birner & Bönisch*, 2011]。

熱帯太平洋の海表面温度(sea surface temperature;SST)は、対流活動を通して対流圏界面 付近の気温を変えることで成層圏に流入する水蒸気 量に影響する[WMO, 2018]。またエルニーニョ、ラニ ーニャによるSST条件の違いは、対流圏界面付近の 気温に影響するため、成層圏に流入する水蒸気量も 変化させる[Konopka et al., 2016; Garfinkel et al., 2018]。化学気候モデル(Chemistry-Climate Models; CCMs)では、将来の熱帯対流圏界面付近 での輸送の強化により下部成層圏の水蒸気量が増 大すると予測されている[Smalley et al., 2017]。一方で、 対流活動が活発になると上層がより冷えて、水蒸気 量は減るとの見方もあり[Kuang & Bretherton, 2004], 今後の観測・モデル研究が待たれる。

中層大気研究の歴史の中で,成層圏の力学場は

対流圏の変動に受動的と考えられてきた。しかし、 STE は成層圏内の力学・化学・放射過程に影響を与 えているだけでなく、これら成層圏内の諸過程の変 化を介して STE 過程や対流圏にも影響を与えている。 1980年代から 2000年代において, 特に高緯度域で の成層圏から対流圏への寄与が活発に議論されて きた。代表的なものとして、ダウンワード・コントロール (downward control) 説[Haynes et al., 1991]や NAO, AO, SAM (または AAO) による高緯度対流圏の気 象・気候場への影響である。2010 年代になると熱帯 域での成層圏から対流圏への影響の議論が本格化 される。熱帯対流圏界面遷移層のパラダイムシフト後 の時期にあたる。同時期に北半球冬季の赤道域で ⑦ Stratospheric fountain[Newell & Gould-Stewart, 1981]に関する低温,低水蒸気濃度の成層圏への流 入の議論だけでなく[Dessler,1998; Holton & Gettelman, 2001], 北半球夏季のモンスーン(アジアと アメリカ)域における高水蒸気濃度の空気塊やアジア 域の汚染物質の流入等の STE の議論も活発になさ れた[Park et al., 2007; Randel et al., 2010]。

赤道域と南極域での大気レーダーによる超高層ま での統一的な観測や,気球を用いた定点観測,航空 機によるイベント観測,大気球を用いた数か月単位 の観測,数値モデルの発展も目覚ましい。

赤道域に関しては,成層圏から対流圏の積雲対流 活動への影響を議論したSPARC主導のSATIO-TCS プロジェクト^a[Haynes et al., 2021]や客観解析相互比 較プロジェクトS-RIP^b[S-RIP final report, 2022]も精力 的に行われている。SATIO-TCSでは,成層圏準2年 周期変動(QBO)と成層圏突然昇温(SSW)のSTEに 関して理解が深まった。その中で,対流圏内の積雲 対流活動と成層圏 BDCの連続性を統一的に扱える 数値モデルの構築が目下の課題と言える。これまで

^a https://www.sparc-climate.org/activities/satio-tcs/

^c https://sower.ees.hokudai.ac.jp/jp/index.html

の大循環モデルでは成層圏は境界条件として, ナッ ジングや気候値もしくは月平均値として与えられてい た感が否めない。今後は, 計算機能力の向上もあり, 統一的に解く数値モデルの発展が期待される。さら に化学過程に関しても精緻化し, データ同化等, 新 たな技術を導入することで, より現実的な数値解析が 可能となるだろう。しかし根本的には観測データによ る検証が必要不可欠である。

### 1.5 STE 研究における日本の貢献と展望

1990~2000 年代, 主として欧米主導の人工衛星 による高層大気観測が盛んであった。日本でもみどり (ADEOS), みどり-II による極域オゾン研究への貢献 が挙げられる。

ほぼ同時期に衛星観測の検証も兼ねた地上観測 網の整備が行われている。上部対流圏/下部成層圏 (upper troposphere / lower stratosphere; UTLS)に関 連したものとして特に日本の研究者も参画している熱 帯域,東南アジアにおける SOWER^e, SHADOZ^dプロ ジェクトへの貢献が挙げられる。また大型観測施設と して,京都のMUレーダー^e,インドネシアの赤道大気 レーダー^f,南極昭和基地のPANSY^gの設置と運用お よび中層大気研究への貢献が大きい。

また三陸および大樹町における大気球を用いた高 層大気観測^h も長期的(1971 年~)に実施されてお り,成層圏化学への寄与が大きい。さらに民間航空 機を用いた温室効果ガス等の航空機観測 (CONTRAILⁱ, IAGOS-CARIBIC^j)においてもUTLS 領域に貴重なデータを提供している。これら地上観 測データも 20 年以上の長期間のデータが蓄積され ている。

数値モデル研究に関しては,大循環モデルの高 性能化やデータ同化技術の取り込みによる力学・化

- g https://pansy.eps.s.u-tokyo.ac.jp/
- h https://www.isas.jaxa.jp/missions/balloons/
- i https://www.cger.nies.go.jp/contrail/
- j https://www.iagos.org/ https://www.caribic-atmospheric.com/Home.php

^b https://s-rip.ees.hokudai.ac.jp/

d https://tropo.gsfc.nasa.gov/shadoz/

e https://www.rish.kyoto-u.ac.jp/mu/radar.html

f https://www.rish.kyoto-u.ac.jp/ear/

学過程の理解が深まった一方で,成層圏の力学場 および化学過程を再現可能な大循環モデルをさらに 高度化する必要がある。

観測データと数値モデルを融合した研究が今後も 継続し,有益な結果を遺すと考えられる。衛星観測 に合わせた数値モデルの解析,新しい解析ツールの 開発も必要不可欠であろう。特に数値モデルにおい ては,積雲パラメタリゼーションや重力波パラメタリゼ ーションの改良, 向上も中層大気の力学過程に大き く貢献する。最近,非静力学全球モデル(NICAM) [Satoh et al., 2014]の中層大気への拡張の開発が進 んでいる。また大気化学輸送モデル(ACTM)による UTLS 領域の再現性に関する研究も進みつつある [Bisht et al., 2021]。特に極短寿命種(VSLS)(CHBr3, CH₂Br₂等)に関しては UTLS 領域での素過程は明ら かになっていないことが多く、ここでの観測データに よる数値モデルの改良が切望されている[Hossaini et al., 2016]。近年では成層圏内の鉛直分解能を上げ ることで、成層圏内の力学過程の再現性や STE 過程 への定量的な影響が評価できるようになってきた。

#### 1.6 今後(10年内)の課題

短寿命化学種の対流圏から成層圏への流入過程 の精緻化と成層圏オゾンへの影響,成層圏二酸化炭 素の挙動およびその放射過程への影響を介した対 流圏,成層圏力学場への影響は,成層圏だけでなく 対流圏の気候変動を理解する上でも必要不可欠な 知見と考えられる。他方で,さらに上層の中間圏と成 層圏の相互作用も,近年,熱圏,中間圏における二 酸化炭素による気候影響という観点で話題を集めて いる[Liu et al., 2020]。どれくらいの量の二酸化炭素 が中層大気に流入しているのか,それによる気候影 響はどのくらいなのか,今後のより定量的な議論が必 要と考えられる。

さらに大量に得られるデータを解析する人材の育 成も今後重要な課題と言える。

# 気候変動に伴う大気循環の変化が成層圏 /中間圏に与える影響

## 2.1 温室効果ガスの変化と成層圏の気温

大気中の温室効果ガス(greenhouse gases; GHGs) 濃度の増加により,対流圏の気温上昇と成層圏/中 間圏の気温低下が起こることが知られている[Chen et al., 2021]。下部成層圏(13~22 km)においては、オ ゾン濃度の低下が 1970 年代から 1990 年代半ばまで の約1Kの気温低下トレンドの主因であるが、それ以 降には有意な変化が見られない[WMO, 2018]。中上 部成層圏においては、GHG 濃度の増加がオゾン変 化よりも大きな影響を及ぼし,近年の理解では,上部 成層圏(40~50 km)における 1979~2005 年の気温 低下のうち約 1/3 が ODS 起因のオゾン変化によるも のであり,約 2/3 が GHG によるものと推定されている [WMO, 2018]。CCM よる将来予測実験では、成層圏 の気温トレンドは将来の GHG 濃度に依存し, ほとん どの GHG シナリオで中上部成層圏における気温低 下を示す。気温低下によりオゾン消失反応が減速す ることに伴うオゾン濃度の増加は、GHG 増加による気 温低下を部分的に打ち消す[WMO, 2018]。

## 2.2 温室効果ガスの変化が成層圏の大気循環に与 える影響

1 章で述べたように成層圏には赤道域から極域に 向かう大気の循環 (BDC) がある。以前は、下部成層 圏の熱帯域上昇流の変化に焦点が当てられていた が、近年の研究では、成層圏循環の2つの経路、 shallow branch と deep branch を区別することの重要 性が浮き彫りになってきた [Plumb, 2002; Birner & Bönisch, 2011; Bönisch et al., 2011; WMO, 2014]。 BDC は波の消散によって駆動され、場所によって消 散する波が異なるため、shallow branch には総観規 模の波、deep branch には惑星規模の波が主要な役 割を果たす [Plumb, 2002]。

現在,多くの気候モデルにおいて,GHG濃度の上昇により大気波動の消散が促進されることで BDC が

強化されることがシミュレートされている[e.g., Waugh, 2009; Butchart, 2014; WMO, 2014; WMO, 2018]. U かし、BDC のトレンドは小さく自然変動と分離するの が難しいため観測で検出するのは容易ではない [WMO, 2010]。直接観測に代わる方法として、気温の 緯度分布, QBO の振幅, 大気微量成分濃度, 大気 の平均年代もしくは AoA など他の変数の変化から推 定されてきた。例えば、熱帯と高緯度の気温変化の 位相がずれていることに基づき,下部成層圏の BDC が加速していることが指摘された[e.g., Thompson & Solomon, 2009; Fu et al., 2010]。その大 きさは 10 年間に 2%程度であると推定され [Ossó et al., 2015; Fu et al., 2015], Butchart [2014]などの気候モ デルの結果と一致する。QBOの振幅を調べる方法は ユニークで,赤道成層圏における波の消散で駆動さ れる OBO の下降が、その領域に存在する上昇流で どれだけ妨げられるかで上昇流の変化を推定する。 Kawatani & Hamilton[2013]は、ほぼ赤道上の観測 点におけるラジオゾンデの東西風から70 hPa におけ る QBO の振幅が 1953~2013 年の間に有意に減少 することを明らかにし、成層圏最下部において QBO の下降を妨げる上昇流が増大していると考えた。大 気微量成分濃度の変化から BDC の変化を推定する 手法では, 1985~2010年の衛星観測とオゾンゾンデ を用いた研究があり,熱帯成層圏最下部でオゾン減 少が観測され、下部成層圏における BDC の加速と 整合的であった[Randel & Thompson, 2011; Sioris et al., 2014]。AoAは, 熱帯域の対流圏界面から入った 空気がある到着地点まで輸送されるのに必要な時間 として定義される。Stiller et al. [2012]は、衛星観測の SF6 鉛直プロファイルから下部成層圏における AoA の減少を示し, Seviour et al. [2012]や Diallo et al. [2012]による客観解析の循環やAoAの解析結果もこ うした shallow branch における BDC 加速を支持して いる。客観解析の上昇流は下部成層圏で10年間に 2~5%程度増加しており[Fueglistaler et al., 2014; Abalos et al., 2015; Miyazaki et al., 2016], 定量的にも

気候モデルと一致する結果が出てきている。一方で、 中・上部成層圏では、気温から推測される BDC 加速 とは対照的に、*Stiller et al.*[2012]の SF₆の測定では BDC 減速が示され、*Diallo et al.*[2012]ではほとんど統計 的な有意性がないことが示されている。このように、 deep branch については BDC 加速がそれほど明確で はない。今後も継続的な観測や客観解析の改善、気 候モデルの高度化等を進め、特に deep branch にお ける BDC 変化の知見が得られることに期待したい。

## 2.3 代替フロンが成層圏の気温および大気循環に 与える影響

GHGのうちモントリオール議定書のキガリ改正で新た に規制対象に加わったハイドロフルオロカーボン (HFC)は、地球温暖化指数が100~10.000のオーダ ーであり、大きな温室効果を持つ。我が国では、2020 年度の温室効果ガス総排出量11億5000万トン(CO2 換算) のうち HFC が 5170 万トンであった (NIES GIO 2022/4 確報値)。ガス毎の内訳では、2013~2020年 までに HFC 排出量は 61.0% (1960 万トン, CO2 換算) 増大し,全体の排出量削減分(2億5900万トン,CO2 換算)の1割弱を相殺する程度に達していた。HFC 濃度が増大した際の気温変化は、CO2 とは異なり成 層圏でも気温上昇に働くと推定されており,気温変 化が0となる高度は上部成層圏や中間圏に達する [Hurwitz et al., 2015]。なお, HFC 濃度が増大した際 の中高緯度循環の変化は,力学的な擾乱の影響が 大きく判然としない[Dupuy et al., 2021]。このように HFC 濃度増大の大気循環への影響についてはまだ 理解が不十分であり、今後 HFC の化学変化と放射を 組み込んだ CCM による多くのアンサンブル実験など で影響の大きさを明らかにしていく必要がある。

## 2.4 成層圏および中間圏での気温・大気循環の変動 とその要因の多様性

中間圏においては、昼間よりも夜間にオゾン濃度

が高く,上部中間圏において日変化が顕著である [Brasseur & Solomon, 2005]。こうしたオゾン濃度の変 化は,日食時の太陽光掩蔽でも生じることが SMILES (Superconducting Submillimeter-wave Limbemission Sounder)の観測から示された[Imai et al., 2015]。直接観測の難しい中間圏オゾンの化学プロ セスを理解する上で,今後も日食時の衛星観測の利 活用が期待される。

中上部成層圏においては、メタン(CH4)の酸化に よる水蒸気供給があり、将来の CH4 濃度の影響を強 く受けると考えられる[Revell et al., 2016]。多くの気候 モデルにおいて対流圏界面付近の気温に影響を与 えるプロセスは十分に取り入れられておらず[Kim et al., 2013],将来の大気微量成分の研究においても気 候モデル開発の成果を反映させていく必要がある。

夏極の中間圏界面付近は地球大気で最も低温と なっており、氷粒子を主成分とする夜光雲(極中間圏 雲;PMC)が発生することがある。中間圏の気温には、 放射バランスの他、大気重力波も関係している。こう した気温や上述の水蒸気量が夜光雲の発生と関係 するため、夜光雲は気候変動の影響を早期に検出 するための指標になることが議論されている [García-Comas et al., 2016]。具体的には、CO2 濃度 の増加は上部中間圏や下部熱圏を冷やし、CH4 濃 度の増加は中間圏界面付近の水蒸気量を増やすた め、両者とも夜光雲の発生を促進する[Yue et al., 2015; Garcia et al., 2015]。

成層圏・中間圏の大気微量成分分布や循環は 様々な変動の影響も受ける。中高緯度域成層圏の大 気波動は消散によって BDC を駆動するため, BDC の強さやそれによるオゾン輸送は,大気波動の伝播 特性を変化させる太陽 11 年周期などの影響を受け る [Kodera & Kuroda, 2002; Gray et al., 2010; Yamashita et al., 2010]。上部中間圏においては, 11 年周期に伴う気温変化も無視できない。太陽プロトン イベント発生時には,両極で NOx 濃度が増大し,オ ゾン破壊が促進されることがある[von Clarmann et al., 2013; Sinnhuber et al., 2018]。また QBO による BDC の変化[Plumb & Bell, 1982]は、赤道域周辺のオゾン 等の物質分布にも現れる[Baldwin et al., 2001]。ODS 濃度の変化によるオゾン変化も、極域周辺の東西風 を変えて BDC に影響しうる[WMO, 2018]。太陽 11 年 周期と QBO など異なる変動の影響は必ずしも足し合 わせにはならない。将来の長期的な GHG 増加、オゾ ン回復下における年々変動の影響評価には今後の研究が待たれる。

## 3. オゾン層の現代的問題-オゾン層問題と 温暖化問題の両方の観点から

## 3.1 オゾン層変化のこれまでの経緯

20世紀後半から、オゾン層は人為起源の ODS (特 にフロンガス)の大気中への放出による影響を大きく 受け、その結果オゾン層破壊が進んだ[WMO, 2003]。 1980年代には南極にオゾンホールが出現し、その後 1990年台に拡大、オゾンホールは現在も毎年起こっ ている[Chubachi, 1984; Farman et al., 1985; WMO, 2018]。大気汚染等に関係する対流圏のエアロゾル が比較的少ない南半球では、オゾン量の減少と紫外 線の増加との関係がはっきりと観測されている[WMO, 2007]。

モントリオール議定書による世界的なフロン規制や 代替フロンへの移行により、オゾン量がほぼ化学反 応で決まる上部成層圏でまずオゾン濃度の回復が確 認され [Newchurch et al., 2003; Steinbrecht et al., 2017], 近年では 9 月に限りオゾンホールの回復(南 極域のオゾン全量の回復)が見え始めているが [Solomon et al., 2016; Stone et al., 2021], 2020年と 2021年は安定した南極渦が持続したことによって, オゾンホールがこれまでの最大規模に近い大きさま で成長した[NASA Ozone Watch^k]。オゾンホールはフ ロン量だけでなく,大気の力学場の状態によっても影 響を受けることを示している。また, 2020年のオースト

k https://ozonewatch.gsfc.nasa.gov/

ラリアの森林火災によって下部成層圏で増加したエ アロゾル(すす粒子など)が同年の南極オゾンホール の大きさに何らかの影響を与えた可能性がある [*Rieger et al.*, 2021]。

今後は、フロンや代替フロンの規制の効果によっ て、大気中の ODS 濃度が減少し、オゾン層の回復が 顕著になってくるものと思われる。一方で、二酸化炭 素(CO₂)を代表とする GHG は、パリ協定などの取り 組みによってその大気中への放出抑制に向けた取り 組みが本格的になってきているが、今後しばらくは増 加を続ける見込みである。したがって、今後のオゾン 層は、大気中の ODS 濃度が減少していく中で、増加 する GHG 濃度の影響も受ける。それによってオゾン 層は、成層圏の気温や成層圏大気のグローバルスケ ールの循環の変化から影響を受けると同時にそれら に対しても影響するといった相互作用の中で、数十 年の時間スケールで変化していくものと考えられる。

## 3.2 将来のオゾン層破壊物質濃度の変化から予想 されるオゾン層変化

フロン(CFC), ハロン, 代替フロン(HCFC)の成層 圏大気への影響は、これらの物質が温室効果ガスと して働いて大気を温める効果と[Forster & Joshi, 20051、これらの物質が分解して塩素や臭素原子を 放出,その後これらの原子によるオゾン破壊の触媒 サイクルが働いてオゾン層破壊を起こし,成層圏の気 温や風を変化させる効果とがある。CFC 類の大気中 の濃度はすでに減少に転じているが、HCFC 類は、 上昇率は小さいがまだ増加している[WMO, 2018]。 HCFC は CFC に比べて対流圏で分解されやすいの で CFC に比べて寿命が短く, オゾン層破壊効果は CFC ほど大きくはないが、その一部は CFC と同様に 成層圏まで達して成層圏の塩素濃度を上昇させ,長 期的にオゾン層へ影響する[WMO, 2014; WMO, 2018]。ハイドロフルオロカーボン(HFC)は塩素や臭 素原子を含まないため, 化学的なオゾン層破壊効果 はない。しかしながら強力な温室効果ガスとして働き、 モントリオール議定書のフロン規制による気候変動の 緩和効果がその代替物質によって相殺されることを 防ぐため,モントリオール議定書のキガリ改正によっ て議定書の規制物質に追加された[WMO, 2018; 経 済産業省・キガリ改正の概要 2017]。HFC 類の大気 中の濃度は顕著な増加を続けている[WMO, 2018]。 しかしながら2次元モデルや3次元モデルを用いた 数値計算からは,HFC の増加によってオゾン量が増 加する高度と減少する高度とが混在し,鉛直方向に 積算したオゾン全量に対しての影響は小さいようであ る[Hurwitz et al., 2015; Dupuy et al., 2021]。

将来,大気中のオゾン量を左右する因子について は,フロン規制によりフロン・代替フロン・ハロンの影 響は相対的に減ってくるものの,今後20~30年の間 はこれらが最重要因子であり続けると考えられる。そ の後は二酸化炭素,成層圏の水蒸気(H₂O),亜酸 化窒素(N₂O),メタン(CH₄),代替フロンとしての HFCの動向が複雑に影響するようになると考えられる。 これらは温室効果ガスであるので,その量の増減が 成層圏大気の気温にも影響する。

N₂O は、フロンやハロンに代わって将来大気中の オゾン量を減少させる最も有力な候補である [Ravishankara et al., 2009]。化学肥料の使用などによ り大気中のN2O濃度が増加すると、成層圏でNOxが より多く生成され、それに伴い硝酸(HNO3)の量も多 くなることが予想される。NOx の増加は,成層圏にお ける NO_x によるオゾン破壊触媒サイクルの効率を上 げ、オゾン全量の減少を引き起こす[Ravishankara et al., 2009, Fig.S1; WMO, 2018, Fig.Q20-3]。その他の 可能性としては、HNO3 増加による極域下部成層圏 春季オゾン量への影響が考えられる。極域下部成層 圏で冬季に極端に気温が低下すると HNO3 は水蒸 気や硫酸と共に極成層圏雲(PSC)を形成し,不均一 反応を促進して HCl や ClONO₂に含まれる塩素原子 を活性化するので、HNO3 増加による PSC の増加に よって極域下部成層圏春季のオゾン層破壊がいっそ う進むことも考えられる。ただし、この効果は塩素や臭

素濃度がオゾンホール出現以前より高い場合に限られる。

CH4の増加はその酸化によって成層圏の水蒸気 量を増加させ、水蒸気と励起 O 原子との反応で水素 酸化物(HOx)を増加させる。45 km 以上の高度では HO_x サイクルによるオゾン分解を加速するが,45 km 以下の高度では CH4 と Cl との反応によって, あるい は NO_xと HO_xとの反応によって, 塩素酸化物(ClO_x) ならびに NO_x の濃度を減らし、これらの化合物による オゾン破壊触媒サイクルの効率を落とす効果がある。 また,対流圏と同様に下部成層圏でも,光化学スモッ グと同様, NO_xを触媒とした光化学的なオゾン生成が 進む可能性がある。さらに、CH4の酸化で水蒸気が 増加した結果,成層圏の赤外放射収支が CH4 による ものとは異なってきて、より成層圏が冷却されるように なることが考えられる[WMO, 2014]。成層圏の冷却は, オゾンに関わる気相反応の温度依存性,特に O+O3 →O₂+O₂の反応の温度依存性によりオゾン量を増 加させる。ただし、CH4 が水蒸気に変わることによる 成層圏の冷却効果はCO2の増加による冷却効果より かなり小さいと思われる。以上を総合すると CH4 の増 加はオゾン全量を増加させる方向に繋がると考えら れる。

## 3.3 地球温暖化に伴うオゾン層変化

オゾンの輸送に関しては,温室効果ガスによる地 球温暖化の影響を大きく受ける。多くの化学気候モ デルでは,GHG の増加に伴う成層圏の寒冷化と子 午面循環(BDC)の強化により,熱帯と南極以外はオ ゾン全量が増加した。南極域はGHG 濃度への感度 がほとんど見られず,熱帯はGHG 濃度の増加によっ てオゾン全量が減少していくという結果が得られてい る[Dhomse et al., 2018]。

将来, GHG の増加とフロン対策による大気中の塩 素濃度の減少とによって, オゾン全量が CFC のなか った時代のレベルよりも増加する super recovery の可 能性もある[*Chipperfield et al.*, 2017; *Maliniemi et al.*, 2021]。その場合,紫外線量の減少や大気微量成分の濃度変化,さらには気候への影響も懸念される。

今後温暖化が進む中でのオゾン層変化の予測を より信頼のあるものにするために、オゾン層に影響を 及ぼす微量成分の対流圏から成層圏への輸送や対 流圏と成層圏大気の交換時定数を正確に把握する 必要がある。成層圏の放射収支に影響し PSC の材 料になる成層圏の水蒸気量は,熱帯圏界面の気温 に左右され熱帯成層圏では気温と水蒸気量の明確 な関係が観測されているが[Mote et al., 1996], 中緯 度や極域の成層圏水蒸気量の数十年規模の長期的 な変化のメカニズムに関しては、その説明が難しい [WMO, 2018]。したがって将来の,特に下部成層圏 の水蒸気の増減に対してはっきりとしたことは言えな い。熱帯のみならず, 亜熱帯や中緯度の対流圏界面 付近で起こる輸送プロセスが関係しているかもしれな い。水蒸気に加えてメタン(CH4), フロンやハロン等, オゾン層に影響を及ぼす微量成分が成層圏へ入っ ていくプロセスを理解し,温暖化に伴ってそのプロセ スがどのように変化するかを予測するために、高精度 な測定器の開発,観測データの蓄積,より短い時間 スケール・細かい空間スケールの現象を取り扱うこと のできる高解像度モデルの開発が必要である。

#### 3.4 オゾン層変化が気候に及ぼす影響

最後に大気化学からは少し逸れるが,化学気候モ デルや観測事実から明らかとなったオゾン層変化が 気温や風の気象場の変化に及ぼす影響について簡 単に触れる。

オゾンホールの発達によって, 南極成層圏の西風 が強まりその影響が南極の対流圏にも及ぶこと[Son et al., 2008], さらに, それが南極周辺の海洋循環お よび海洋中の CFC-12 の分布に影響を及ぼすこと [WMO, 2018; Sigmond et al., 2011; Solomon et al., 2015; Waugh et al., 2013]が示唆された。また, 1979-1997 年の成層圏の気温の変化は, ODS 濃度増加に よるオゾン量の減少の影響を受けていることがわかっ た[Aquila et al., 2016]。近年,温暖化に関する数値実 験では以前のようにオゾン分布を与えるのではなく、 化学気候モデルを使った,あるいは化学気候モデル と同様にモデルの中でオゾンをオンライン計算する 例が増えている。そうすることによって、オゾンと気温, 風の相互作用が取り入れられ, 温室効果ガスの増加 による成層圏や対流圏の気候変化をより正しく理解 できることが期待される[Chido & Polvani, 2019]。オゾ ンと気象場との相互作用を取り入れることで,熱帯下 部成層圏や極域成層圏の気温の variability が増加 することや[Yook et al., 2020; Rieder et al., 2019], 南極 のみならず北極オゾン破壊の地表気温への影響も 見られること[Calvo et al., 2015], 観測データからも 2020年の北極域における大規模オゾン破壊の地表 気温への影響が見られること[Xia et al., 2021]など,オ ゾン層変化の気候への影響に関する新しい知見が 得られている。

## 4. 成層圏におけるエアロゾルの影響

#### 4.1 成層圏エアロゾルの起源・種類とその影響

下部成層圏(高度約 12~30 km)には硫酸塩を 主成分とするエアロゾルが全球に分布している。 その主な起源は、火山噴火で放出される二酸化硫 黄(SO₂)や硫化水素(H₂S)、海洋生物、森林火災 などのバイオマス燃焼や人間活動から放出され る硫化カルボニル(OCS)、硫化ジメチル(dimethyl sulfide, DMS, C₂H₆S), H₂S等の気体である。これ らの気体は主に熱帯対流圏界面遷移層(TTL)付 近で粒子化して下部成層圏に流入すると考えら れている(ただし、巨大火山噴火や大規模森林火 災では気体として成層圏に流入し、そこで粒子化 する)。その後エアロゾルは成層圏内で BDC にの って数年の間に中高緯度へ輸送され、対流圏-成層 圏交換過程や重力沈降により対流圏に除去され ると考えられている。

硫酸エアロゾルが気候や大気化学環境に与える主な影響は以下の3つである。1)太陽放射を

散乱・地球表面からの赤外放射を吸収し、正味で は負の放射強制力を与えること、2) エアロゾル 表面での不均一化学反応によりオゾン等の気体 物質に影響を与えること、3) エアロゾルからの 赤外放射により周囲の大気を加熱し、大気循環に 影響を与えることである。1991年6月におきたピ ナツボ火山噴火では, SO2 を含む大量の噴煙が下 部成層圏に侵入して硫酸エアロゾルを生成し、約 2 ヶ月後にその濃度は平穏時の約 60 倍に達した [e.g., Mills et al., 2016]。硫酸エアロゾルは 1~2年 かけて全球に拡散し,その影響により地球表面平 均気温が 0.1~0.5℃低下したと見積もられている [Minnis et al., 1993; Robock, 2000, 2007; Fujiwara et al., 2020]。また、エアロゾル表面での不均一反応 によって周囲の準安定な塩素化合物を不安定な 塩素化合物に変換し、成層圏オゾン破壊を引き起 こしたことが報告されている[Fahey et al., 1993; Rodriguez et al., 1994; Solomon et al., 1996].

最近では 2022 年 1 月にトンガのフンガ・トン ガ-フンガ・ハアパイ火山が大規模噴火を起こし, その噴煙は高度 57 km に達した[*Carr et al.*, 2022; *Proud et al.*, 2022]。これにより大量の水蒸気と SO₂ が成層圏に注入され[*Taha et al.*, 2022; *Millán et at.*, 2022; *Schoeberl et al.*, 2022],成層圏エアロゾルの 光学的厚さは平穏時の約5倍,ピナツボ火山噴火 後の約 1/6 の大きさ(約 0.02,波長 525nm での 60°S-60°N 月平均値)に増加した[*Khaykin et al.*, 2022]。このような高い高度まで噴煙が観測された のは初めてであり,その影響に関する研究が積極 的に行われている。

硫酸エアロゾル以外にも火山灰,バイオマス燃焼による黒色炭素・有機炭素,有機物からなるエアロゾル等が成層圏には分布している。また,上部成層圏では流星塵起源のエアロゾルも確認されている[*Cziczo et al.*,2001]。これらの成分は単体のエアロゾルとして存在するとともに,硫酸エアロゾルと内部混合していることも多い。これらの

エアロゾルの濃度は硫酸エアロゾルに比べて低 いが,光学特性や化学的性質が異なり,その分布 や気候に及ぼす影響は良く分かっていない。近年 では2017年のカナダ・北米や2019-2020年のオー ストラリアで起きた大規模な森林火災で発生し た火災積乱雲 (Pyrocumulonimbus, PyroCB)が下部 成層圏に達した。これによって成層圏エアロゾル 量が増加し,放射収支や化学物質,大気循環に影 響を及ぼした観測例が報告されている[Peterson et al., 2018; Kablick et al., 2020; Schwartz et al., 2020; Yu et al., 2021; Rieger et al., 2021]。

極域では冬季に気温が約 196 K 以下まで低下す ると、硫酸エアロゾルから硫酸・硝酸・水を主成 分とする極成層圏雲(Polar Stratospheric Clouds, PSCs)が生成される(さらに約 188 K 以下で凍結 し、水を主成分とする氷粒子になる)。PSC は表面 での不均一反応により成層圏オゾン破壊を促す [e.g., Tritscher et al., 2021]。また、森林火災粒子も オゾン層に影響を及ぼす可能性が指摘されてい る[Bernath et al., 2022; Solomon et al., 2022]。

このように,成層圏エアロゾルは全球規模の放 射収支やオゾンを含む化学物質循環に影響して いる。

#### 4.2 成層圏エアロゾルの観測手法

成層圏エアロゾルで観測すべきパラメータは 光学特性,粒径分布,化学組成,相状態等,多岐 にわたる。この点はオゾンなどの気体成分の観測 とは異なる。これらパラメータを目的に応じて精 度良く観測することが,エアロゾルが気候に与え る影響を理解し,評価するための鍵となる。

成層圏エアロゾルを観測する手法は,気球や航 空機を用いた直接観測,地上からのライダー観測, 衛星や宇宙ステーションからのリモートセンシ ングがある。直接観測ではパーティクルカウンタ ーを用いた粒径分布測定,フィルターサンプリン グによる電子顕微鏡観察,レーザー質量分析計を 用いた化学組成分析等が行われている。ライダー 観測ではレーザー光を上空に向けて照射し,エア ロゾルによって後方散乱された光を受信するこ とで,エアロゾルの光学特性(後方散乱係数や偏 光解消度等)の鉛直分布を観測する。衛星リモー トセンシングでは,太陽や恒星からの大気透過光 や散乱光,大気放射をリム(掩蔽)観測すること で,エアロゾルの消散係数や吸収係数の空間分布 を複数波長で観測する。代表的なセンサーとして は Stratospheric Aerosol Gas Experiment (SAGE),

Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars (GOMOS), Optical Spectrograph and InfraRed Imaging System (OSIRIS), Ozone Mapping and Profiler Suite Limb Profiler (OMPS/LP) がある。 リム観測以外にも衛星搭載ライダー (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization, CALIOP) による観測が行われている。日本が今後関わる衛 星観測としては, 2023 年に打ち上げ予定の日欧共 同地球観測衛星 EarthCARE にライダー (Atmospheric lidar, ATLID)が搭載され, エアロゾ ルの観測を行う予定である。

それぞれの観測手法には長所と短所がある。直 接観測の長所はエアロゾルの粒径分布や化学組 成などの詳細な特性を,高精度かつ高時間・空間 分解能(数秒~数十分・数十m~数百m)で得ら れる点である。短所は観測頻度が低く、観測領域 が飛行経路上の狭い範囲に限定される点である。 地上ライダー観測の長所は高度・時間分解能が高 い(数百 m・数時間)こと,観測が比較的容易で セルフキャリブレーションのため,長期観測に向 いている点がある。短所は観測が直上のみで、光 学的に厚い雲が無い時間に限られる点,後方散乱 係数を求める際に消散-後方散乱係数比を仮定す る必要があり, エアロゾル濃度が高い時に測定値 の不確かさが大きくなる点がある。衛星観測の長 所は広範囲の分布を比較的高い頻度(全球をカバ ーするのに2週間~1ヶ月)で長期間(数年間)

にわたって得られる点である。短所は観測の空間 分解能が直接観測に比べて粗いこと(鉛直分解能 は 1~3 km・水平分解能は 100~1000 km), エア ロゾルの光学特性を導出する際にいくつかの仮 定を必要とするため,観測値の不確かさが比較的 大きい点(平穏時では約 20%以上)がある。また, 下部成層圏の圏界面付近では雲の影響を受けて 観測値にバイアスが入る問題がある[Kent et al., 2003]。

#### 4.3 今後取り組むべき課題

成層圏エアロゾルに関して今後取り組むべき 課題を,主に *Kremser et al.*[2016]によるレビュー を参考にして紹介する。

・人間活動で放出される硫黄化合物が成層圏エア ロゾルに与える影響は良く分かっていない。その 理由として,上部対流圏~下部成層圏の SO₂ (10 ppt 以下) や OCS, DMS 濃度分布に関する直接観 測データが不足していること[Notholt et al., 2003, 2005],またそれらの物質が圏界面からどのように 成層圏に入るかについての理解が不足している 点がある。最近は,硫酸エアロゾルや先駆気体の 同位体比を測定し,人為起源物質の寄与を見積る 研究もなされており[服部ら, 2016; Hattori et al., 2020],成層圏でこのような観測を行えば新たな知 見が得られるかもしれない。

・夏季アジアモンスーンの高気圧性循環によって, 東アジア地域起源の汚染物質やエアロゾルが成 層圏に流入することが衛星観測から指摘されて いる[Vernier et al., 2011, 2015; Santee et al., 2017; Fujiwara et al., 2021]。しかし,直接観測による証 拠は少なく[Vernier et al., 2018; Höpfner et al., 2019], 今後の観測が望まれる。また観測を行うとともに, 上部対流圏-成層圏間の物質輸送過程を明らかに し,それを大気輸送モデルで的確に再現する研究 も重要であると考えられる。 ・衛星による成層圏エアロゾル観測については, 観測で得られる光学特性(消散係数)からエアロ ゾルの微物理特性をいかに精度良く推定するか, さらにそれをどのように検証するかが取り組む べき課題の一つである。また,世界の機関で協力 して観測体制を維持していくことが重要である。 データ利用の面では,複数の衛星観測データを用 いて一貫性のある全球・長期データセットを作成 することが化学輸送モデルの検証やそれを用い た影響予測にとって重要である[e.g., Kovilakam et al., 2020]。

・地球温暖化対策として、人工的に成層圏エアロ ゾル層を改変すること(Geoengineering)が提案さ れている[杉山ら,2011; NASEM, 2021]。その影響を できるだけ正確に予測することも重要である。例 えば、注入したエアロゾルが冬季の高緯度成層圏 で PSCs に成長、あるいは中緯度でそれ自身が不 均一反応を起こしてオゾン層に影響を与える可 能性もある。

・今後起こりうる巨大火山噴火や大規模な森林火 災等に備えて、1)何を観測する必要があるかを 知っておくこと、2)その観測方法を知り、必要 ならば開発すること、3)それが起きた時に、す ぐに直接観測を実施できる体制を整えておくこ と、また短期・長期的な影響を評価できるモデル を持っておくことが重要である。

今後日本が貢献できることとして,国内のみな らず観測が少ない東アジアの低緯度地域や南半 球で,国内外の研究機関と協力して観測を実施す ること[e.g., *Yoneyama et al.*, 2021; *Velazco et al.*, 2017; 杉本ら, 2017], 化学輸送モデルの開発を進 め, Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC)¹や Interactive Stratospheric Aerosol Model Intercomparison (ISA-MIP)^m等の国際コミュニティに参加し,お互いの 知見を共有していくことがある。

¹ https://www.ndaccdemo.org/

^m https://isamip.eu/home

## 5. 太陽活動, 磁気圏・電離圏の変動が成層 圏/中間圏に与える影響

#### 5.1 地球外の様々な変動と地球大気環境変動

地球大気は惑星間空間と地表との境界領域であり, 地球内外環境の様々な変動の影響を受ける。中でも 成層圏・中間圏は惑星間空間と境界を接する領域で あり、太陽活動や磁気圏活動など地球外の環境変動 の影響を最も受ける領域である。これらの影響は上 部中間圏から下部熱圏の電離圏科学として主として 超高層物理学の研究者らによって研究されてきた (例えば, SCOSTEP(Scientific Committee on Solar-Terrestrial Physics) による PRESTO (Predictability of the variable Solar-Terrestrial Coupling) プログラムな どの取り組み)。太陽活動に伴う超高層大気の熱収 支[e.g., Weimer et al., 2015]や磁気圏からのオーロラ 粒子による熱圏大気の加熱[e.g., Heelis & Maute, 2020]など、人工衛星や地上レーダーなどの観測や モデルシミュレーションにより太陽-地球結合系のな かの地球大気としての理解が進んでいる。

一方,大気科学の面からは気候変動との関連から 太陽放射変動の地球大気への影響についての研究 が進展しつつある(例えば,SPARC における SOLARIS-HEPPA などの取り組み)。気候変動への 太陽活動の影響は重要なものと認識されているが, 中層大気での具体的な物理・化学過程と地上付近 での影響については,まだ十分には理解されていな い[e.g., Gray et al., 2010]。大気へのインプットとして の太陽紫外線や高エネルギー粒子の侵入がどのよう な大気環境変動を引き起こし,またそれが対流圏ま で伝搬するのか,その場合に地表まで到達する太陽 短波長放射の影響とどのように相互影響をするのか を最先端の化学気候モデルや観測の両面から実証 的に知見を深めることが課題である。

## 5.2 高エネルギー電子の粒子降込みに対する地球 大気のレスポンス

太陽活動に伴う高エネルギー荷電粒子は,地球

磁場の磁力線に沿って運動し、おもに極域の大気に 降り込む(Energetic Particle Precipitation: EPP)。この とき、荷電粒子は大気の主成分である窒素分子や酸 素分子と衝突してそれらをイオン化し、引き続きイオ ン分子反応によって窒素酸化物(NO_x)や水酸化物 (HO_x)などを生成することで、それらが成層圏オゾン を破壊し、地球環境に影響を与える可能性が指摘さ れている[e.g., *Randall et al.*, 2005]。磁気圏から降込 むオーロラ電子はそのエネルギーが低い(数 keV 程 度)ため、極域オーロラ帯の中間圏・下部熱圏までし か降込むことができないが、そこで生成された NO_xが 極渦や成層圏突然昇温等によって下降流が生じると 下方輸送され、成層圏オゾンの破壊に寄与する(間 接効果: EPP-IE)ことが指摘されている[e.g., *Randall et al.*, 2007]。

また近年, MeV 程度のより高いエネルギーまで加 速された放射線帯の電子(Medium Energy Electron: MEE)が大気へ降り込んで成層圏まで到達し、その 場で NO_x等のオゾン破壊物質を生成してオゾン破壊 に関与する可能性が議論されている[e.g., Miyoshi et al., 2021]。MeV 電子によるイオン生成によって引き 起こされる大気組成変動に関して, SOLARIS-HEPPA の主導により CMIP-6 シナリオに MEE による イオン化プロセスを追加する形で様々な化学気候モ デルと観測との比較検証が行われた[e.g., Nesse Tyssøy et al., 2022; Sinnhuber et al., 2022]。一方, 観 測の面では MeV 電子に関して、どのようなエネルギ ー分布を持つ電子が大気圏に降り込むのか,どの高 度まで侵入するのか,その時にどのような大気組成を 生じるのか、それが地球大気環境にどのような影響を 与えるのか、といった現状の理解がいまだ十分でな い。上部成層圏・中間圏の大気組成観測はその場観 測が非常に困難であり、リモートセンシングが欠かせ ないが、衛星観測・地上観測ともに質・量が不足して おり,地球環境への影響を検証するためには観測デ ータの充実が強く望まれる。

## 5.3 太陽陽子・重イオン等の超高エネルギー粒子の 降込みの影響

2003年10月末に発生したハロウィン・イベントと呼 ばれる大量の太陽陽子放出イベント時には、太陽か らの陽子が極域成層圏全体に降り込み,上部成層圏 の NO_x 増加とオゾン減少など大気組成変動が衛星 観測により捉えられた[e.g., Jackman et al., 2005; López-Puertas et al., 2005]。太陽陽子は放射線帯電 子よりもさらにエネルギーが高いため、より高度が低 い中間圏や上部成層圏まで到達し、その場でイオン 反応により NO_x, HO_x などを生成して, オゾン破壊を 引き起こす。このような降込みイベントの発生頻度は 電子と比べて低いため、これまで主に直接効果によ る大気組成の短期変動として研究がなされてきたが、 一度イベントが発生すると極域全体の中層大気に直 接影響し,その後長寿命分子が輸送されることで全 球の大気環境に影響を与える可能性が指摘されて いる[e.g., Clilverd et al., 2005]。

さらに高いエネルギーを持つ粒子(Solar Energetic Particles: SEPs や Cosmic Ray: CR)の降込みイベント 時の大気組成変動に関する研究も,特に古気候の 観点から進展しつつある。これらの超高エネルギー 粒子は陽子や重イオンからなり、GeV 以上のエネル ギーを持つため対流圏界面付近まで粒子が侵入し、 イオン分子反応だけでなく核破砕反応により¹⁴C や ¹⁰Beなどの放射性同位体を生成する。このような高エ ネルギー粒子は地球磁場では束縛できず地球のあ らゆる場所に降り込むため,地球規模で大規模な環 境変動が引き起こされる可能性が示唆されている。 近年の宇宙線分野の研究では、西暦 774 年から数 年にわたって全球において¹⁴C 増加が検出され(例 えば, Miyake et al., 2012), 引き続いて過去1万年間 に数回,同様の超高エネルギー粒子の降込みイベン トが検出された[e.g., Usoskin & Kovaltsov, 2021]。これ らのイベントは数 100 年から 1000 年に一度と推測さ れるが,一度発生した時の地球環境への影響がどの ようなものになるのかに関しては明らかでない。現代 の化学気候モデルを活用した古気候研究とともに, アイスコアや歴史的資料等に基づいた地球大気環 境の理解など他の分野との融合した研究による挑戦 が始まりつつある[e.g., Koldobskiy et al., 2021; Hayakawa et al., 2021]。また,太陽中性子モニターな ど太陽活動に起因する超高エネルギー粒子の降込 みの検出時の大気組成変動の探査[e.g., Usoskin et al., 2020]なども始まり,歴史と現代の両面からの研究 が始まっている。

# 6. 地上観測で明らかにすべき成層圏/中間 圏の研究課題と計画

これまで議論してきた科学的課題の解決に向け, 今後さらなる観測の高精度化,高分解能化が要請さ れる。ここでは、さまざまな地上からの観測手法の中 から、気球観測, FTIR (Fourier-Transform Infrared Spectrometer)観測,マイクロ波観測について取り上 げ、それぞれの特長、国内外の状況、および今後の 計画について整理する。

#### 6.1 気球観測

気球観測は,主に対流圏・成層圏の気象要素や 微量成分・エアロゾルの直接(in situ)観測を目的とし て実施されている。一般に、水素またはヘリウムガス を詰めたゴム気球に観測装置を吊るし,高度 35 km 前後までの大気を直接観測する。人工衛星による観 測と比較されることが多いが,衛星観測が全球を同 一精度でカバーするのに対して,気球観測はある限 られた地点を高鉛直分解能で観測すること,および 衛星観測に比べて格段に低コストであることが特徴 である。特に, オゾンゾンデによるオゾン濃度の鉛直 分布観測は,1957/58年の国際地球観測年以降,世 界各地で定常的に実施されており、現在でも約70の 観測点で観測が継続されている[Tarasick et al., 2021]。 オゾンゾンデ観測は、南極オゾンホールの発見とそ のメカニズム解明に大きく貢献した[Solomon, 1999]。 一方,最強の温室効果ガスである水蒸気は,中下部

対流圏ではラジオゾンデによる相対湿度観測で測定 できるものの、数密度が地表付近に比べて 4-5 桁程 度小さくなる上部対流圏・成層圏での観測は容易で はない。しかし、同領域での水蒸気量の増加が地上 付近の温暖化に大きく寄与することが明らかとなり [Solomon et al., 2010], 鏡面冷却方式の水蒸気ゾン デを用いた観測が複数の観測点で定常的に実施さ れるようになってきたⁿ。しかし、これまで最も使用され てきた En-Sci 社製 Cryogenic Frostpoint Hygrometer [Vömel et al., 2007]の冷媒である代替フロン(CHF₃) がモントリオール議定書キガリ改正により規制対象と なったため,冷媒を使用しない新たな水蒸気ゾンデ への移行が進みつつある。このほかにも、エアロゾル の粒径分布を測定するエアロゾルゾンデや雲・降水 粒子をビデオ撮影する雲粒子ゾンデ,短波・長波放 射を測定する放射ゾンデなどが古くから使用されて いる[田中他, 1999]。さらに近年, 二酸化炭素濃度や 放射線強度を測定するゾンデなども市販され,研究 に活用されている[Ouchi et al., 2019]。

上述の気球観測では,使用するゴム気球の大きさ により観測装置の重量が概ね3kg以下に制限される。 より重い観測装置を上空に飛揚させるには、大気球 と呼ばれるポリエチレンフィルム製の大きな気球を用 いる。大気球はゼロプレッシャー気球とも呼ばれ、大 きいものは直径 100 m にも達し, 搭載可能な観測装 置の重量は1tを超えるものもある。気球下部の排気 ロを通じて外気と接しており、気球内外の圧力が等し くなっているのが特徴である。日本では、JAXA 宇宙 科学研究所の大気球実験グループ(以降,大気球実 験グループ)が国内外での大気球実験を担っており、 国内では毎年春と秋に三陸大気球観測所(1971~ 2007年)および大樹航空宇宙実験場(2008年~) において実験が行われている。大気化学分野では, 東北大学を中心とするグループにより, 三陸および 大樹でのクライオジェニックサンプラーによる観測が

**1985**年から継続されており、日本上空の成層圏にお ける温室効果ガス (CO₂, CH₄, N₂O) などの長期変 動の貴重なデータを提供している [*Nakazawa et al.*, 2002; *Engel et al.*, 2009]。

ゼロプレッシャー気球は日が沈むと気球内のガス の温度が下がってしぼんでしまうため、浮力を失い高 度が下がる。そのため、日が沈むとバラストを投下し て高度を維持するが,搭載できるバラストの量には限 界があるため,飛揚可能期間は制限される。一方, 排気口を持たないスーパープレッシャー気球は,昼 夜問わず体積を一定に保つことで,ほぼ同じ高度を 長期間(1か月以上)飛揚することができる。スーパ ープレッシャー気球には、昼の気球内外の圧力差に 耐える高い耐圧性と、気球内のガスを逃がさない高 い気密性が求められる。このような仕様を満たす小型 (直径10m前後)のスーパープレッシャー気球につい てはフランスやアメリカで既に実用化され,科学観測 [e.g., Rabier et al., 2010]だけでなく商業利用[e.g., Katikala, 2014]も進んでいる。日本においても小型ス ーパープレッシャー気球の開発が進んでおり [斎藤 他, 2021], 同気球を用いた初の科学観測が 2022 年 に南極昭和基地で実施されている[冨川他, 2021]。

気球は、人工衛星、ロケット、航空機に並ぶ重要な 飛翔体であり、特に成層圏大気を直接(*in situ*)観測 できるほぼ唯一の手段である。人工衛星、ロケット、 航空機と比較すると、格段に低コスト(1/10~1/1000) であり、小型の気球であれば船上など様々な場所で 実験可能な高い機動性を有する。小型スーパープレ ッシャー気球を用いた下部成層圏の微量成分観測も 海外では実施されており[*Haase et al.*, 2018]、日本に おいても気球の実用化と観測装置の小型・軽量化の 進展が期待される。他方で、JAMSTECを中心に成 層圏中上部の波と平均流の把握のため、高度 30~ 40 km到達をねらった 3 kg 級のラジオゾンデの定常 観測の計画が進められている[*Kinoshita et al.*, 2022]。

ⁿ https://www.ndaccdemo.org/data/measurements-analysesdirectory/long-term/locations-instrument-type
JAXA の大気球実験グループは、薄膜ポリエチレン フィルムを用いた大気球により、2013 年に到達高度 53.7 km の世界記録を達成しており、更なるフィルム の薄層化で下部中間圏の直接観測を実現しようとし ている。また、通信衛星コンステレーションによる高速 ネットワークの構築が急速に進んでおり、気球搭載観 測装置から画像を含む大容量データを送信すること も可能になろうとしている。今後、気球からの中間圏 界面大気光観測、超高分解能乱流観測など、高速 データ通信を生かした気球観測も実現するだろう。こ のように、気球、観測装置、高速通信の技術的進歩 により、観測プラットフォームとしての気球の価値は今 後ますます高まると予想される。

# 6.2 FTIR 観測

地上から上空の大気微量気体成分を測定する装 置の一つに、フーリエ変換赤外分光器(Fourier-Transform Infrared Spectrometer: FTIR) がある。大気 微量気体成分の回転・振動遷移に伴う赤外領域の 吸収線型を,太陽や月を光源に用いて高波長分解 能で分光観測したスペクトルを,インバージョン計算 することにより, 上空の微量気体成分の鉛直カラム量 やある程度の高度分布を導出する。世界的には 1980年代後半に実用化された観測手法であり、日本 では名古屋大学のグループが1995年に北海道陸別 町で観測を開始したのが始まりである。観測対象とし ては主に成層圏に分布するオゾン(O₃),硝酸 (HNO₃), 塩化水素(HCl), フッ化水素(HF), 硝酸 塩素(ClONO₂)の他に,主に対流圏に分布するメタ ン(CH₄), 亜酸化窒素(N₂O), 一酸化炭素(CO), ア ンモニア(NH₃), シアン化水素(HCN), エタン  $(C_2H_6)$ , アセチレン $(C_2H_2)$ , 硫化カルボニル(OCS), 各種フロン (CFC-11, CFC-12, etc.), 各種代替フロン (HCFCs, HFCs) などが挙げられる。なお, 各微量気 体の赤外吸収線のローレンツ幅の特徴から, 高度分 布に関する情報が得られるのは高度約30km以下に 限られる。

これら成層圏の大気観測に関する国際的な観測 ネットワークとして、1991 年に成層圏変動検出ネット  $\mathcal{D} - \mathcal{D}$  (Network for the Detection of Stratospheric Change: NDSC)というコミュニティーが立ち上げられ, 2006 年からは研究対象に対流圏を加えて大気成分 変動検出ネットワーク(Network for the Detection of Atmospheric Composition Change: NDACC)として観 測を継続してきている。この観測コミュニティーは観 測手法の違いによっていくつかのサブグループに分 かれて活動しており、FTIR の地上観測コミュニティー は赤外ワーキンググループ (InfraRed Working Group: IRWG)として活動しており,毎年各国の研究 者が持ち回りで研究会を開催してきている。日本でも 2006 年につくばで, 2013 年は北海道網走市で NDACC/IRWG 国際会議を開催した。また 2004 年か らは温室効果ガスの CO2 や CH4 の衛星観測の地 上検証として, 主に近赤外領域の吸収線の解析を主 眼とした地上 FTIR による観測ネットワークである炭素 カラム全量観測ネットワーク(Total Carbon Column Observing Network: TCCON)が構築され, 最近では IRWG と同じ週に同じ場所で研究集会を開催してい る。

これまで FTIR を用いた研究といえば、1 つの研究 グループが単独で 1 つもしくは複数の大気微量成分 に着目して観測・解析し、論文でその成果を発表す るという方式が主流であった。それが 2010 年代ごろ から、ある研究者が世界中の FTIR 観測コミュニティ ーに声をかけて世界各国の FTIR 観測データを集め、 まとめて解析することで、ある大気微量成分のグロー バルな分布や経年変化に関して調べ論文にまとめる、 という研究手法が広まってきた。近年では、Kohlhepp et al.[2012]が 17 地点における FTIR 観測データを集 めて、1980 年から 2010 年までの HCl, CIONO₂, HF のトレンドと季節変化の緯度分布に関してまとめた。 Mahieu et al.[2014]は 8 地点における FTIR 観測デ ータをまとめて、1997 年から 2007 年と 2007 年から 2011 年の HCl の変化トレンドに南北半球差があるこ とを見出し, 成層圏循環の変化の様子を導き出した。 Dammers et al.[2016]は人工衛星 IASI で観測された NH₃ の観測結果を, 9 地点における FTIR 観測デー タと比較して評価した。Bader et al.[2017]は, 10 地点 における FTIR 観測データから, 2005 年以降 10 年間 のグローバルな CH₄ の増加の様子を評価した。 Hannigan et al.[2022]は, 22 地点における FTIR 観測 データから, 1986 年以降最近までの世界各地におけ る OCS のトレンドの様子を評価した。このように, FTIR コミュニティーでは世界の研究グループが協力 して様々な大気化学種の解析に協力する体制が出 来つつある。

もう一つの最近の世界的な流れとして,解析手法 の共通化ということが挙げられる。もともと FTIR 観測 コミュニティーでは、得られた赤外分光スペクトルの 解析に、SFIT もしくは PROFFIT という共通の解析ツ ールを用いていた。これらの解析ツールを使って特 定の大気微量成分を解析する際には,対象とする解 析スペクトル領域とスペクトル窓の数,用いるラインパ ラメータ,同時に解く気体種,解析高度層の数と分け 方,解析時の共分散行列,高度別の層への影響の 強さ,等々選ぶべきパラメータが多岐にわたっている。 従来は研究グループごとに試行錯誤によって解析パ ラメータの最適化を行っていたが、そうすると同じスペ クトルからもグループによって異なる結果が得られる 可能性がある。そこで、IRWG 会議の場での調整によ って,対象大気微量成分ごとにリーダーを決めて解 析パラメータの最適化チューニングを行ってもらい、 コミュニティーの他のグループはリーダーの決めた解 析パラメータを用いて解析を行うことにより,世界的に 統一された結果を得ることが出来るようになった。

上で述べてきた通り, 最近では世界各国の多くの 観測点での FTIR 観測データをまとめて, ある微量気 体成分の全球分布や季節変動, 経年変化などを明 らかにしようという流れが出来ている。この流れは今 後しばらく続くであろう。近い将来にターゲットとなる であろう対象気体成分としては, 以下のようなものが

考えられる。(1)モントリオール議定書で削減が図ら れている塩素・臭素を含む安定化学種 (CFCs, HCFCs)と そのリザーバー物質(HCl, ClONO₂, HF) の経年変化のモニタリング。特に,2018 年から 2019 年にかけて,中国からのモントリオール議定書に違反 する大規模な CFC-11 の放出が確認された [Montzka et al., 2018; Rigby et al., 2019]。 今後もこの ような違法な放出が起こらないか,継続的な全世界 的な FTIR 観測網による観測の継続が必要である。 (2) 大気中の等価実効成層圏塩素量(Equivalent Effective Stratospheric Chlorine: EESC)の減少フェー ズの中で,成層圏・中間圏オゾン量の年々変動とそ の経年変化のモニタリング。これは、FTIR 観測だけ でなく、地上 Dobson/Brewer 観測, オゾンゾンデ観測, 地上ミリ波観測,衛星観測などとの協力体制の構築 が重要である[Hassler et al., 2014; Harris et al., 2015]。 (3)CO₂, CH₄, N₂O, CFCs, HCFCs, HFCs 等の温室 効果ガスの経年変動のモニタリングと、CH4の増加 に伴って引き起こされる成層圏水蒸気量経年変化の モニタリング。(4)地球温暖化防止に短期的に有効 性が高いと考えられる, 短寿命気候強制力因子 (Short-Lived Climate Forcer; SLCF)のモニタリング。 FTIR で観測可能な SLCF としては, CH₄, 対流圏 O₃, 各種 HFCs 等が考えられる。(5)都市大気汚染物質 としてより短寿命な物質(CHOCHO, H₂CO, CH₃OH, HCOOH, etc.)のモニタリングによる大気汚染の把握。

これまで日本の FTIR 研究コミュニティーでは,解 析パラメータの最適化には海外の研究グループが設 定した値を使う研究を進めてきた。今後は上に述べ た世界との協力体制の構築に加え,日本発の新たな 大気微量成分解析パラメータの開発と提案が重要な テーマとなってくる。こうした方向では、2021 年に強 力な温室効果を持つ代替フロンの1種であるHFCの 解析パラメータの最適化がなされ,論文として掲載さ れたのは大きな第一歩である[Takeda et al., 2021]。今 後も,日本の FTIR 研究コミュニティーによるさらなる 観測の継続と新たな解析手段の開発が望まれている。

# 6.3 マイクロ波観測

電波を用いて大気微量成分を遠隔計測する方法 としてマイクロ波観測がある。大気観測では主として センチメートル波, ミリメートル波, サブミリメートル波 を総称してマイクロ波と呼んでいる。衛星と地上の双 方からの観測に用いられるがここでは地上からのマイ クロ波観測について述べる。大気中の分子の回転遷 移等による電波の放射あるいは吸収量を測定する受 動的な観測が主として行われ,各分子の圧力幅で広 がるスペクトル形状から逆問題を解くことで鉛直分布 を,積分強度から部分カラム量を求めることができる。 鉛直分布を導出できる高度の上限は, 圧力幅が分子 の熱運動で広がるドップラー幅と同程度になる高度 で決まるが,ドップラー幅は周波数に比例するため, 赤外線の FTIR と比べるとドップラー幅が小さく,より 高い高度の 70-80 km 程度の中間圏までの鉛直分布 を求めることができるのが大きな特長である。ただし、 高度分解能は気球観測などに比べると粗く概ね 10 km 前後である。また,波長が長いためエアロゾルの 影響を受けにくい、放射のスペクトル観測は太陽のよ うな背景光源を必要としないため,昼夜連続して(極 地では夏冬連続して)観測が可能であるなどの特長 をもつ。一方,回転遷移のため,二酸化炭素(CO2) やメタン(CH4)のような電気双極子能率を持たない所 謂対称性の良い分子は観測できない。現在,世界的 に主として観測されているのは、オゾン(O3)および水 蒸気(H2O), オゾン層破壊物質関連の一酸化塩素 (ClO)であり, 亜酸化窒素 (N₂O), 硝酸 (HNO₃)など の観測例も報告されている。また,最近では宇宙空 間からの高エネルギー粒子の大気への影響を調べ るために中間圏から下部熱圏の一酸化窒素(NO)の 測定も進んでいる。

こうした大気分子自身の量およびその時空間変化 を導出するのはマイクロ波観測の重要な目的だが, 線スペクトルから得られる物理情報や空間分布の時 間変化などから,大気分子をひとつのプローブとして, 大気の温度プロファイルや水平風速プロファイルや 極域における大気の下方輸送の速度などの大気の 力学量を得ることができるのもマイクロ波観測の重要 な点である。

たとえば、大気温度のプロファイルの観測には O2 の複数本の磁気双極子放射スペクトルが使われる。 これは主に衛星観測でよく行われ,たとえば AURA/MLS では 118 GHz 帯と 239 GHz 帯の観測か ら対流圏の 261 hPa から下部熱圏の 0.00046 hPa の 範囲の気温プロファイルが標準プロダクトの一つとし て公開されている[Livesey et al., 2022]。地上からは, より大気吸収の影響を受けにくい 51-57 GHz の周波 数帯域の O2 を地上から観測して高度 50 km 程度ま での温度プロファイルを導出する TEMPERA がベル ン大学のグループで開発されている[Stähli et al., 2013]。同じくベルン大学のグループが~142 GHzの オゾンのスペクトルのドップラーシフトから高度30-79 km の間の水平風速を地上観測から求める WIRA を 開発している。デジタル高速フーリエ変換型の分光 計を用いて 6.1 kHz の周波数分解能でデータを取得 し、リトリーバル後25m/sの程度の誤差での風速の観 測が可能となっている。また速度が1日に数百メート ルと遅く,直接降下速度を測定することができない極 域の上部成層圏から中間圏における下方輸送など は, 化学的な寿命の長い CO や H₂O などの鉛直分 布の時系列変化からその降下速度の推定に用いら れる。当初は人工衛星からの観測データが使われた が[Allen et al., 2000], その後地上観測でも同様の観 測/解析を行なった結果がいくつも出されている[e.g. Di Biagio et al., 2010; Schranz et al., 2019]。ただし、 Ryan et al. [2018]がCOの観測結果とSD-WACCMの シミュレーション結果とを比較し,化学的な変化や鉛 直移流以外の力学的効果の影響が無視できない場 合があり、CO 観測から得られる降下率の取り扱いに は注意が必要であることが指摘されている。

マイクロ波観測の観測ネットワークとしては、FTIR と同様にNDACCのマイクロ波ワーキンググループが 活動をしている。マイクロ波ワーキンググループでは、

基本的にオゾン(O₃),水蒸気(H₂O),一酸化塩素 (ClO)が標準的な観測対象となっている。これら以外 の大気分子の観測に対して排他的なわけではない が、これら以外の分子の観測データは、各々の観測 機関が独自に管理し公開している場合が多い。WG の会合は数年に1回程度の頻度で開催され、それぞ れの機関の計画や機器の運用状況と課題,新たな 観測技術の情報共有がなされている。毎年会合が開 催される FTIR と大きく異なるのは、共通して満足す べき装置およびデータの大枠の仕様は決まっている ものの、メーカーが提供する標準(あるいはそれに準 ずる)測器や共通の解析ツールを使っているのでは ないという点である。すなわち研究機関ごとに装置の 細部や解析プログラムが異なっている場合が多く, FTIR のように一つの研究目的のために異なる機関 のデータを統一的な規格のもとで解析するのには馴 染みにくい面がある。NDACC の5地点の水蒸気マイ クロ波放射計を衛星測器の MLS (Microwave Limb Sounder)のデータと比較を通して評価したもの [Haefele et al., 2009]や2地点のオゾンマイクロ波放射 計のデータを同じく MLS との比較を通して評価した もの[Boyd et al., 2007]など,装置間の差異を埋めるた めの検証と努力が行われているが、まだその段階に とどまっている感がある。

ただし、こうした個々の研究機関が独自に開発し 研究を進めている点は必ずしも負の側面だけを持つ ものでもなく、新たな観測や技術的な発展を切り開く 可能性がまだマイクロ波観測には多く残されているこ との反映とも言える。上述の地上からのマイクロ波に よる風や気温の測定はスイスのベルン大学の開発チ ームの強い技術力の結晶であり、日本の名古屋大学 では日本の持つ超伝導薄膜積層技術や微細導波菅 金属加工技術をベースに 230 GHz から 255 GHz に わたる周波数帯の中で観測したい分子スペクトルが 存在する複数の周波数帯の電波を切り出し、帯域 2.5GHz の帯域内に再合成することにより複数分子の 同時観測を感度が高い超伝導受信機を用いて実現 させ,超高層大気の研究グループと協力しながら宇 宙からの高エネルギー粒子降り込みの大気影響を観 測的に研究している。

今後の地上マイクロ波観測は、2極化して発展して いくと考えられる。一つは標準化・均質化の方向であ る。複雑なシステムで受信機を冷却して究極の感度 を目指すのではなく,安価で運用が容易で特別な技 術を必要としない標準観測システムを開発し, 共通の キャリブレーションスキームで観測を行ない, 共通の プログラムで解析を行う。常温受信機であっても 22 GHz 帯の水蒸気, 110 GHz 帯のオゾンであれば、トレ ンドや季節変動を導出するのに必要なタイムスケー ルで十分な S/N のデータを取得できると考えられる。 また解析に関しては、最近欧州のさまざまなグルー プが解析に使っている ARTS (Atmospheric Radiative Transfer Simulator) と OPack を用いることで可能に なると考えられる。必要なのは、このような枯れた技術 で構成された標準マイクロ波測器を地球上の適所に 配置し, そこからのデータを戦略的に取りまとめる強 カなリーダーシップで,それが NDACC のマイクロ波 ワーキンググループに期待されているタスクであろう。 もう一つの極は、これとは逆に最先端の技術をどんど ん取り入れ、より先鋭的な観測装置を開発し、これま で誰も見ていない, 把握できていないデータの取得 を目指す方向であろう。日本が得意とする超伝導ミリ 波サブミリ波技術は, SMILES において世界で初め て宇宙空間における機械式超伝導受信機の運用を 実現し,短い運用期間であったにもかかわらず他の 衛星測器では取得できないユニークな成果を輩出し た。この流れは後述の SMILES-2 にも受け継がれ、さ らに観測領域を下部熱圏まで広げて超高層大気科 学との連携を視野に入れた展開を発想している。地 上からのマイクロ波観測においても、SMILES で培っ た技術をさらに発展させ新たな技術開発をもとに超 高層大気科学との連携を視野に入れた発展が期待 できると考えられる。

# 7. 衛星観測で明らかにすべき成層圏/中間 圏の研究課題と計画

# 7.1 米国における地球観測衛星計画の動向

本節では主に成層圏の化学過程に関連した10年 スケールの衛星観測による科学と応用の要点整理・ 洗い出し(decadal survey)の要点を述べる。

米国では 2007 年に Earth Science and Applications from Space (ESAS-2007) [*NRC*, 2007] が出版され, 2005 年から 2015 年以降に推奨される衛星観測ミッ ションが記載された。成層圏に関連するものとして ACE (Aerosol/Cloud/Ecosystems) mission と GACM (Global Atmospheric Composition Mission) があった がどちらも現時点ではキャンセルされている。

一方, 2018 年に出版された Thriving on Our Changing Planet: A Decadal Strategy for Earth Observation from Space(通称 ESAS-2017)[*NASEM*, 2018]ではあえてミッション名の記載はせず, 2017 年 から 2027 年以降に求められる Science(科学)と Application(応用), そのために必要な Observation (観測)が記載されている。

科学と応用の優先度区分として、Most Important (MI), Very Important(VI), Important(I)の3つがあり、このうち(I)に Impacts of ozone layer change が含まれている。

また, 観測システムの優先度として, 成層圏に関連 するものとしては「エアロゾル」と「O3 と微量気体」が挙 げられている。各々, 鉛直分布の測定が必要とされ, その実現手法としては前者がライダーで, 後者は紫 外・可視, 赤外, マイクロ波による Limb/Nadir サウン ディングおよび紫外・可視, 赤外による太陽・恒星掩 蔽法が挙げられている。

今後の観測ターゲット(Targeted Observable, TO)と して 12 の項目が挙げられている。そのうち,最後の TO-12 が「O₃と微量気体」である。測定すべき化学種 としては O₃, H₂O, CO, NO₂, CH₄, N₂O の 6 つであ り, 各々1 km かそれ以下の高度分解能をUTLS で持 つこととされている。現存の MLS や MIPAS タイプで は高度分解能が~3 km であるため, HIRDLS タイプ (赤外放射のリム観測) のフィルター放射計による ~ 1 km の測定が望ましいとされている。

以上から期待される今後の科学として,

- ・オゾン層の長期トレンド
- ・ UTLS におけるオゾン支配要因
- ・ 成層圏-対流圏交換の機構

の3つが挙げられている。

# 7.2 国内外の研究動向(~2022 年)およびギャップ, アウトルック

過去 10 年程度の衛星観測による研究の進展につ いても軽く触れる。成層圏オゾントレンドに関しては 特に 2000 年以降の成層圏ハロゲン量の減少に伴っ てどのようにオゾン層が回復して行くのかに焦点が当 てられてきた。例として Chipperfield et al.[2017]では, オゾン破壊物質のレベルがピークを迎えた1997年ご ろの前と後の2つの期間に分けて、それぞれ期間に ついて重回帰分析を行いトレンドを導出する手法 (Multiple Linear Regression with Independent Linear Trends; MLR/ILT)を用いている。その結果, 両半球 オゾン全量の緯度35度から60度の範囲では有意な 回復傾向は見られていない(0.4±1.0%/10年のトレン ド; 1997 年から 2015 年)。より包括的な SPARC の LOTUS 報告書[SPARC/IO3C/GAW, 2019]では, 2000 年から 2016 年の 2 hPa(高度 40km 付近)では有意 な正トレンドが報告されている(各々2.9, 2.1, 1.3%/10 年のトレンド; 35-60°N, 35-60°S, 20°S-35°Nの3領 域)。なお,直近の論文にてLOTUS報告書の結果の 更新がなされている[Godin-Beekmann et al., 2022]。

この10年での特筆すべき事項としては北極におけ る大規模なオゾン破壊が2度起きたことであろう (2010/11年と2019/20年の冬季から春季にかけて)。 2010/11年については日本語の解説を参照されたい [中島, 2011]。2019/20年についてはGRL/JGRでの 特集(AGU, 2020)やACPなどで数多くの出版がある。 特に2019/20年については観測史上最大のオゾン破

壊規模であり、オゾンに関連する様々な物質の濃度 推移など,今後注視して行く必要がある。衛星観測 からの具体例としては MLS によるオゾンの他, N₂O, HNO3, HCl の特徴的な時間変化が挙げられる [Manney et al., 2020]。 強固な極渦, 低温, 低濃度オ ゾンにより, 低濃度 N₂O, 低濃度 HNO₃, そしてオゾン 回復期直前の高濃度のHClなど、どれもMLSによる 観測の中では過去最大となっている。また, 北半球 での大規模な森林火災の影響で,少なからず成層 圏へもエアロゾルが注入されたことが,研究船舶搭載 のライダー観測(MOSAiC)からも分かっており, 2019/20 年の北極オゾン破壊に影響した可能性も指 摘されている[Ohneiser et al., 2021]。さらに, 2019年 のオーストラリアにおける大規模な森林火災は記憶 に新しいが,これに由来する火災積乱雲に伴う煤煙 が成層圏の下部にまで到達し[Hirsch & Koren, 2021], その結果として中緯度の下部成層圏オゾン破壊にも 寄与していることが指摘されている[Solomon et al., 2022]。これらの観測的証拠のためには NO₂(OSIRIS と SAGE III)やエアロゾル消散係数(OMPS-LP, OSIRIS, SAGE III)などの衛星観測データが活かさ れている。

この 10 年における日本の大気微量成分を測定す る衛星センサからの国際貢献としては SMILES によ るものがある(一部 ILAS-II)。最も大きな貢献として は SPARC の Data initiative 報告書であろう[SPARC, 2017; Hegglin et al., 2021]。このプロジェクトでは 20 に 上る成層圏観測センサからの 26 にわたる化学種の 月平均の時系列データセットを作成するという膨大な 作業がなされている。さらに同じく SPARC の水蒸気 に関するプロジェクト WAVAS にも貢献がある。 SMILES は 3 つ, ILAS-II は 1 つの課題に参画して いる(詳しくは ACP/AMT/ESSD 特集号, EGU, 2019)。

現時点での国内外での衛星からの成層圏観測に ついてギャップについても触れる。まず,背景となる 科学に関しては, ESAS-2017 で挙げれらている, 1. オゾン層の長期トレンド, 2. UT/LS におけるオゾン支 配要因, 3. 成層圏-対流圏交換の機構, の3つの他 にも, WMO オゾン評価報告書の 2018 年版[WMO, 2018]で述べられている, 今後の大規模火山噴火に よる成層圏への影響や, 宇宙産業等の利用増加に 伴うロケット排ガスの影響, さらには自然起源の海洋 からのハロゲン化学種の成層圏内での無機化合物と しての振る舞いなどを衛星から長期的かつ定量的に 把握し続けることが重要であろう。また, 化学の点から は逸れるが, ESAS-2017 では両半球極渦における成 層圏風速の観測が極めて不十分であることが指摘さ れており, 化学気候モデルなどの成層圏状態を正し く初期化する上でも, 成層圏風速の全球観測の重要 性は高い。

ESAS-2017 でも述べられているように, 高度分解 能の高い,かつ1週間のスケールで全球観測が可能 なセンサは存在しない(MLS や ACE-FTS は~3 km 分解能であり、~1 km 分解能の SAGE-III は太陽掩 蔽法であるため全球をカバーするには時間がかか る)。また、今後についてもセンサ提案こそあれ、打上 げ予定が決まっているミッションは米国においては無 いため,多成分観測を特徴とする現状の MLS や ACE-FTS (カナダ)などが運用を停止もしくはセンサ 寿命で観測不可となった場合には極めて大きな成層 圏科学研究の痛手となり,化学過程の研究のみなら ず,多くの研究分野にも波及することになろう。したが って、今後10年間の研究は現存の衛星センサが止 まることなく観測を継続するか否かに大きく依存して いると言わざるを得ない。そのような中でも欧州では ALTIUS ( Atmospheric Limb Tracker for the Investigation of the Upcoming Stratosphere)というミッ ションが予定されており[e.g., Fussen et al., 2019; Errera et al., 2021], 今後 10 年のギャップを部分的に 埋める可能性があり、予定通りの打上げが大いに期 待される。また,2022 年 11 月に打上げられた, NOAA の Joint Polar Satellite System (JPSS) シリーズ の JPSS-2 に搭載される OMPS-LP からの O3 や NO2 の高度分布導出にも期待がかかる(ただし大気分子

によるリム散乱光に基づくため測定精度や高度分解 能は太陽掩蔽法にやや劣る)。一方国内でも SMILES をヘリテージとしたセンサ提案などがなされ ているところであり、今後 10 年の観測ギャップを埋め るためにも早期の採択・打上げが望まれる。最後に、 表 1 に ESAS-2017 を参考にして成層圏化学研究に とって必要な項目を簡単に列挙した。

#### 7.3 成層圏・中間圏に関わる人工衛星の国内計画

現在,高層大気(上部対流圏以高)の微量気体成 分観測を目的とした人工衛星は,Aura-MLS(USA, 2004年~)とACE-FTS(カナダ,2003年~)だけが運 用されている。世界的にみても高層大気観測を主目 的とした衛星は計画されておらず,継続的な観測が 切望されている状況である。より詳細な背景について は,SLCF章(3.4章)を参照されたい。このような状況 下で,国内で提案されている成層圏中間圏に関係す

表1 成層圏化学研究として期待される衛星観測の概要

期待される化 学種	O ₃ , H ₂ O, CO, NO ₂ , CH ₄ , N ₂ O (可能であれば Cl _y , NO _y , SO ₂ な ど)	エアロゾル (可能 であれば煤煙粒子 と硫酸液滴粒 を の 期 や 表面 積 密 度 の 推 定 が し 、 の た の に 、 の の の に 、 に 、 に 、 に 、 に 、 に 、 の の の の
高度分解能 (UT/LS)	~1km以下	~1km以下
全球観測に必 要 な 時 間 ス ケール	1週間以下	1週間以下
測定手法	赤外放射(パッ シブ)、接線高 度 (55km)におけ る測定時間は8 (3)ミリ秒以下、 周縁観測 (ただしIFOVも 鉛直方向1km程 度とする。)	ラ イ ダ ー ( ア ク ティブ) 、 直 下 視 観 測

る人工衛星について2件,紹介する。

一つ目は「高層大気の化学・力学場の動態把握の ための FTS 衛星観測ミッション」である。現在の気候 の理解および将来の気候変動の予測には,全球規 模での大気微量成分,雲の継続的な観測が必要不 可欠である。そのため、本ミッションでは以下の 3 つ の科学的目標を設定している。

- 1. 高層大気観測の継続的な観測
- 2. オゾン, GHGs, 同位体を中心とした大気化学過 程の精緻化
- 3. 数値モデルの精度向上

これらの科学的目標の達成のため,高緯度範囲 (±80 度;軌道傾斜角 65 度の場合)で,太陽掩蔽観 測によって,FTS (Fourier-Transform Spectrometer)に よる近赤外から熱赤外域の波長(4~14 µm)域を高ス ペクトル分解能(0.02 cm⁻¹)で実施し,対流圏中層か ら下部熱圏(8~100 km),多種類の大気微量成分を 鉛直分解能(1.5~4 km)で観測する。特に GHGs (CO₂, CH₄, N₂O, H₂O, O₃)やオゾン化学に関連す る成分(O₃, CFC-11, CFC-12, CH₃Cl 等),同位体 (H₂O, CO₂, O₃, N₂O, CO, CH₄, OCS 関連)をモニ タリングする。主要成分の精度と科学的に有効な高 度範囲を表 2 に示す。

本ミッションの特徴は主に2点ある。一点目は、下 層から高層までを同一測器で観測することで, 圏間 (対流圏-成層圏-中間圏-熱圏)の相互作用を定量 的に評価可能である。これは既存の高層大気観測衛 星と同等以上の質を確保することを目標とし、気候変 動研究における観測の継続性を担保する。2 点目は, 複数の同位体種を得ることによって, 化学過程の精 緻化だけでなく、物質循環、特に水循環、降水過程 の精緻化が期待される。例を示すと、水蒸気同位体 を使用することで,予報モデルの物理量の精度向上 が期待される。具体的には、IASIの水蒸気同位体デ ータを用いて,気温,風速,比湿等の予報精度が 10%以上向上した[Toride et al., 2021]。また水蒸気同 位体を全球大循環モデルにデータ同化した場合に おいても,水蒸気関連以外の風速等の予報精度が 全球で大幅に低減されている[Tada et al., 2021]。

二つ目は「超伝導サブミリ波リム放射サウンダ (SMILES-2)」である。SMILES-2は、地球大気リム観 測により、成層圏・中間圏・下部熱圏(高度 15-150 km)におよぶ広い高度領域の風・温度場と微量成分場の全体像をその日周期成分を含めて高精度で明らかにする衛星観測計画である。

本計画は,過去に国際宇宙ステーション(ISS)上 から大気観測を行った SMILES の経験を礎としてい る。SMILES では過去に類を見ない高精度微量成分 観測を実現し,かつ, ISS が太陽非同期軌道をとる利 点も生かして,成層圏オゾンの明瞭な日周変化や日 食に伴うオゾン変動を発見するなどの功績を収めた [e.g., Sakazaki et al., 2013; Imai et al., 2015]。一方で SMILES の観測高度範囲は高度 90 km 以下に限ら れ,また,風・温度場(力学場)を高精度で測定する

Profile Product	精度	高度範囲 [km]
H ₂ O	5%	$15\sim 50$
CO ₂ , O ₃	5%	$10\sim 50$
CH ₄	10%	$10\sim 50$
HCI	8%	$15\sim 50$
NO, NO ₂ , N ₂ O, HF, CO	10%	$15 \sim 50$
NO ₂	10%	$15\sim 50$
HF, CO	10%	$15\sim 50$
HNO ₃	15%	$15\sim40$
CFC-11, CFC-12	15%	$15\sim 30$
Temperature	2K	$10\sim 50$
CIONO ₂	20%	$15\sim40$
N ₂ O ₅	20%	$20 \sim 40$
PAN, SF ₆ , HDO, H ₂ ¹⁸ O, etc	< 20%	UTLS 10~25

表2 FTS 高層大気ミッションにより得られる成分とその 精度と高度範囲

観測波長帯を持っていなかった。さらに,機器の故障 により半年で観測が終了したため,季節変化や年々 変化を明らかにするに至らなかった。

SMILES-2 は、SMILES の経験・反省を活かし、観 測領域を下部熱圏領域まで 150 km まで伸張し、微 量成分のみならず、新たに風と温度を、その日周期 成分を含めて高精度で測定することを計画している (表 3)。気象学ー超高層大気にまたがる広い領域の 多パラメータ観測により、地球大気上下結合の描像 解明や気候変動の監視に貢献することが大きな目的 である。具体的には以下の三つの科学目標を設定し ている:

1. 大気波動を介した下層からの影響の解明

2. 磁気圏からのエネルギー流入の影響の解明
 (EPP, 磁気嵐など)

3. 全大気モデルへのベンチマークデータの提供

これらの目標を達成するにあたって特筆すべきは, 水平風速の測定である。中性風の分布は重力波など 大気波動の鉛直伝播特性を規定するため,波動を 介した大気上下結合の理解(科学目標1)にあっては その理解が不可欠である。ところが現在,中・上層大 気の水平風速観測は非常に限られており,「帯状平 均東西風」といった基本的な描像すらよく分かってい ないことが中層・超高層大気研究推進の大きな足か せになっている。特に傾度風平衡が破綻する赤道上 空では,風の分布推定は直接観測に頼るほかない。 この点 SMILES-2 では,超高感度な測定を活かして, O₃などの分子種の輝線のドップラーシフトから視線風 速を算出する。さらにアンテナを二台搭載することを 検討しており,同じ場所を二度観測することで,水平 風ベクトルを算出することを計画している。

本稿のテーマである大気化学の観点からは,オゾ ン層科学に関わる分子種を成層圏から下部熱圏まで 広範囲で観測できるのが特徴である。とりわけ太陽非 同期のプラットフォームから日変化を高精度で捉える 点は, SMILES と並んで大きな特徴である。また磁気 圏からの影響(科学目標 2)は,大気微量成分とそれ に伴う放射バランスの変調を介して力学場に作用す ることが知られており, SMILES-2 による広い高度領 域の微量成分-力学場の一体観測は,これら一連 のプロセスを丸ごと捉えることが可能である。

現在 SMILES-2 は(初代 SMILES と同様)再度 ISS からの観測を検討している。軌道傾斜角は 51.6°と極 域を見るにはやや物足りないが,60 日で観測ローカ ル時刻が 24 時間変化し,日変化を捉えることが可能 である。今後,気象学-大気化学-超高層大気科 学の幅広いコミュニティからのインプットを頂きな

Product	Altitude range	Precision for a single scan
LOS wind	25-150 km 40-90 km	<10 m/s < 3 m/s
Temperature	15-50 km 50-110 km 110-150 km	<0.2 K <4 K <20 K
Density	20-60 km 60-100 km	< 1% <10%
O ₃	15-60 km 60-100 km	<1% <50%
0	100-120 km 120-160	<20 % <10%
H ₂ O	15-70 km 70-100 km	<2% <10%
ОН	30-80 km	<10%
HO ₂	40-80 km	<10%
HNO ₃	15-40 km	<20%
NO	30-50 km 70-100 km	<50% <10%
NO ₂	30-50 km	<50% <20%
N ₂ O	15-40 km	<5%
СО	70-80 km	<60%
HC1	15-70 km	<10%
ClO	20-50 km	<20%

表3 SMILES-2 ミッションの観測パラメータと精度 (シングルスキャンの精度)

がら実現を目指したい。

# 8. おわりに

本稿では,対流圏と物質交換/相互作用する成 層圏・中間圏,成層圏・中間圏の力学・化学で主要 な役割を演ずるオゾンとその破壊物質の動向と気候 変動の相互関係,熱圏以高の超高層との相互作用 や太陽活動応答などのテーマについて,特に最近 10年ほどの間に、得られた新たな知見を整理し、今後取り組むべき学術的課題とその課題を解決するための地上観測や衛星観測の現状と課題についてまとめた。

対流圏との物質交換(STE)および相互作用においては、対流圏界面遷移層を通しての物質交換プロ セスがより詳細に議論されるようになった。以前は、力 学的には成層圏は対流圏の変動に受動的と考えら れていたが、まず高緯度帯での成層圏から対流圏へ の寄与が議論され、ここ10年あまりの間に熱帯域で の成層圏から対流圏への影響が議論されるようになった。こうしたSTEや相互作用が気候変動によりどの ように変化するかは、オゾン層に影響を及ぼす微量 成分が対流圏から成層圏に入るプロセスを理解し、 オゾン層の将来予測の精度を高める上でも重要であ る。そしてオゾン層変化が気候に与える影響を正しく 理解するためにも、そうしたプロセスを取り入れオゾン 分布自体をモデルの中で計算する化学気候モデル の開発・改良が重要である。

成層圏内での物質循環という点では、GHG の増加に伴い大気波動の消散が促進され、大気循環の強化が示唆されている。多くの間接的な観測は BDC の shallow branch の加速を支持している一方、BDC の deep branch に関しては観測的にまだ明確ではない。オゾン層の長期トレンドは、今後 ODS の影響が相対的に低下していく中で、GHG の増加に伴う成層圏の気温の変化やグローバルな大気循環の変化の影響がより重要性を増してくると考えられる。

成層圏水蒸気の主なソースは対流圏からの流入と CH4の酸化だが、気候変動に伴い対流圏からの輸送 が増えるという見方と、対流活動が活発化し上層が 冷えて輸送してくる水蒸気は減るという相反する見方 がある。一方、CH4の増加に伴う成層圏水蒸気の増 加は、対流圏界面付近の気温に影響を与えると同時 に、HOx 量の変化を通してオゾン破壊触媒反応サイ クルに影響し、さらに赤外線放射収支を変化させて 成層圏の冷却にも寄与することなどが考えられる。こ のように STE での物質交換, 成層圏内での大気循環, オゾン層の変化, GHG の変化と気温変化は相互に 密接に関連しあっている。これらを解きほぐしていくた めには, 高精度, 高分解能のデータに基づいた個別 のプロセスの正しい理解が必要となる。

地球外の環境変動の影響を受ける境界領域として の中間圏および上部成層圏に関しては,太陽放射 変動の気候への影響, EPP による大気組成変動など で研究が進みつつあるが,観測データがまだ不十分 で今後の充実が強く望まれる。また SEP や CR など の(超)高エネルギー粒子の影響に関しては,イ ベントの発生頻度が低いことやインターバルが 数千万年のオーダーとなるため,放射性同位体な どを用いた古気候学的な研究とも融合した新た な研究のアプローチが始まっている。 地上観測では日本も世界の観測ネットワークの中 でいくつかの重要な貢献をしているものの,中高層 大気の衛星観測は世界的に停滞しているのが深刻 な問題点である。現在稼働中の欧米の衛星が停止 すると観測データが取得できなくなる。特にSTE研究 を進める上では,衛星を用いた高鉛直分解能のリム 観測が非常に重要であり,欧州で新しい計画が走り つつあるものの,米国では打ち上げの決まっているミ ッションはない。こうした状況の中,日本国内でも中 高層大気用のFTS および SMILES 後継機のテラへ ルツ・サブミリ波衛星(SMILES-2)の検討が進められ ている。しかし,実現まではまだ道のりがある。大気化 学コミュニティーからの支援を是非ともお願いしたい。

# 表4 成層圏および中間圏の大気化学の現況と将来展望のまとめ

<u> </u>	
究極のゴール	・対流圏と成層圏との境界領域の構造の理解と対流圏-成層圏間の力学的結合と物質交換
は何か	との関係の理解。
	・微量成分(GHG,オゾン,代替フロン,水蒸気等)の変化が成層圏の大気循環に与える影
	・気候変動に伴りオソン層変化、およびオソン層変化が気候に与える影響の埋解。
	・火山噴火や大規模森林火災起源の成層圏エアロゾルの化学影響の理解と人為起源エア
	ロゾルの成層圏への寄与および流入過程の定量的な理解。
	・温暖化対策として成層圏エアロゾル層を改変するジオエンジニアリングの影響予測とそれ
	に基づいた適切な評価。
	・太陽活動(放射・高エネルギー粒子)や磁気圏現象がイオン化学を通して NOx, HOx を生
	成し、中間圏・成層圏オゾンを変化させる影響とそれが気候に与える影響の理解。
この10 年での	・日本は熱帯域における SOWER などの気球観測, 大型の大気レーダー(インドネシア, 南
世界的な動向	極 PANSY), CONTRAIL などで UTLS 領域の観測で貴重な貢献。
や日本での研	・数値モデルの高度化。積雲や重力波のパラメタリゼーションの改良。化学輸送モデルによ
究の強み	る UTLS の各過程の精緻化(への貢献)。計算機リソースの発展に伴う分解能の向上。
	・数値モデルを用いたオゾン層の気候影響研究は、オゾン分布を与えるのではなく、化学気
	候モデルの中でオンラインでオゾン分布を計算する例が増加。
	・世界初の機械式極低温冷凍機で動作する超伝導検出器を搭載し、地方時の制限を受け
	ない太陽非同期軌道で観測した日本の SMILES はオゾンの日周変化や日食に伴う変動を
	発見するなどのユニークな成果を輩出した。
	・スーパープレッシャー気球を用いると、ほぼ同じ高度で1ヶ月程度、成層圏の in-situ 観測
	が可能になる。
	・地上 FTIR では、解析ツールや分子パラメータを世界的に統一して最適化することでグロ
	ーバルな経年変化を調べる研究が増加、強度の弱い CFC や HFC などの吸収線について
	もカラム量の導出が可能となってきた。
	・地上、衛星ともにマイクロ波観測は、他の測器では困難な中間圏以上の領域のデータを提
	供 日本は SMILES をはじめ地上の放射計でも超高威度の超伝道受信機開発で高い技
	術を有する。
現在の重要な	・対流圏-成層圏(-中間圏)の物質循環・相互作用を理解するためには、現状の観測デー
ギャップ	タやモデルの時間分解能と鉛直分解能では不十分である。熱帯積雲対流や対流圏界面褶
	曲(tropopause folding)など、スケールは小さいが物質輸送にとっても重要と思われる現象
	を解像できろような高解像度の観測・モデルによる現象の理解が必要。
	・将来予測の精緻化のため、オゾン等の微量成分と気象場との相互作用を理解し、高分解
	能化学気候モデルに適切に取り入れる必要がある。
	・世界的な衛星計画の停滞(具体的な継続ミッションの計画が立ち遅れている)により、グロ
	ーバルデータの継続性や観測可能な微量成分の種類が限られる恐れがある。これによっ
	て 微量成分濃度の長期トレンドの理解や輸送過程の理解(気象場と様々か微量成分輸送
	との間の整合的な理解) 等価重効成層圏塩素(FFSC)や反応性窒素酸化物(NO.)等の量
	の推定に支暗をきたす可能性があろ
それらを踏ま	・微量成分、特に領毒命化学種が対流圏から成層圏にどのように流入するか? また その
え 今後10 年	タイムスケール 対流圏-成層圏の交換時定数けどれぐらいか?
の研究をドライ	・GHG の増加に伴い水蒸気たどの化学種の対流圏から成層圏への流入量(またその逆)が
ブオスkey	変化することによって 成層圏の気温構造がどう変化するのか? 基本的に CO。通知による
」 guestion or 作	成層圏冷却効果が合後も支配的だが、国際的な相制に反し、HFC 等の濃度が増えた場合
¥仮説	小山市市市市が小小小小区の大市市にい、国际市がよが同時に区で、110 手が低反かってたいのの
木政咒	「な」 μμμ/μ/回回に40% くれ1111/11/11/11/11/11/11/11/11/11/11/11/1
	-409秋回時起の友山による工同時反にわける八秋頃探はこのようによるのか?
	へ1101131、144×11回1139,丁田原はこによる地球八米(シワークルマー 加八はこの住民)
- - わた 一 世 七 二 一 一 七 二 一 一 七 二 一 二 一 二 一 二 一 二 一 二 一 二 二 二 二 二 二 二 二 二 二 二 二 二	<ul> <li>ハビは深境に影音ですんるいい*: よに、てリレに影音は対価圏まで均별するのが?</li> <li>SDADC NDACC SCOSTED</li> </ul>
工な理病相士	I STARU, INDAUU, SUUSTEF

# 7. 略語リスト

- AAO: Antarctic oscillation(南極振動)
- ACE-FTS : Atmospheric Chemistry Experiment -Fourier Transform Spectrometer
- ACTM: Atmospheric Chemistry-Transport Model (大 気化学輸送モデル)

ADEOS : Advanced Earth Observing Satellite

- ALTIUS: Atmospheric Limb Tracker for Investigation of the Upcoming Stratosphere
- AO: Arctic Oscillation(北極振動)
- AoA: Age of Air (大気年齢)
- ARTS : Atmospheric Radiative Transfer Simulator
- ATLID: Atmospheric lidar
- BDC: Brewer-Dobson Circulation (ブリューワ・ドブソ ン循環)
- CALIOP : Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization
- CARIBIC: Civil Aircraft for the Regular Investigation of the atmosphere Based on an Instrument Container
- CCM: Chemistry-Climate odel(化学気候モデル)

CFC: Chlorofluorocarbon  $( \mathcal{P} \square \mathcal{V})$ 

- CMIP-6 : Coupled Model Intercomparison Projects -Phase 6
- CONTRAIL : Comprehensive Observation Network for TRace gases by AIrLiner
- CR:Cosmic Ray
- DMS: dimethyl sulfide (硫化ジメチル)
- EarthCARE: Earth Clouds, Aerosols and Radiation Explorer (雲エアロゾル放射ミッション)
- EECS: Equivalent Effective Stratospheric Chlorine (等 価実効成層圏塩素量)
- EPP: Energetic Particle Precipitation
- EPP-IE : Energetic Particle Precipitation indirect effect
- ExTL:Extratropical Transition Layer(熱帯外対流圏 界面遷移層)
- FORUM : Far-infrared Outgoing Radiation
- Understanding and Monitoring FTIR: Fourier-Transform Infrared Spectrometer (7-リエ変換赤外分光器) FTS:Fourier-Transform Spectrometer(フーリエ変換 分光器) GHG: greenhouse gas (温室効果ガス) GOMOS: Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars HCFC: hydrochlorofluorocarbon (ハイドロクロロフル オロカーボン) HFC:hydrofluorocarbon(ハイドロフルオロカーボン) HIRDLS: High Resolution Dynamics Limb Sounder IAGOS : In-service Aircraft for a Global Observing System IASI: Infrared Atmospheric Sounding Interferometer ILAS: Improved Limb Atmospheric Spectrometer IRWG: InfraRed Working Group ISA-MIP : Interactive Stratospheric Aerosol Model Intercomparison ISS: International Space Station LOTUS: Long-term Ozone Trends and Uncertainties in the Stratosphere MEE: Medium Energy Electron MIPAS : Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding MLS: Microwave Limb Sounder MOSAiC : Multidisciplinary drifting Observatory for the Study of Arctic Climate NAO:North Atlantic Oscillation(北大西洋振動) NDACC: Network for the Detection of Atmospheric **Composition Change** NDSC: Network for the Detection of Stratospheric Change NICAM : Nonhydrostatic Icosahedral Atmospheric Model(非静力学全球大気モデル)
- ODS:Ozone Depleting Substance(オゾン層破壊物質) OMPS-LP: Ozone Mapping and Profiler Suite

(OMPS) - Limb Profiler (LP)

- OSIRIS : Optical Spectrograph and Infrared Imager System
- PANSY radar: Program of Antarctic Syowa MST/IS Radar(南極昭和基地大型大気レーダー)
- PRESTO : Predictability of Variable Solar-Terrestrial Coupling
- PMC:Polar Mesospheric Cloud(極中間圈雲)
- PSC:Polar Stratospheric Cloud(極成層圈雲)
- PyroCb:Pyrocumulonimbus(火災積乱雲)
- QBO:Quasi-Biennial Oscillation(成層圈準2年周期 変動)
- SAGE: Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
- SAM: Southern Annular Mode(南半球環状モード)
- SATIO-TCS : Stratospheric And Tropospheric Influences On Tropical Convective Systems
- SCOSTEP: Scientific Committee on Solar-Terrestrial Physics
- SD-WACCM : Specified Dynamics version of WACCM
- SEP: Solar Energetic Particles
- SHADOZ : Southern Hemisphere ADditional Ozonesondes
- SLCF: Short-Lived Climate Forcer (短寿命気候強制 力因子)
- SMILES: Superconducting Submillimeter-wave Limbemission Sounder
- SOLARIS-HEPPA: Solar Influence for SPARC High Energy Particle Precipitation in the Atmosphere
- SOWER : Soundings of Ozone and Water in the Equatorial Region
- SPARC: Stratosphere-troposphere Processes And their Role in Climate
- S-RIP: SPARC Reanalysis Intercomparison Project
- SST:Sea Surface Temperature(海表面温度)
- SSW: Stratospheric Sudden Warming(成層圈突然昇 温)

- STE:Stratosphere-Troposphere Exchange(成層圏-対流圏間物質交換)
- TCCON: Total Carbon Column Observing Network
- TTL: Tropical Transition Layer(熱帯対流圏界面遷 移層)
- UTLS:Upper Troposphere and Lower Stratosphere(上 部対流圈下部成層圈)
- VSLS: Very short-lived substances(極短寿命種)
- WACCM : Whole Atmosphere Community Climate Model
- WAVAS: Water Vapor Assessment

# 8. 参考文献

- Abalos M., B. Legras, F. Ploeger, & W.J. Randel (2015), Evaluating the advective Brewer-Dobson circulation in three reanalyses for the period 1979-2012, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 7534–7554, doi: 10.1002/2015JD023182.
- AGU (2020), The Exceptional Arctic Stratospheric Polar Vortex in 2019/2020: Causes and Consequences, https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/toc/10.1002/(IS SN)1944-8007.ARCTICSPV.
- Allen, D. R. et al. (2000), Antarctic polar descent and planetary wave activity observed in ISAMS CO from April to July 1992, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 665–668, doi: 10.1029/1999GL010888.
- Aquila, V. et al. (2016), Isolating the roles of different forcing agents in global stratospheric temperature changes using model integrations with incrementally added single forcings, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *121*, 8067–8082, doi: 10.1002/2015JD023841.
- Bader, W. et al. (2017), The recent increase of atmospheric methane from 10 years of ground-based NDACC FTIR observations since 2005, *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 2255-2277, doi: 10.5194/acp-17-2255-2017.
- Baldwin, M. P. et al. (2001), The quasi-biennial oscillation, *Rev. Geophys.*, *39* (2), 179–229, doi: 10.1029/1999RG000073.

Bernath, P., C. Boone, & J. Crouse (2022), Wildfire smoke

destroys stratospheric ozone, *Science*, 375, 1292-1295, doi: 10.1126/science.abm5611.

- Birner, T., & H. Bönisch (2011), Residual circulation trajectories and transit times into the extratropical lowermost stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, *11*, 817–827, doi: 10.5194/acp-11-817-2011.
- Bisht, J. S. H. et al. (2021), Seasonal variations of SF₆, CO₂, CH₄, and N₂O in the UT/LS region due to emissions, transport, and chemistry, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 126, e2020JD033541, doi: 10.1029/2020JD033541.
- Boyd, I. S. et al. (2007), Ground-based microwave ozone radiometer measurements compared with Aura-MLS v2.2 and other instruments at two Network for Detection of Atmospheric Composition Change sites, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S33, doi: 10.1029/2007JD008720.
- Bönisch, H. et al. (2011), On the structural changes in the Brewer-Dobson Circulation after 2000, *Atmos. Chem. Phys.*, *11*, 3937–3948, doi: 10.5194/acp-11-3937-2011.
- Brasseur, G. P., & S. Solomon (2005), Aeronomy of the middle atmosphere (Third revised and enlarged edition), Springer, Dordrecht, 644pp, doi: 10.1007/1-4020-3824-0.
- Brewer, A.W. (1949), Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*,75, 351-363, doi: 10.1002/qj.49707532603
- Butchart, N. (2014), The Brewer-Dobson circulation, *Rev. Geophys*, 52 (2), 157-184, doi: 10.1002/2013RG000448.
- Calvo, N., L. M. Polvani, & S. Solomon (2015), On the surface impact of Arctic stratospheric ozone extremes, *Environ. Res. Lett.*, 10, 094003, doi: 10.1088/1748-9326/10/9/094003.
- Carr, J. L., Horvath, A., Wu, D. L., & Friberg, M. D. (2022), Stereo plume height and motion retrievals for the recordsetting Hunga Tonga-Hunga Ha'apai eruption of 15 January 2022, *Geophys. Res. Lett.*, 49(9), e2022GL098131. doi: 10.1029/2022GL098131.
- Chen, D. et al. (2021), Framing, Context, and Methods. In

Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, V. Masson-Delmotte et al. (eds.), Cambridge: Cambridge University Press, pp. 147 – 286, doi: 10.1017/9781009157896.003.

- Chido, G., & L. M. Polvani (2019), The Response of the Ozone Layer to Quadrupled CO₂ Concentrations: Implications for Climate, J. Climate, 32, 7629-7642. doi: 10.1175/JCLI-D-19-0086.1.
- Chipperfield, M. et al. (2017), Detecting recovery of the stratospheric ozone layer, *Nature*, *549*, 211-218, doi: 10.1038/nature23681.
- Chubachi, S. (1984), Preliminary results of ozone observation at Syowa station from February 1982 to January 1983, Mem. Natl. Inst. Polar Res., 34, 13-19.
- Clilverd, M. A. et al. (2005), Modeling a large solar proton event in the southern polar atmosphere, J. Geophys. Res., 110, A09307, doi: 10.1029/2004JA010922.
- Cziczo, D. J., D. S. Thomson, & D. M. Murphy (2001), Ablation, flux, and atmospheric implications of meteors inferred from stratospheric aerosol, *Science*, 291(5509), 1772–1775, doi: 10.1126/science.1057737.
- Dammers, E. et al. (2016), An evaluation of IASI-NH3 with ground-based FTIR measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10,351-10,368, doi: 10.5194/acp-16-10351-2016.
- Dessler, A. E. (1998), A reexamination of the 'stratospheric fountain' hypothesis, *Geophys. Res. Lett.*, 25(22), 4165– 4168, doi: 10.1029/1998GL900120.
- Dhomse, S. et al. (2018), Estimates of Ozone Return Dates from Chemistry-Climate Model Initiative Simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 8409-8438, doi: 10.5194/acp-18-8409-2018.
- Diallo, M., B. Legras, & A. Chédin (2012), Age of stratospheric air in the ERA-Interim, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 12133-12154, doi: 10.5194/acp-12-12133-2012.
- Di Biagio, C. et al. (2010), Evolution of temperature, O₃, CO,

and N₂O profiles during the exceptional 2009 Arctic major stratospheric warming as observed by lidar and millimeterwave spectroscopy at Thule (76.5°N, 68.8°W), Greenland, *J. Geophys. Res.*, 115, D24315, doi: 10.1029/2010JD014070.

- Dupuy, E., H. Akiyoshi, & Y. Yamashita (2021), Impact of unmitigated HFC emissions on stratospheric ozone at the end of the 21st century as simulated by chemistry-climate models, J. Geophys. Res.: Atmospheres, 126, e2021JD035307, doi: 10.1029/2021JD035307.
- EGU (2019), Water vapour in the upper troposphere and middle atmosphere: a WCRP/SPARC satellite data quality assessment including biases, variability, and drifts, T. Leblanc and D. J. Carlson (eds.) ACP/AMT/ESSD interjournal Special Issue, https://acp.copernicus.org/articles/special issue830.html.
- Engel, A. et al. (2009), Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years, *Nature Geosci.*, 2, 28-31, doi: 10.1038/GEO388.
- Engel, A. et al. (2017), Mean age of stratospheric air derived from AirCore observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 6825– 6838, doi: 10.5194/acp-17-6825-2017.
- Errera, Q. et al. (2021), On the capability of the future ALTIUS ultraviolet–visible–near-infrared limb sounder to constrain modelled stratospheric ozone, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 4737–4753, doi: 10.5194/amt-14-4737-2021.
- Fahey, D. W., et al. (1993), In situ measurements constraining the role of sulphate aerosols in mid-latitude ozone depletion, *Nature*, 363, 509–514, doi: 10.1038/363509a0.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner, & J. D. Shanklin (1985), Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, 315, 207-210, doi: 10.1038/315207a0.
- Forster, P. M., & M.Joshi (2005), The role of halocarbons in the climate change of the troposphere and stratosphere. *Clim. Change*, 71, 249-266. doi: 10.1007/s10584-005-5955-7.
- Fu, Q., S. Solomon, & P. Lin (2010), On the seasonal dependence of tropical lower-stratospheric temperature trends, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2643–2653, doi: 10.5194/acp-10-2643-

2010.

- Fu, Q., P. Lin, S. Solomon, & D. L. Hartmann, (2015), Observational evidence of strengthening of the Brewer-Dobson circulation since 1980, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 10,214–10,228, doi: 10.1002/2015JD023657.
- Fueglistaler, S. et al. (2009), Tropical tropopause layer. *Reviews* of Geophysics, 47, RG1004, doi:10.1029/2008RG000267.
- Fueglistaler S., M. Abalos, T. J. Flannaghan, P. Lin, & W. J. Randel (2014), Variability and trends in dynamical forcing of tropical lower stratospheric tempera- tures, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 13439–13453, doi: 10.5194/acp-14-13439-2014.
- Fujiwara, M., P. Martineau, & J. S. Wright (2020), Surface temperature response to the major volcanic eruptions in multiple reanalysis data sets, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 345– 374, doi: 10.5194/acp-20-345-2020.
- Fujiwara, M. et al. (2021), Lower-stratospheric aerosol measurements in eastward-shedding vortices over Japan from the Asian summer monsoon anticyclone during the summer of 2018, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 3073–3090, doi: 10.5194/acp-21-3073-2021.
- Fussen, D. et al. (2019), The ALTIUS atmospheric limb sounder, J. Quant. Spectrosc. Ra., 238, 106542, doi: 10.1016/j.jqsrt.2019.06.021.
- Garcia, R. et al. (2015), On the secular trend of CO_x and CO₂ in the lower thermosphere, J. Geophys. Res., Atmos., 121, 3634–3644, doi: 10.1002/2015JD024553.
- García-Comas, M. et al. (2016), Measurements of global distributions of polar mesospheric clouds during 2005–2012 by MIPAS/Envisat, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 6701–6719, doi: 10.5194/acp-16-6701-2016.
- Garfinkel, C. I. et al. (2018), Nonlinear response of tropical lower stratospheric temperature and water vapor to ENSO, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 4597–4615, doi: 10.5194/acp-2017-520.
- Gettelman, A. et al. (2011), The extratropical upper troposphere and lower stratosphere, *Rev. Geophys.*, 49, RG3003, doi: 10.1029/2011RG000355.

- Godin-Beekmann, S. et al. (2022), Updated trends of the stratospheric ozone vertical distribution in the 60°S–60°N latitude range based on the LOTUS regression model, *Atmos. Chem. Phys., 22, 11657–11673*, doi: 10.5194/acp-22-11657-2022.
- Gray, L. J. et al. (2010), Solar influences on climate, *Rev. Geophys.*, 48, RG4001, doi: 10.1029/2009RG000282.
- Haase, J. et al. (2018), Around the world in 84 days, *Eos*, 99, doi: 10.1029/2018EO091907.
- Haefele, A. et al (2009), Validation of ground-based microwave radiometers at 22 GHz for stratospheric and mesospheric water vapor, J. Geophys. Res., 114, D23305, doi: 10.1029/2009JD011997.
- Hall, T. M., & R. A. Plumb (1994), Age as a diagnostic of stratospheric transport, *J. Geophys. Res.*, 99, 1059–1070, doi: 10.1029/93JD03192.
- Hannigan, J. W. et al. (2022), Global atmospheric OCS trend analysis from 22 NDACC stations, J. Geophys. Res.-Atmosphere, 127, e2021JD035764, doi: 10.1029/2021JD035764.
- Harris, N. R. P. et al. (2015), Past changes in the vertical distribution of ozone - Part 3: Analysis and interpretation of trends, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 9965-9982, doi: 10.5194/acp-15-9965-2015.
- Hassler, B. et al. (2014), Past changes in the vertical distribution of ozone - Part 1: Measurement techniques, uncertainties and availability, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 1395-1427, doi: 10.5194/amt-7-1395-2014.
- Hattori, S., K. Kamezaki, & N. Yoshida (2020), Constraining the atmospheric OCS budget from sulfur isotopes, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 117(34), 20447–20452, doi: 10.1073/pnas.2007260117.
- Hayakawa, H. et al. (2021), The intensity and evolution of the extreme solar and geomagnetic storms in 1938 January, *Astrophys. J.*, 909 id. 197, 14pp., doi: 10.3847/1538-4357/abc427.
- Haynes, P. H, M. E. McIntyre, T. G. Shepherd, C. J. Marks, & K.

P. Shine (1991), 0n the "downward contro1" of extratropical diabatic circulations by eddy-induced mean zonal forces, *J. Atmos. Sci.*, 48, 651-678, doi: 10.1175/1520-0469(1991)048<0651:OTCOED>2.0.CO;2.

- Haynes, P. et al. (2021), The influence of the stratosphere on the tropical troposphere, *Journal of the Meteorological Society* of Japan Ser. II, 99 803-845, doi: 10.2151/jmsj.2021-040.
- Heelis, R. A., & Maute, A. (2020), Challenges to understanding the Earth's ionosphere and thermosphere. J. Geophys. Res.-Space Physics, 125, e2019JA027497, doi: 10.1029/2019JA027497.
- Hegglin, M. I. et al. (2021), Overview and update of the SPARC Data Initiative: comparison of stratospheric composition measurements from satellite limb sounders, *Earth Syst. Sci. Data*, 13, 1855–1903, doi: 10.5194/essd-13-1855-2021.
- Hirsch, E. & I., Koren (2021), Record-breaking aerosol levels explained by smoke injection into the stratosphere, *Science*, 371, 1269–1274, doi: 10.1126/science.abe1415.
- Holton, J. R., & A. Gettelman (2001), Horizontal transport and the dehydration of the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 2799–2802, doi: 10.1029/2001GL013148.
- Holton, J. R. et al. (1995), Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of geophysics*, 33(4), 403-439, doi: 10.1029/95RG02097.
- Höpfner, M. et al. (2019), Ammonium nitrate particles formed in upper troposphere from ground ammonia sources during Asian monsoons, *Nat. Geosci.*, 12, 608–612, doi: 10.1038/s41561-019-0385-8.
- Hossaini, R. et al. (2016), A multi-model intercomparison of halogenated very short-lived substances (TransCom-VSLS): linking oceanic emissions and tropospheric transport for a reconciled estimate of the stratospheric source gas injection of bromine, *Atmos. Chem. Phys.*, 16(14), 9163-9187, doi: 10.5194/acp-16-9163-2016.
- Hurwitz, M. M. et al. (2015), Ozone depletion by hydrofluorocarbons, *Geophys. Res. Lett.*, 42, 8686–8692, doi: 10.1002/2015GL065856.

- Imai, K. et al. (2015), SMILES observations of mesospheric ozone during the solar eclipse, *Geophys. Res. Lett.*, 42, doi:10.1002/2015GL063323.
- Jackman, C. H. et al. (2005), Neutral atmospheric influences of the solar proton events in October–November 2003, J. Geophys. Res., 110, A09S27, doi: 10.1029/2004JA010888.
- Kablick, G. P. III., D. R. Allen, M. D. Fromm, & G. E. Nedoluha (2020), Australian pyroCb smoke generates synoptic-scale stratospheric anticyclones. *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2020GL088101, doi: 10.1029/2020GL088101.
- Katikala, S. (2014), Google project loon, InSight: Rivier Academic Journal, 10, 1-6
- Kawatani, Y., & K. Hamilton (2013), Weakened stratospheric quasibiennial oscillation driven by increased tropical mean upwelling, *Nature*, 497, 478–481, doi: 10.1038/nature12140.
- Kent, G. S., C. Trepte, P.-H. Wang, & P. Lucker (2003), Problems in separating aerosol and cloud in the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) II data set under conditions of lofted dust:Application to the Asian deserts, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4410, doi: 10.1029/2002JD002412.
- Khaykin, S., A. et al. (2022), Global perturbation of stratospheric water and aerosol burden by Hunga eruption, *Earth and Space Science Open Archive*, 31, doi: 10.1002/essoar.10511923.1.
- Kim, J., K.M. Grise, & S.-W. Son (2013), Thermal characteristics of the cold-point tropopause region in CMIP5 models, J. Geophys. Res. Atmos., 118, 8827–8841, doi: 10.1002/jgrd.50649.
- Kinoshita, T. et al. (2022), Toward Standard Radiosonde Observations of Waves and the Mean State in the 30–40 km Altitude Range Using 3–kg Balloons. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, doi: 10.1175/JTECH-D-21-0011.1.
- Kodera, K., & Y. Kuroda (2002), Dynamical response to the solar cycle, J. Geophys. Res., 107, 4749, doi: 10.1029/ 2002JD002224.
- Kohlhepp, R. et al. (2012), Observed and simulated time

evolution of HCl, ClONO₂, and HF total column abundances, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 3527-3557, doi: 10.5194/acp-12-3527-2012.

- Koldobskiy, S., O. Raukunen, R. Vainio, G. A. Kovaltsov & I. Usoskin (2021), New reconstruction of event-integrated spectra (spectral fluences) for major solar energetic particle events, *Astron. Astrophys.*. 647 A132, doi: 10.1051/0004-6361/202040058.
- Konopka, P., F. Ploeger, M. Tao, & M. Riese (2016), Zonally resolved impact of ENSO on the stratospheric cir- culation and water vapor entry values, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *121* (19), 11,486–11,501, doi: 10.1002/2015JD024698.
- Kovilakam, M. et al. (2020), The Global Space-based Stratospheric Aerosol Climatology (version 2.0): 1979— 2018, Earth Syst. Sci. Data, 12(4), 2607–2634, doi: 10.5194/essd-12-2607-2020
- Kremser, S. et al. (2016), Stratospheric aerosol—Observations, processes, and impact on climate, *Rev. Geophys.*, 54, 278– 335, doi: 10.1002/2015RG000511.
- Kuang, Z., & C. S. Bretherton (2004), Convective influence on the heat balance of the tropical tropopause layer: A cloudresolving model study, *J. Atmos. Sci.*, 61, 2919–2927. doi: 10.1175/JAS-3306.1.
- Liu, H., Tao, C., Jin, H., & Nakamoto, Y. (2020), Circulation and tides in a cooler upper atmosphere: Dynamical effects of CO₂ doubling, *Geophys. Res. Lett.*, 47(10), e2020GL087413, doi: 10.1029/2020GL087413.
- Livesey, N. J. et al. (2022), Earth Observing System (EOS) Aura Microwave Limb Sounder (MLS) Version 5.0x Level 2 and 3 data quality and description document, Pasadena: California Institute of Technology.
- López-Puertas, M. et al. (2005), Observation of NO_x enhancement and ozone depletion in the Northern and Southern Hemispheres after the October–November 2003 solar proton events, *J. Geophys. Res.*, 110, A09S43, doi: 10.1029/2005JA011050.
- Mahieu, E. et al. (2014), Recent Northern Hemisphere

stratospheric HCl increase due to atmospheric circulation changes, *Nature*, 515, 104-107, doi: 10.1038/nature13857.

- Maliniemi, V., H. N. Tyssøy, C. Smith-Johnsen, P. Arsenovic, & D. R. Marsh (2021), Effects of enhanced downwelling of NOx on Antarctic upper-stratospheric ozone in the 21st century, *Atmos. Chem. Phys.*, *21*, 11041–11052. doi: 10.5194/acp-21-11041-2021.
- Manney, G. L. et al. (2020), Record-Low Arctic Stratospheric Ozone in 2020: MLS Observations of Chemical Processes and Comparisons With Previous Extreme Winters, *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2020GL089063, doi: 10.1029/2020GL089063.
- Millán, L. et al. (2022), The Hunga Tonga-Hunga Ha'apai Hydration of the Stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 49, e2022GL099381, doi: 10.1029/2022GL099381.
- Mills, M. J. et al. (2016), Global volcanic aerosol properties derived from emissions, 1990-2014, using CESM1 (WACCM), J. Geophys. Res. Atmos., doi: 10.1002/2015JD024290.
- Minnis, P. et al. (1993), Radiative climate forcing by the mount Pinatubo eruption, *Science*, 259(5100), 1411-5, doi: 10.1126/science.259.5100.1411.
- Miyake, F., K. Nagaya, K. Masuda, & T. Nakamura (2012), A signature of cosmic-ray increase in AD 774–775 from tree rings in Japan, *Nature*, 486, 240–242, doi: 10.1038/nature11123.
- Miyazaki, K. et al. (2016), Inter-comparison of stratospheric mean-meridional circulation and eddy mixing among six reanalysis data sets, *Atmos. Chem. Phys.*, *16*, 6131–6152, doi: 10.5194/acp-16-6131-2016.
- Miyoshi, Y. et al. (2021), Penetration of MeV electrons into the mesosphere accompanying pulsating aurorae, *Sci. Rep.*, 11, 13724, doi: 10.1038/s41598-021-92611-3.
- Montzka, S. A. et al. (2018), An unexpected and persistent increase in global emissions of ozone-depleting CFC-11, *Nature*, 557, 413-417, doi: 10.1038/s41586-018-0106-2.
- Mote, P. W. et al. (1996), An atmospheric tape recorder: The

imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor, *J. Geophys. Res.*, *101*, 3989-4006, doi: 10.1029/95JD03422.

- Nakazawa, T. et al. (2002), Variations of stratospheric trace gases measured using a balloon-borne cryogenic sampler, *Adv. Space Res.*, 30(5), 1349-1357, doi: 10.1016/S0273-1177(02)00551-3.
- NASEM (National Academies of Sciences, Engineering, and Medicine) (2018), *Thriving on Our Changing Planet: A Decadal Strategy for Earth Observation from Space (ESAS-*2017), Washington, DC: The National Academies Press, doi: 10.17226/24938.
- NASEM (National Academies of Sciences, Engineering, and Medicine) (2021), *Reflecting Sunlight: Recommendations* for Solar Geoengineering Research and Research Governance, Washington, DC: The National Academies Press, doi: 10.17226/25762.
- Nesse Tyssøy, H. et al. (2022), HEPPA III Intercomparison Experiment on Electron Precipitation Impacts: 1. Estimated Ionization Rates During a Geomagnetic Active Period in April 2010, J. Geophys. Res.: Space Physics, 126, e2021JA029128, doi: 10.1029/2021JA029128.
- Newchurch, M. J. et al. (2003), Evidence for slowdown in stratospheric ozone loss: First stage of ozone recovery, J. Geophys. Res., 108(D16), 4507, doi: 10.1029/2003JD003471
- Newell, R. E., & S. Gould-Stewart (1981), A stratospheric fountain?, J. Atmos. Sci., 38, 2789–2796 doi: 10.1175/1520-0469(1981)038<2789:ASF>2.0.CO;2.
- Notholt, J. et al. (2003), Enhanced Upper Tropical Tropospheric COS: Impact on the Stratospheric Aerosol Layer, *Science*, 300(5617), 307–310, doi: 10.1126/science.1080320.
- Notholt, J. et al. (2005), Influence of tropospheric SO₂ emissions on particle formation and the stratospheric humidity, *Geophys. Res. Lett.*, 32, doi: 10.1029/2004GL022159.
- NRC (National Research Council) (2007), Earth Science and Applications from Space: National Imperatives for the Next

*Decade and Beyond (ESAS-2007).* Washington, DC: The National Academies Press, doi: 10.17226/11820.

- Ohneiser, K. et al. (2021), The unexpected smoke layer in the High Arctic winter stratosphere during MOSAiC 2019–2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 15783–15808, doi: 10.5194/acp-21-15783-2021.
- Ossó, A. et al. (2015), How robust are trends in the Brew- er– Dobson circulation derived from observed stratospheric temperatures?, J. Clim., 28, 3024–3040, doi: 10.1175/JCLI-D-14-00295.1.
- Ouchi, M. et al. (2019), Development of a balloon-borne instrument for CO₂ vertical profile observations in the troposphere, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 5639–5653, doi: 10.5194/amt-12-5639-2019.
- Park, M., Randel, W. J., Gettelman, A., Massie, S. T., & Jiang, J. H. (2007), Transport above the Asian summer monsoon anticyclone inferred from Aura Microwave Limb Sounder tracers. J. Geophys. Res. Atmospheres, 112(D16), D16309, doi: 2007JGRD..11216309P.
- Peterson, D. et al. (2018), Wildfire-driven thunderstorms cause a volcano-like stratospheric injection of smoke, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 1, 30, doi: 10.1038/s41612-018-0039-3.
- Plumb, R.A. (2002), Stratospheric transport, J. Meteor. Soc. Japan Ser. II, 80,793-809, doi: 10.2151/jmsj.80.793.
- Plumb, R. A., & R. C. Bell (1982), A model of the quasi-biennial oscillation on an equatorial beta-plane, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 108, 335-352, doi: 10.1002/qj.49710845604.
- Proud, S. R., Prata, A., & Schmauss, S. (2022), The January 2022 eruption of Hunga Tonga-Hunga Ha'apai volcano reached the mesosphere, *Earth and Space Science Open Archive*, 11. doi: 10.1002/essoar.10511092.1.
- Rabier, F. et al. (2010), The Concordiasi Project in Antarctica, Bull. Amer. Meteor. Soc., 91, 69-86, doi: 10.1175/2009BAMS2764.1.
- Randall, C. E. et al. (2005), Stratospheric effects of energetic particle precipitation in 2003–2004, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L05802, doi: 10.1029/2004GL022003.

- Randall, C. E. et al. (2007), Energetic particle precipitation effects on the Southern Hemisphere stratosphere in 1992– 2005, *J. Geophys. Res.*, 112, D08308, doi: 10.1029/2006JD007696.
- Randel, W. J., D. J. Seidel, & L. L. Pan (2007), Observational characteristics of double tropopauses, *J. Geophys. Res.*, 112, D07309, doi: 10.1029/2006JD007904.
- Randel, W. J.et al. (2010), Asian monsoon transport of pollution to the stratosphere. *Science*, 328(5978), 611-613, doi: 10.1126/science.1182274.
- Randel, W.J., & A.M. Thompson (2011), Interannual variability and trends in tropical ozone derived from SAGE II satellite data and SHADOZ ozonesondes, *J. Geophys. Res.*, 116 (D7), D07303, doi: 10.1029/2010JD015195.
- Ravishankara, A. R., J. S. Daniel, & R.W. Portmann (2009), Nitrous oxide (N₂O): The dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century, *Science*, 326, 123-125. doi: 10.1126/science.1176985.
- Revell, L.E. et al. (2016), The role of methane in projections of 21st century stratospheric water vapour, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 13,067–13,080, doi: 10.5194/acp-16-13067-2016.
- Rieder, H. E., G. Chiodo, J. Fritzer, C. Wienerroither & L. M. Polvani (2019), Is interactive ozone chemistry important to represent polar cap stratospheric temperature variability in Earth-System Models?, *Environ. Res. Lett.*, 14, 044026. doi: 10.1088/1748-9326/ab07ff.
- Rieger, L. A., W. J. Randel, A. E. Bourassa, & S. Solomon (2021), Stratospheric temperature and ozone anomalies associated with the 2020 Australian New Year fires. *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL095898. doi: 10.1029/2021GL095898.
- Rigby, M. et al. (2019), Increase in CFC-11 emissions from eastern China based on atmospheric observations, *Nature*, 569, 546-550, doi: 10.1038/s41586-019-1193-4.
- Robock, A. (2000), Volcanic eruptions and climate, *Rev. Geophys.*, 38(2), 191–219, doi: 10.1029/1998RG000054.
- Robock, A. (2007), Correction to "Volcanic eruptions and climate", *Rev. Geophys.*, 45, RG3005, doi:

10.1029/2007RG000232.

- Rodriguez, J. M. et al. (1994), Ozone response to enhanced heterogeneous processing after the eruption of Mt. Pinatubo, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 209-212, doi: 10.1029/93GL03537.
- Ryan, N. J. et al. (2018), Assessing the ability to derive rates of polar middle-atmospheric descent using trace gas measurements from remote sensors, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 1457–1474, doi: 10.5194/acp-18-1457-2018.
- Sakazaki, T. et al. (2013), Diurnal ozone variations in the stratosphere revealed in observations from the Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder (SMILES) on board the International Space Station (ISS), J. Geophys. Res. Atmos., 118, 2991– 3006, doi: 10.1002/jgrd.50220.
- Santee, M. L. et al. (2017), A comprehensive overview of the climatological composition of the Asian summer monsoon anticyclone based on 10 years of Aura Microwave Limb Sounder measurements, J. Geophys. Res. Atmos., 122, 5491– 5514, doi: 10.1002/2016JD026408.
- Satoh, M. et al. (2014), The non-hydrostatic icosahedral atmospheric model: Description and development. *Prog. in Earth and Planet. Sci.*, 1(1), 1-32, doi: 10.1186/s40645-014-0018-1.
- Schoeberl, M. R. et al. (2022), Analysis and impact of the Hunga Tonga-Hunga Ha'apai Stratospheric Water Vapor Plume, *Geophys. Res. Lett.*, 49, e2022GL100248, doi: 10.1029/2022GL100248.
- Schranz, F. et al. (2019), Investigation of Arctic middleatmospheric dynamics using 3 years of H₂O and O₃ measurements from microwave radiometers at Ny-Ålesund, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 9927–9947, doi: 10.5194/acp-19-9927-2019.
- Schwartz, M. J. et al. (2020), Australian new year's pyroCb impact on stratospheric composition. *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2020GL090831, doi 10.1029/2020GL090831.
- Seviour, W. J. M., N. Butchart, & S. Hardiman (2012), The Brewer-Dobson circulation inferred from ERA-Interim, *Q. J.*

R. Meteorol. Soc., 138 (665), 878-888. doi: 10.1002/qj.966.

- Sigmond, M., M. C. Reader, J. C. Fyfe, & N. P. Gillett (2011), Drivers of past and future Southern Ocean change: Stratospheric ozone versus greenhouse gas impacts, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L12601, doi: 10.1029/2011GL047120.
- Sinnhuber, M. et al. (2018), NO_y production, ozone loss and changes in net radiative heating due to energetic particle precipitation in 2002–2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 1115– 1147, doi: 10.5194/acp-18-1115-2018.
- Sinnhuber, M. et al. (2022), Heppa III intercomparison experiment on electron precipitation impacts: 2. Modelmeasurement intercomparison of nitric oxide (NO) during a geomagnetic storm in April 2010, J. Geophys. Res.: Space Physics, 126, e2021JA029466, doi: 10.1029/2021JA029466.
- Sioris, C.E.et al. (2014), Trend and variability in ozone in the tropical lower stratosphere over 2.5 solar cycles observed by SAGE II and OSIRIS, *Atmos. Chem. Phys.*, 14 (7), 3479– 3496, doi: 10.5194/acp-14-3479-2014.
- Smalley, K.M. et al. (2017), Contribution of different processes to changes in tropical lower-stratospheric water vapor in chemistry–climate models, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8031– 8044, doi: 10.5194/acp-17-8031-2017.
- Solomon, A., L. M. Polvani, K. L. Smith, & R. P. Abernathey (2015), The impact of ozone depleting substances on the circulation, temperature, and salinity of the Southern Ocean: An attribution study with CESM1(WACCM), *Geophys. Res. Lett.*, 42, 5547-5555, doi: 10.1002/2015GL064744.
- Solomon, S. et al. (1996), The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes, J. Geophys. Res., 101, 6713–6727, doi: 10.1029/95JD03353.
- Solomon, S. (1999), Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Rev. Geophys.*, 37, 275-314, doi: 10.1029/1999RG900008.
- Solomon, S. et al (2010), Contributions of stratospheric water vapor to decadal changes in the rate of global warming, *Science*, 327, 1219–1223, doi: 10.1126/science.1182488.

- Solomon, S. et al. (2016), Emergence of healing in the Antarctic ozone layer, *Science*, 353, 269-274. doi: 10.1126/science.aae0061.
- Solomon, S. et al. (2022), On the stratospheric chemistry of midlatitude wildfire smoke, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 119(10), e2117325119, doi: 10.1073/pnas.2117325119.
- Son, S.-W. et al. (2008), The impact of stratospheric ozone recovery on the southern hemisphere westerly jet, *Science*, 320(5882), 1486-1489, doi: 10.1126/science.1155939.
- SPARC (2017), The SPARC Data Initiative: Assessment of stratospheric trace gas and aerosol climatologies from satellite limb sounders, M. I. Hegglin and S. Tegtmeier (Eds.), SPARC Report No. 8, WCRP-5/2017, doi: 10.3929/ethz-a-010863911, available at www.sparcclimate.org/publications/sparc-reports/.
- SPARC (2022), SPARC Reanalysis Intercomparison Project (S-RIP) Final Report, M. Fujiwara, G. L. Manney, L. J. Gray, and J. S. Wright (Eds.), SPARC Report No. 10, WCRP-6/2021, doi: 10.17874/800dee57d13, available at https://www.sparc-climate.org/sparc-report-no-10/.
- SPARC/IO3C/GAW (2019), SPARC/IO3C/GAW Report on Long-term Ozone Trends and Uncertainties in the Stratosphere, I. Petropavlovskikh et al. (Eds.), SPARC Report No. 9, GAW Report No. 241, WCRP-17/2018, doi: 10.17874/f899e57a20b, available at www.sparcclimate.org/publications/sparc-reports.
- Stähli, O., Murk, A., Kämpfer, N., Mätzler, C., & Eriksson, P. (2013), Microwave radiometer to retrieve temperature profiles from the surface to the stratopause, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 2477–2494, doi: 10.5194/amt-6-2477-2013.
- Steinbrecht, W. et al. (2017), An update on ozone profile trends for the period 2000 to 2016, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 10675– 10690, doi: 10.5194/acp-17-10675-2017.
- Stiller, G.P. et al. (2012), Observed temporal evolution of global mean age of stratospheric air for the 2002 to 2010 period, *Atmos. Chem. Phys.*, 12 (7), 3311-3331, doi: 10.5194/acp-12-3311-2012.

- Stone, K. A., S. Solomon, D. E. Kinnison, & M. J. Mills (2021), On recent large Antarctic ozone holes and ozone recovery metrics, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL095232. doi: 10.1029/2021GL095232.
- Tada, M., K. Yoshimura, & K. Toride (2021), Improving weather forecasting by assimilation of water vapor isotopes, *Sci. Rep.*, 11, 18067, doi: 10.1038/s41598-021-97476-0.
- Taha, G. et al. (2022), Tracking the 2022 Hunga Tonga-Hunga Ha'apai aerosol cloud in the upper and middle stratosphere using space-based observations. *Geophys. Res. Lett.*, 49, e2022GL100091, doi: 10.1029/2022GL100091.
- Takeda, M. et al. (2021), First ground-based Fourier transform infrared (FTIR) spectrometer observations of HFC-23 at Rikubetsu, Japan, and Syowa Station, Antarctica, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 5955-5976, doi: 10.5194/amt-14-5955-2021.
- Tarasick, D. W. et al. (2021), Improving ECC ozonesonde data quality: Assessment of current methods and outstanding issues. *Earth and Space Science*, 8, e2019EA000914, doi: 10.1029/2019EA000914.
- Thompson, D.W.J., & S. Solomon (2009), Understanding recent stratospheric climate change, *J. Clim.*, 22 (8), 1934–1943, doi: 10.1175/2008JCLI2482.1.
- Toride, K. et al. (2021), Potential of Mid-tropospheric Water Vapor Isotopes to Improve Large-Scale Circulation and Weather Predictability, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2020GL091698, doi: 10.1029/2020GL091698.
- Tritscher, I. et al. (2021), Polar stratospheric clouds: Satellite observations, processes, and role in ozone depletion, *Rev. Geophys.*, 59, e2020RG000702, doi: 10.1029/2020RG000702.
- Usoskin, I. G. et al. (2020), Revisited reference solar proton event of 23 February 1956: Assessment of the cosmogenicisotope method sensitivity to extreme solar events, J. Geophys. Res.: Space Physics, 125, e2020JA027921, doi: 10.1029/2020JA027921.

- Usoskin, I. G. & G. A. Kovaltsov (2021), Mind the gap: New precise 14C data indicate the nature of extreme solar particle events, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL094848, doi: 10.1029/2021GL094848.
- Velazco, V. A. et al. (2017), TCCON Philippines: First measurement results, satellite data and model comparisons in Southeast Asia, *Remote Sens.*, 9, 1228, doi: 10.3390/rs9121228.
- Vernier, J. -P. et al. (2011), Major influence of tropical volcanic eruptions on the stratospheric aerosol layer during the last decade, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L12807, doi: 10.1029/2011GL047563.
- Vernier, J. -P. et al. (2015), Increase in upper tropospheric and lower stratospheric aerosol levels and its potential connection with Asian pollution, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 1608–1619, doi: 10.1002/2014JD022372.
- Vernier, J. -P. et al. (2018), BATAL: The Balloon Measurement Campaigns of the Asian Tropopause Aerosol Layer, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 99, 955-973, doi: 10.1175/BAMS-D-17-0014.1.Vömel, H., David, D.E., & Smith, K. (2007), Accuracy of tropospheric and stratospheric water vapor measurements by the cryogenic frost point hygrometer: instrumental details and observations, *J. Geophys. Res.* 112, D08305, doi: 10.1029/2006JD007224.
- Waugh D.W. (2009), Age of stratospheric air, Nat. Geosci., 2, (1), 14–16, doi: 10.1038/ngeo397.
- Waugh, D.W. & T.M. Hall (2002), Age of stratospheric air: Theory, observations, and models, *Rev. Geophys.*, 40, 1010, doi: 10.1029/2000RG000101.
- Waugh, D. W., F. Primeau, T. DeVries, & M. Holzer (2013), Recent Changes in the Ventilation of the Southern Oceans, *Science*, 339 (6119), 568-570. doi: 10.1126/science.1225411
- Weimer, D. R., M. G. Mlynczak, L. A. Hunt, & W. K. Tobiska (2015), High correlations between temperature and nitric oxide in the thermosphere, *J. Geophys. Res. Space Physics*, 120, 5998–6009, doi: 10.1002/2015JA021461.
- WMO (1957), Meteorology-A three-dimensional science,

WMO Bull., 6, 134-138.

- WMO (2003), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002,
  Global Ozone Research and Monitoring Project—Report No.
  47, 498 pp., Geneva, Switzerland.
- WMO (2007), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006,
  Global Ozone Research and Monitoring Project—Report No. 50, 572 pp., Geneva, Switzerland.
- WMO (2010), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2010, Global Ozone Research and Monitoring Project—Report No. 52, 516 pp., Geneva, Switzerland.
- WMO (2014), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, Global Ozone Research and Monitoring Project—Report No. 55, 416 pp., Geneva, Switzerland.
- WMO (2018), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2018,
  Global Ozone Research and Monitoring Project—Report No. 58, 588 pp., Geneva, Switzerland.
- Xia, Y. et al. (2021), Significant contribution of severe ozone loss to the Siberian-Arctic surface warming in spring 2020, *Geophysical Research Letters*, 48, e2021GL092509, doi: 10.1029/2021GL092509.
- Yamashita, Y. et al. (2010), Ozone and temperature response of a chemistry climate model to the solar cycle and sea surface temperature, J. Geophys. Res., 115, D00M05, doi: 10.1029/2009JD013436.
- Yoneyama, K. et al. (2021), Evaluation of LMS6 and RS41 radiosonde humidity data obtained during YMC-Boreal Summer Monsoon study in 2018 and 2020, *J. Meteor. Soc. Japan*, 99, 1115-1125, doi: 10.2151/jmsj.2021-054.
- Yook, S., D. W. Thompson, S. Solomon, & S.-Y. Kim (2020). The Key Role of Coupled Chemistry–Climate Interactions in Tropical Stratospheric Temperature Variability, *J. Climate*, 33, 7619-7629, doi: 10.1175/JCLI-D-20-0071.1.
- Yu, P. et al. (2021), Persistent stratospheric warming due to 2019–2020 Australian wildfire smoke, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL092609, doi: 10.1029/2021GL092609.
- Yue, J. et al. (2015), Increasing carbon dioxide concentration in the upper atmosphere observed by SABER, *Geophys. Res.*

Lett., 42, 7194-71996, doi: 10.1002/2015GL064696.

経済産業省 オゾン層保護等推進室, モントリオール議定

書及びキガリ改正の概要 (2017), https://www.env.go.jp/press/y067-07/ref01 5.pdf

- 斎藤芳隆ほか (2021), LODEWAVE 実験にむけたスーパー プレッシャー気球の開発(I), *宇宙航空研究開発機構研 究開発報告: 大気球研究報告*, JAXA-RR-20-009, 35-56, 2021.
- 杉本伸夫ほか (2017),南米(アルゼンチン,チリ)対流圏エ アロゾル観測ライダーネットワークの構築,第35回レ ーザーセンシングシンポジウム参加予稿集, https:/laser-sensing.jp/35thLSS/35th_papers/F-

7_Sugimoto.pdf

- 杉山昌広,西岡純,藤原正智 (2011),気侯工学 (ジオエンジニアリング), 天気, 58, 577-598,
   https://www.metsoc.jp/tenki/pdf/2011/2011_07_0003.pdf
- 田中豊顕,小林隆久,水野量,気象測器-高層気象観測篇, *気 象 研 究 ノ* ー ト, 194, 61-111, 1999, doi: 10.11501/3203992.
- 冨川喜弘 ほか (2021)、南極域における大気重力波のスーパープレッシャー気球観測計画 (LODEWAVE : LOng-Duration balloon Experiment of gravity WAVE over Antarctica)、宇宙航空研究開発機構研究開発報告: 大気球研究報告, JAXA-RR-20-009, 19-33, 2021.
- 中島英彰 (2012), 観測史上初の 2011 年北極オゾンホール, Japan Geosci. Lett., Vol. 8, No. 3.
- 服部祥平, 石野咲子, 亀崎和輝, 吉田尚弘 (2016), 安定同 位体情報を用いた硫酸エアロゾルとその関連物質の動 態 解 析 , エアロゾル研究, 31(1), 15 - 22, doi: 10.11203/jar.31.15.

原稿受領日: 2022 年 5 月 20 日 掲載受理日: 2022 年 11 月 20 日

# 著者所属:

- 1. 九州大学 応用力学研究所
  - 2. 国立環境研究所
  - 3. 気象庁気象研究所
- 4. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所
- 5. 国立極地研究所
- 6. 京都大学 大学院理学研究科
- * 責任著者:

Akira Mizuno <mizuno@isee.nagoya-u.ac.jp>

# 大気エアロゾル粒子の発生から輸送における経験と個々の粒子の存在状態との関係に関する観測的研究

Observational study for the relationship between individual features of atmospheric aerosol particles and their experience with emission and atmospheric transportation

# 上田紗也子1*

大気エアロゾル粒子は、大気中を浮遊し、輸送されることで、グローバルな大気環境や沈着場所の環 境に多様な影響を及ぼしています。個々のエアロゾル粒子のサイズや組成、形態などの存在状態は、 排出後も大気中で変化します。このような変化は、エアロゾル粒子の光学特性や雲凝結核能に強く影 響するため、エアロゾルの輸送・沈着や放射影響力を見積もる際の重要な鍵になります。よって、地球 環境におけるエアロゾル粒子の役割を正確に理解する上で、大気エアロゾル粒子の実態とその変化 要因を知る必要があると言えます。本稿では、吸湿性、混合状態、形態、サイズなど、大気エアロゾル 粒子の個性に焦点をあて、排出源から遠隔地、雲の中にわたり実施してきた観測的研究の成果を紹 介させて頂きます。

# 1. はじめに

この度は日本大気化学会奨励賞を頂き,大変光 栄に思います。大変恐れ多い気持ちで押し潰されそ うになります。筆者は東京理科大学理学部第一部物 理学科に在学していた際に取り組んだ,都市大気エ アロゾル粒子の吸湿特性の観測[上田&三浦,2007] をきっかけに,エアロゾル粒子一つ一つの個性とそ の変化に焦点を置いた研究を続けることになりました。 途中,二児の出産・育児により研究活動を中断して いた期間がありましたが,結果的に,時間をかけて考 え続けたことが成果に繋がった研究が多かったように 思います。本稿では,これまでの研究成果を紹介し, 支えて下さった皆様への謝意と共に,研究活動を通 じて今感じていることにも触れさせて頂きたいと思い ます。

# 2. 山岳での雲の中のエアロゾル観測

大気エアロゾル粒子は種々の組成・サイズを有し ます。ススや大気中で生成する二次粒子の多くは、 サブミクロンサイズの粒子として存在しています。サブ ミクロンサイズの粒子の場合,自重で沈下したり雨粒 と衝突したりする可能性が低いため、大気からの除去 過程としては,雲に取り込まれた後に雨として沈下す る過程が重要です。逆に考えると, 雲粒にならない粒 子は、大気中に長く留まる可能性があります。 粒子の 長距離輸送を視野に,実際に降水を伴う雲で大気中 に残留しているエアロゾル粒子の特徴を調査するた め,2007年立山の標高2300mでエアロゾル観測を 行いました。降水強度の強い霧の発生時, 粒子数濃 度の減少に伴いススの体積割合が増加するイベント を捉えました。採取した透過型電子顕微鏡(TEM)観 察用試料について,水透析法[Okada, 1983]により水 溶性物質を抽出した前後の同視野像を比較すること で,この際の雲粒間粒子の多くが,水溶性付着物の 無いスス粒子であったことを示しました[Ueda et al., 2011a]。

一方, 雲の中では, 雲粒への気体物質の溶け込 みや雲粒同士の併合が起こるため、降水として落とさ れずに残った粒子のサイズや組成は雲過程の経験 によって大きく変わり得ます。この過程は、粒子成長 の重要なプロセスの一つとして,一般的な粒子サイズ 分布に見られる蓄積モード粒子の成り立ちの説明に よく用いられています [e.g., Meng & Seinfeld, 1994; Kerminen & Wexler, 1995; Huang & Yu, 2008]。しかし, 雲過程を直接調査した観測研究は乏しく, 実際のエ アロゾルへの影響を殆ど実証されてきませんでした。 雲や上層の大気観測拠点の一つとして, 富士山測 候所が利用されています[e.g., 長岡ら, 2013; Kato et al., 2016; Iwamoto et.al., 2021]。 筆者は 2011・2012 年, 測候所が開所される夏季に,山道での雲鉛直観測を 実施しました。 雲過程前後の粒子を調査するために, 山頂から徒歩で下山しながら,雲の上・中・下部での 測定・試料採取を行いました。雲の下部と上部での 海塩粒子の組成の違いから, 雲過程後と見られる雲 上部で硫酸塩が多く付加されていることを示しました [Ueda et al., 2014]。さらに, 雲底の海塩粒子中の S/Na 比を基準として雲上部のSの増加量を見積もる ことで, 雲過程で付加した硫酸塩による質量増加割 合を推定しました。

# 3. 排出源から遠隔地にわたるスス粒子の実 態調査

化石燃料の燃焼や森林火災など、炭素を含むモノ が不完全燃焼する際、多くのススが排出されます。ス スは、黒色炭素を母体とした強い光吸収性を示す物 質であることから、大気加熱効果や、雪氷圏へ長距 離輸送され沈着した際の雪面アルベドの弱化などに よる気候影響が指摘されてきました[e.g., Hansen & Nazarenco, 2004; Ramanathan & Carmichael, 2008; Bond et.al., 2013]。化石燃料の燃焼から大気に排出 された直後のススはほぼ非吸湿性粒子ですが、大気 中で硫酸塩など、水溶性の二次生成物質が付着す ると、粒子としては吸湿性を獲得します。ススへの付 着物は、スス含有粒子の光学特性や雲凝結核能を 変えます。そのため、大気加熱効果と大気輸送量の 推定では、スス粒子の変質と除去過程の扱いが重要 と言われてきました[e.g., Croft et al., 2005; Stier et al., 2006; Choi et al., 2020]。しかし、ススの実際の存在状 態については不明な部分が多かったため、筆者はこ れまで、排出から長距離輸送におけるススの実態調 査を多く行ってきました。

#### 3.1 越境汚染気塊中のスス含有粒子

2008 年の春季に、国立環境研究所の辺戸岬大 気・エアロゾル観測ステーションにて、東アジア由来 の越境気塊に焦点をあてた観測に参加しました [Ueda et al., 2011a; Osada et al., 2011]。中国沿岸域 を経由した気塊が飛来した際、粒子数濃度が高い傾 向にありました。この時採取した TEM 試料では、球 や結晶型、それらの凝集体など、様々な形状の硫酸 塩粒子と共存するススが多くみられました。水透析前 後の画像解析に基づき、殆どのスス含有粒子は、体 積の8割以上が水溶性物質であることを明らかにしま した[Ueda et al., 2011a]。

ススが光散乱性の被覆物に覆われている場合,レ ンズ効果によって裸のススよりも光吸収係数が高くな る可能性があります。レンズ効果があることは,球体 で Shell-Core 構造を持つスス含有粒子を想定して理 論的に証明されていましたが,この仮定では実際の 複雑な形状や組成を有する被覆物の付いたススより もレンズ効果を過大評価する点も指摘されていました [Lack & Cappa, 2010; Adachi et al., 2010]。そのため, スス含有粒子の光吸収量を見積もる上で,実際に大 気中に存在するスス含有粒子のレンズ効果を知る必 要がありました。2014 年の 4-5 月,金沢大学・能登ス ーパーサイト(NOTOGRO)で,ススに関する集中観測 が行われました[Ueda et al., 2016a; 竹谷ら, 2016]。 大気エアロゾル粒子と加熱により揮発性物質を取り 除いた粒子に対し,光音響法を用いた光吸収係数を 測定することで,付着物によるススの光吸収量の増加 分を測定することができます[e.g., Nakayama et al., 2014]。NOTOGRO における観測では,光吸収の増 加分が 781 nm 波長で平均 1.22 倍であることが示さ れました[Ueda et al., 2016a]。さらに,採取した TEM 試料のスス含有粒子の元素組成や形態パラメータと レンズ効果の測定値を比較することで,スス含有粒子 の被覆が厚く,かつ Shell-Core 構造により近い形状 のケースで光吸収係数が高い傾向にあることが示さ れました。

# 3.2 遠隔外洋域のスス粒子

排出源や汚染気塊のススについては多くの観測 報告があります。しかし、スス粒子の個数濃度が少な い排出源からより離れた場所でのススに関する報告 は限られています。 筆者らは, 遠隔外洋域のスス粒 子の情報を得るために, 2008年12月から2009年2 月にかけて、インド洋・南極海での船舶観測(観測/訓 練船海鷹丸・UM-08-09 航海)に参加し、スス濃度の 測定と観察を試みました[Ueda et al., 2018]。水透析 前後で撮影した試料上の粒子は殆ど全て水溶性粒 子でした。しかし、水透析後の写真をくまなく探すこと で,数百~数千個に1個程度の希少なススを発見し, 水透析前と合わせて混合状態と形態を示すことがで きました。南緯 65 度より北では,船舶交通量の少な い遠隔外洋域においても、被覆物のないススも 2~3 割見つかりました。南緯65度以南の南極沿岸域では, バルク試料の化学分析の結果と合わせ、その地域の 海洋生物活動を起源とする硫酸がススに付着してい ることを示唆しました。

# 3.3 排出時が運命の鍵?

越境汚染気塊の観測では,殆どのススに二次生成 物質が付着していましたが,遠隔外洋域では被覆物 のないススも,少なくない数割合で見つかりました。ど

のスス粒子にも時間の経過と共に一様に付着物が付 着すると考えた場合、この遠隔外洋域の結果を説明 することができません。そこで,ススには,付着物の付 きやすい表面を持つものと,そうではないものが存在 し,遠隔地ではマイノリティな後者が生き残って際立 つ,といった仮説を立てました。これを調査するため, ススが多く排出される都市域に改めて焦点を当て、ス スの濡れ性を調査する観測を東京で実施しました [Ueda et al., 2022]。非吸湿性粒子の臨界過飽和度 は、粒子のサイズと微妙な表面状態(微量水溶性付 着物の有無や水との接触角)に依存します [Pruppacher & Klett, 1997; Dusek et al., 2006], CO 理論に基づき,非吸湿性粒子の濡れ性別の個数濃 度を雲凝結核計等で測定する方法を考案しました。 203 nm の粒子に対する調査の結果, ラッシュアワー 時に排出される非吸湿性粒子は,完全な疎水性の 粒子よりは,濡れ性を持つものがマジョリティな傾向 があることを示しました。さらに、採取した試料上に観 察されたスス粒子の形態と組成分布から,燃料由来 の微量の水溶性物質が予め付着しているススが多く あること、またそのような付着物が大気中で二次生成 した硫酸塩の付着の起点となり得ることが示唆されま した。

# 4. 観測・観察からの発掘

筆者はこれまで都市域から遠隔外洋域にわたる観 測に参加してきました。ある程度の結果を予測して観 測に挑みますが、予想と異なる結果に翻弄されること も多くありました。2011年に参加した太平洋広域の船 舶観測(学術研究船白鳳丸・KH-11-10KH-12-1航 海)では、大気エアロゾル粒子や大気電気、海洋生 物活動の相互作用に関する多角的な調査に取り組 みました[Kamogawa et al., 2014; Ueda et al., 2016b; 三木ら、2014; Ueda et al., 2020]。エアロゾルサイズ別 個数濃度の測定では、海洋生物活動が盛んな赤道 上の富栄養海域で、一度くらい新粒子生成が起こる ことを期待していました。しかし、赤道上で観測された

のは、既によく太った粒子ばかりでした。そこで、デー タのコントラストを変えて丁寧に見直したところ,想定 外のペルー沖で,弱い新粒子生成がしばしば発生し ていることがわかりました[Ueda et al., 2016b]。この成 果は,海洋境界層での貴重な新粒子生成イベントの 報告の一つとして,新粒子生成に関するレビューで 扱われています[Kerminen et al., 2018]。同じ観測で は、黄砂が飛来するイベントにも遭遇しました。 採取 した粗大な鉱物粒子について,鉱物中カルサイトの 変質を期待して,エアロゾルへの適用例が殆ど無い 集束イオンビームを用いた手法を試み,薄膜化した 粒子の断面観察と分析を行いました[Ueda et al., 2020]。しかし、変質の痕跡は殆ど見られませんでし た。本観測での黄砂飛来状況を見直したところ,対 流圏上空を経由した気塊であり、また硫酸塩などの 人為起源物質の増加も少ないことから、変質は起こり 難い条件で黄砂が輸送されてきたと考えられました。 観測の結果が期待と異なることはよくありましたが、面 白くない方のケースもあるということも含め,事実に価 値があり, 裏側の事象に目を向ける機会と捉えるよう にしています。

試料観察で感じた違和感から新たな現象の発見 に繋がるケースもありました。越境汚染気塊中の硫酸 アンモニウム主体粒子の形態には,球の他に,結晶 の方位が規則正しい俵型形状のものがありました。一 般的手法で作成できる固体の硫酸アンモニウム粒子 は球になります。しかし, 俵型の形成要因は不明でし た。そこで、湿度環境を制御した室内実験を行ったと ころ,固体の硫酸アンモニウムには潮解湿度以下風 解湿度以上の準安定条件で,結晶構造が徐々に整 い俵型に変わる性質があることを発見しました[Ueda, 2021]。これは、硫酸アンモニウムの分子が方向を整 える程度に動けたことを示す結果であり, 準安定湿度 条件下では,平衡状態のゆらぎが,固体表面に微量 な水蒸気の吸収をもたらしていることを示唆しました。 このように、観測・観察で感じた違和感を帰納的に考 察し、室内実験を行った結果、把握されていなかった 表面熱力学プロセスを発掘することに繋がりました。

観測の多くは、物事を評価する指標を得ることを主 目的として実施されている印象があります。一方、想 定外の事実が、知らないということにすら気が付いて いない未知の発掘に導いてくれるところに、観測・観 察の大きな魅力があると感じています。観測・観察を 掘り下げることに、新しい知識の扉を開く力と価値が あるということを、これからも真摯にデータと向き合い ながら証明していきたいです。

## 5. おわりに

大気エアロゾル粒子の観察を重ねる度,一つ一つ の粒子に歴史があり,経験が刻まれていることに気づ かせられます。どこで生まれ、どのような経緯で,何故 そこにその姿で居るのか,その場所に居ることにどの ような意味を持つのか。個々の痕跡を見つめ,今の 姿になるまでの過程を考察していくことで,全体で起 こっていることの本質に近づける気がします。

筆者は本年で学位を取って 11 年ですが,学位取 得後に制限なく研究に打ち込めたのは,妊娠中を含 んだはじめの3年間のみで、今も育児と研究とでバタ バタと過ごしています。筆者の家庭と研究のバランス に対する価値観は,女性の社会進出が謳われながら も良妻賢母の概念も強い変遷の時代に,暖かい家庭 の中で将来の希望も持ちながら育てられてきたことに ルーツがあります。ただ、一つの体、同じ時間で二つ を叶えるには、どうしても矛盾が生じるため、活動と気 持ちの維持には長く苦しんできました。別居婚も経験 しました。家庭に軸を据えてからは、パート勤務も 度々でした。そのような状況でも、意外なことに、研究 は自身の好奇心に純粋に従って続けることができま した。これは,自然科学の素直な魅力に気が付かせ て下さった三浦和彦東京理科大学教授や長田和雄 名古屋大学教授,困難に陥った際に手を差し伸べて 下さった松見豊名古屋大学名誉教授や松井仁志名 古屋大学准教授をはじめ,ここに記しきれない多くの 方々との出会いに恵まれてきたおかげだと痛感して

います。何より、夫と子供たちの存在は心強い支えで あり、多くの学びを与えてくれました。特に、次世代に 繋ぐことの必要性を意識させられます。現代では、働 き方への理解やサポートは以前より増えました。しか し、パートナーの事情や価値観などなど、生き難さの 問題は、一括りに解決しようにも無理があります。公 平性に関する議論はこれからも続くと思います。ただ、 研究と同じように、現実を見つめ、気づかぬ間に固定 された概念を見直すことで、新しい価値や突破口の 発見に繋がり、新時代が開かれると思います。今日 の姿、経験、頂いた評価、次の世代に向けてしっかり と意味を持たせることができるよう、今後も精進して活 動を続けていきます。

# 参考文献

- Adachi, K., S. H. Chung, & P. R. Buseck (2010), Shapes of soot aerosol particles and implications for their effects on climate, J. Geophys. Res., 115(D15206), doi:10.1029/2009JD012868.
- Bond, T. C. et al. (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: a scientific assessment. J. Geophys. Res. Atmos., 118, 5380–5552.
- Choi, Y. et al. (2020), Investigation of the wet removal rate of black carbon in East Asia: validation of a below- and incloud wet removal scheme in FLEXible PARTicle (FLEXPART) model v10.4., *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 13655–13670.
- Croft, B., U. Lohmann, K. von Salzen (2005), Black carbon aging in the Canadian centre for climate modeling and analysis atmospheric general circulation model, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1931–1949.
- Stier, P., J. H. Seinfeld, S. Kinne, J. Feichter & O. Boucher (2006), Impact of nonabsorbing anthropogenic aerosols on clear-sky atmospheric absorption, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 111(D18201), doi:10.1029/2006JD007147.
- Dusek, U., G. P. Reischl, R. Hitzenberger (2006), CCN activation of pure and coated carbon black particles.

Environ. Sci. Technol. 40, 1223-1230.

- Hansen, J., & L. Nazarenko (2004), Soot climate forcing via snow and ice albedos, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 101, 423–428.
- Huang, X. F. & J. Z. Yu (2008), Size distribution characteristics of elemental carbon in the atmosphere of coastal urban area in South China: characteristics, evolution processes, and implications for the mixing state. *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5843–5853.
- Iwamoto, Y., A. Watanabe, R. Kataoka, M. Uematsu & K. Miura (2021), Aerosol-Cloud Interaction at the Summit of Mt. Fuji, Japan: Factors Influencing Cloud Droplet Number Concentrations, *Appl. Sci.*, 11, 8439.
- Kamogawa, M. et al. (2014), Simultaneous observations of atmospheric electric field, aerosols, and clouds on the R/V Hakuho Maru over the Pacific Ocean, *J. Atmos. Electric.*, 34, 21-26.
- Kato, S. et al. (2016), Atmospheric CO, O₃, and SO₂ measurements at the summit of Mt. Fuji during the summer of 2013, Aerosol & Air Qual. Res., 16, 2368-2377.
- Kerminen, V.-M. & A. S. Wexler (1995), Growth laws for atmospheric aerosol particles: an examination of the bimodality of the accumulation mode, *Atmos. Environ.*, 29, 3263–3275.
- Kerminen, V.-M. et al. (2018), Atmospheric new particle formation and growth: Review of field observations, Environ. Res. Letters, 13, 103003.
- Lack, D. A. & C. D. Cappa (2010), Impact of brown and clear carbon on light absorption enhancement, single scatter albedo and absorption wavelength dependence of black carbon, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 4207–4220.
- Meng, Z. & J. H. Seinfeld (1994), On the source of submicrometer droplet mode of urban and regional aerosols. Aerosol Sci. Technol. 20, 253–265.
- 三木裕介,上田紗也子,三浦和彦,古谷浩志,植松光夫 (2014),北太平洋における海洋大気中の鉄含有粒子: 水溶性物質と混合状態,エアロゾル研究,29,104-111 長岡信頼ら (2013),富士山頂における小イオン濃度の測

定, 大気電気学会誌, 33, 107-114.

- Nakayama, T. et al. (2014), Properties of light-absorbing aerosols in the Nagoya urban area, Japan, in August 2011 and January 2012: Contributions of brown carbon and lensing effect, J. Geophys. Res.-Atmos., 119, 12721–12739.
- Okada, K. (1983), Nature of individual hygroscopic particles in the urban atmosphere. *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 61, 727–735.
- Osada, K., S. Ueda, T. Egashira, A. Takami, & N. Kaneyasu (2011) Measurements of Gaseous NH₃ and Particulate NH₄+ in the Atmosphere by Fluorescent Detection after Continuous Air–water Droplet Sampling, *Aerosol & Air Qual. Res.*, 11, 170-178.
- Pruppacher, H. R. & J. D. Klett (1997), Microphysics of Clouds And Precipitation, Second ed. Kluwer, Dordrecht, The Netherlands, pp. 302.
- Ramanathan, V. & G. Carmichael (2008), Global and regional climate changes due to black carbon, *Nat. Geosci.*, 221–227.
- 竹谷文一ら (2016), レーザー誘起白熱法を用いて観測さ れた春季能登スーパーサイトでのブラックカーボン 特性, エアロゾル研究, 31, 194-202.
- 上田紗也子,三浦和彦 (2010),都心における大気エアロ ゾル粒子の湿度特性の季節変化,大気環境学会誌,42, 339-349.
- Ueda, S., K. Osada & K. Okada (2011a), Mixing states of cloud interstitial particles between water-soluble and insoluble materials at Mt. Tateyama, Japan: Effect of meteorological conditions, *Atmos. Res.*, 99, 325-336.
- Ueda, S., K. Osada & A. Takami (2011b), Morphological features of soot-containing particles internally mixed with water-soluble materials in continental outflow observed at Cape Hedo, Okinawa, Japan, J. Geophys. Res.: Atmosphere, 116, doi: 10.1029/2010JD015565.
- Ueda, S., Y. Hirose, K. Miura & H. Okochi (2014), Individual aerosol particles in and below clouds along a Mt. Fuji slope: modification of sea-salt-containing particles by in-cloud processing, *Atmos. Res.*, 137, 216-227.
- Ueda, S. et al. (2016a), Light absorption and morphological

properties of soot-containing aerosols observed at an East Asian outflow site, Noto Peninsula, Japan, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 2525-2541.

- Ueda, S. et al. (2016b), Number-size distribution of aerosol particles and new particle formation events in tropical and subtropical Pacific Oceans, *Atmos. Environ.*, 142, 324-339.
- Ueda, S. et al. (2018), Morphological features and mixing states of soot-containing particles in the marine boundary layer over the Indian and Southern Oceans, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9207–9224.
- Ueda, S. et al. (2020), Internal structure of Asian dust particles over the western North Pacific: Analyses using focused ion beam and transmission electron microscopy, *Atmosphere*, 11, doi:10.3390/atmos11010078.
- Ueda, S. (2021), Morphological change of solid ammonium sulfate particles below the deliquescence relative humidity: Experimental reproduction of atmospheric sulfate particle shapes, *Aerosol Sci. Tech.*, 55, 423-437.
- Ueda, S., T. Mori, Y. Iwamoto, Y. Ushikubo & K. Miura (2022), Wetting properties of fresh urban soot particles: Evaluation based on critical supersaturation and observation of surface trace materials, *Sci. Total Environ.*, 811, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.152274.

原稿受領日: 2022 年 11 月 25 日 掲載受理日: 2023 年 1 月 6 日

# 著者所属:

- 1. 名古屋大学大学院環境学研究科
- * 責任著者:

#### Sayako Ueda

<ueda.sayako.u2@f.mail.nagoya-u.ac.jp>

# iCACGP-IGAC Joint International Atmospheric Chemistry Conference (2022) 参加の報告

藤縄環^{1*}, 関谷高志², 高島久洋³

2022 年 9 月 8 日から 15 日まで, 第 15 回 iCACGP と第 17 回 IGAC の合同国際会議(以降, iCACGP-IGAC2022)が, Manchester 大学にて対面とオンライ ンでのハイブリッド形式で開催された。会議日程のう ち, 8 日から 10 日は若手研究者による Early Career Short Course が開催され, ワークショップやディスカッ ションによる活発な議論, また, 朝にはヨガも行ってい たそうである。残念ながら筆者らはこれに参加してい ないので, 以降では 10 日以降に行われた本会議に ついて報告する。

現地会場では 300 名以上の参加があり, 日本から も対面では 6 名, オンラインでは 10 余名の参加があ った。コロナ禍以降, 会議のオンライン化が行われて 久しい。IGAC コミュニティにおいても, 昨年の第 16 回 IGAC 国際会議は完全オンライン形式での開催と なった。最近では徐々に現地開催解禁の潮流がある とはいえ, まだまだ予断を許さない状況の中で, 現地 参加者にとっては 4 年前の高松での iCACGP-IGAC2018以来, 久しぶりの対面での IGAC 会議とな った。質疑応答や coffee break では, 参加者同士の ディスカッションが大いに盛り上がっており, 予定され ていたスケジュールを超えてのディスカッションが随 所で行われるなど, コロナ禍以前と変わらぬ熱気が 感じられた。

iCACGP-IGAC2022 は, Fundamentals, Integrated Observations, Modelling, and Analysis, Air Quality and Impacts, Atmospheric Chemistry at the Interfaces, Future Perspectives and Policy の全 5 セッションで構 成され, 口頭発表では Invited Talk 含め 70 余名によ る発表があり, ガスやエアロゾルなどのラボ実験やフ ィールド観測, モデル, リモートセンシングなど多岐に 渡る内容であった。また,前日のエリザベス2世女王陛 下の崩御を受け,会議に先立ち黙祷等が行われた。 全体として印象的であったのは,参加者の約半分近 くが若手研究者であったことだ。世界の最新・先端研 究の発表の場で,今回のように多くの若手研究者が, ベテラン研究者と肩を並べて質の高い研究発表をし ていたのは驚愕であり,筆者自身含め,研究者同士 の良い刺激となったと思う。

ポスター発表は、約 400 件の登録があり、半数以 上がオンライン参加であった。ポスター発表というと、 現地での発表が少なくなるという印象があったが, iCACGP-IGAC2022 では対面が半数以上であったこ とからも、この会議の現地での盛り上がりと、現地参 加への熱量が感じられた。現地では会場脇に作られ たテントがポスタースペースとなっており,3日間の対 面でのポスター時間をオンラインとは別途設ける、と いう珍しい形式がとられた。対面ポスターのうち 2 日 間は TOAR-II, ACAM, PACES など IGAC 傘下の各 種プロジェクトのサイドミーティングが並行して開催さ れていたものの,図 1(d)の写真にあるような"密"で活 発な議論が行われていた。筆者ら自身も対面コミュニ ケーションで議論することの有効性を実感した。また、 オンラインでのポスター発表については、今ではオン ライン会議でおなじみとなった Gather というサービス を用いて行われた。Gather は先の IWGGMS-18 でも 採用された方法で,いわゆる8ビット風の仮想空間に 会場と同様なマップを構築して,ビデオ通話により実 際のポスター発表を体感できるブラウザアプリケーシ ョンである。オンラインのポスター発表は,前述のよう に対面のポスター枠とは別に,9月12日と15日の2 日間,それぞれ2時間枠で行われた。オンラインによ



図1 (a)金谷会長の発表の様子(b)谷本前会長の発表の様子(c)ロ頭発表会場の様子(d)ポスター発表会場の様子 現地会場でのマスク着用者率は、5%程度。

る各国での現地時間の違いがある(日本は夜10時から12時であった)にもかかわらず,定常的には100名 ほど,一時は200名弱が同時参加しており,活発な 議論が大いに繰り広げられたと推察される。Gatherな どによるポスター会議は本来参加するはずの発表者 が,現地時間が遅くなるなどの理由で,参加率が悪く なる傾向にあるため,賛否両論がある。しかし iCACGP-IGAC2022では,400件以上あるポスターの 内,約半数がリモート参加であり,発表枠により発表 者数が二分されていることを考慮すると,この参加率 は高い水準であるように感じた。

iCACGP-IGAC2022 は、人によっては数年ぶりに 対面での国際会議への参加という方も多数いただろ うと推察される。改めて対面での情報・意見交換や、 会場での生の熱気を体感することの重要性を感じた 参加者もいただろう。その一方で、Gather などのアプ リケーションによって、リモート会議の利便性が向上し てきており、この数年で広く普及しつつあるように感じ る。また会議母体によっては、旅費等を十分に補助 できない場合もあり、現地参加が難しい研究者の機 会損失を防ぐ一面もあるだろうと思う。実際に、本会 議でも、途上国の参加者によるリモート発表が多数見 られた。今後はもちろん対面形式での国際会議によ る熱気あるディスカッションを求む声が多くなるに従っ て、より現地開催を行う国際会議が増えるだろうと思 われる。一方で、オンライン形式にはオンライン独自 の良さがあると筆者は感じており、両者のメリットを生 かしたハイブリッド形式の成熟化が重要であろうと思う。 次回の第 18 回 IGAC (2024)は、マレーシア・クアラ ルンプールでの開催予定である。どのような形式での 会議開催になるかは未定だが、次回会議も今年同様 に熱気ある刺激的な会議になることが期待される。

> 原稿受領日: 2022 年 9月 26 日 掲載受理日: 2022 年 9月 27 日

# 著者所属:

- 1. 国立環境研究所 地球システム領域
- 2. 海洋研究開発機構 地球表層システム研究セン ター
- 3. 福岡大学 理学部

#### * 責任著者:

Tamaki Fujinawa <fujinawa.tamaki@nies.go.jp>

# 第 27 回大気化学討論会開催報告

# 関山剛^{1*}, 石島健太郎¹, 大島長¹, 梶野瑞王¹, 出牛真¹, 藤田遼¹, 眞木貴史¹, 石戸谷重之², 亀崎和輝², 竹川暢之³, 加藤俊吾³, 三澤健太郎³, 岩本洋子⁴, 内田里沙⁵, 坂本陽介⁶

第27回大気化学討論会は気象研究所・産業技術総合研究所・東京都立大学が大会実行委員会(LOC)を担当し,2022年11月16日(水)午後から18日(金)午後にかけてつくば国際会議場にて開催されました。一昨年と昨年は新型コロナウィルス感染防止のために完全オンライン形式での開催となっていましたが、今年は3年ぶりの現地対面形式で開催することができました。

とはいえ茨城県や会場の新型コロナ対策指針遵 守のため三密を回避する必要があり、ポスター発表 は実施しないこととしました。その上で、対面での議 論を重視し、集会の雰囲気を可能な限り若い参加者 に体験してもらうため、講演は現地会場での口頭発 表のみに限定しました。また、大気化学討論会の伝 統である賑やかな懇親会も社会情勢を考慮して中止 しました。それにもかかわらず、多くの皆様に参加し て頂き、討論会を成功裏に終えることができたことに 感謝いたします。

また討論会史上初めての試みとして,現地口頭発 表・会員集会・授賞式をすべてオンライン配信するハ イブリッド開催にも挑戦しました。手探り状態でのハイ ブリッド準備でしたが,担当者の涙ぐましい努力の結



写真 1 会場 3 日目の様子。なんとか三密を回避することができました。

果,現地参加に遜色ないクオリティでオンライン上からも質疑応答や議論が可能となりました。参加費を払って下さったオンライン参加者に配信が届かない事態などにはならずに済み,ほっとしています。

最終的に参加申込者は一般会員 99 名・学生会員 30 名・一般非会員 7名・学生非会員 9名の合計 145 名にものぼり、想定を大きく超える人数となりました。 現地会場はコロナ禍でも契約上約 130 名を収容でき る予定であったこと、事前アンケートで「オンライン参 加のみを予定している」と答えた方が約 20 名おられ たことから、収容上限を辛うじて下回る見通しにはなり ました。しかし、三密回避のためには最大収容人数 の 2/3 程度の入場に抑えたいと考えていたため(3 人 掛けテーブルに 2 名着席が目安)、現地の実際の入 場者数がどうなるか正直心配でした。幸い、現地会 場は最も多い時で 80 名程度、平均で 70 名程度の入 場者であったため、三密は回避できたと考えていま す(写真 1)。ちなみにオンライン視聴しておられる参 加者は常時 30~40 名程度でした。

講演発表の申込みは一般 44 名と学生 24 名の合計 68 名と嬉しい大盛況となったため,発表時間が当初予定(ロング/ショート=25分/15分)に比べて短くなってしまった(20分/12分)ことが申し訳なかったです。また、今回はポスター発表を実施しないこととしたため、学生の皆さんが発表申込みを敬遠してしまうのではないかと危惧し、「若手セッション」を計画しました。学生及び原則として学位取得 5年以内の若手のみが申込み可能なセッションで、皆温かい目で発表を見守ろうという趣旨です。結果、口頭発表に限定



写真2 閉会式での学生優秀発表賞授賞式の様子。 金谷会長(中央)と受賞した4名の学生さん達。

されていたにも関わらず多数の学生会員から若手セ ッションに講演申込みがありました。レベルの高い研 究が数多く発表され,討論会成功の一因となってく れたと思います(写真2)。また,討論会1日目夕方の セッション終了後,現地会場で「若手名刺交換会」と 銘打たれたイベントが開かれました。オフィシャルな 懇親会は開くことができませんでしたが,コロナ禍で お互い知り合う機会を奪われてきた若手の皆さんが 交流する機会になったことを祈ります。

LOC の至らない部分も多々ありましたが、参加して下さった皆様、日本大気化学会運営委員会の皆様、 気象研究所全球大気海洋研究部の事務スタッフ・技術スタッフの皆様のご協力により無事に第27回大気 化学討論会を開催することができました。どうもありが とうございました。

# アンケート結果について

討論会開催中および終了後に実施したアンケート 調査には 126 件の回答を頂きました(2022 年 11 月 末時点)。ありがとうございました。

回答に協力して下さった参加者の多くが今回の討 論会に満足して下さったようでした(図1)。また,今回 のハイブリッド開催も好評を得ることができたようで (図2),LOCとしては安堵しています。来年度以降も ハイブリッド形式を希望しておられる方が過半数を占 めている一方で(図3),オンライン形式のみを希望し ておられる方が極めて少ない点はコロナ禍の後のこ とを考える上で重要です。とはいえハイブリッド開催 は LOC に多大な負担がかかることも事実ですので, 今後の討論会のあり方を議論する必要があるでしょう。

#### 著者所属:

- 1. 気象研究所
- 2. 産業技術総合研究所
- 3. 東京都立大学
- 4. 広島大学
- 5. 日本自動車研究所
- 6. 京都大学
- * 責任著者:

Tsuyoshi Sekiyama <tsekiyam@mri-jma.go.jp>



図1 今回の大気化学討論会の満足度。



図2 今回のハイブリッド開催形式の満足度。



図3次回の大気化学討論会の開催形式についての希望。

# 日本地球惑星科学連合 2023 年大会(JpGU2023)での 大気化学セッション開催のお知らせ

坂本陽介^{1,2,3*},内田里沙⁴,岩本洋子⁵,石戸谷重之⁶

# 1. JpGU2023「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)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 2023 年大会(JpGU2023) 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

JpGU2023 は、現地開催およびオンライン開催の ハイブリッド方式での開催が予定されています。ハイ ブリッド期間では、現地会場・オンライン両方で Zoom ライブ中継による口頭セッション、それに加えて、現 地ポスター発表(オンライン中継はありません)も実施 する予定とされています。オンラインポスターセッショ ンにおいては、オンラインにてビデオ会議システムを 用いてポスターの発表・議論を行っていただけるよう 計画されています。なお、大会は完全オンライン開催 となる可能性もあります。その場合は、プログラムはそ のままですべてオンラインにて発表となります。

「大気化学セッション」はロ頭およびポスター発表 を実施する予定です。各セッションのロ頭コマ数は前 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。2022年12月に開催セッシ ョンおよびコマ割が公開され、大気化学セッションとし て、5月22日(月)に4コマの口頭セッションが仮配 分されました。現地ポスターセッションは口頭セッショ ン終了後に引き続いて行われます。また、オンライン ポスターセッションは5月23日(火)の午前中に予定 されております。

# 記

名称:日本地球惑星科学連合 2023 年大会 会期:2023 年 5 月 21 日(日)~5 月 26 日(金) 開催方式:ハイブリッド方式(現地+オンライン) 現地会場:幕張メッセ 予稿投稿:2023 年 1 月 11 日(水)~2 月 16 日(木) (早期投稿締切:2 月 2 日(木)) 大会 WEB サイト:

https://www.jpgu.org/meeting_j2023/

# 3. 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ロ 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。

JpGU2023 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:坂本陽介、内田里沙、岩本洋子、石戸谷重 之))

# 著者所属:

- 1. 京都大学 地球環境学堂
- 2. 京都大学 人間·環境学研究科
- 3. 国立環境研究所
- 4. 日本自動車研究所 環境研究部
- 5. 広島大学 大学院統合生命科学研究科
- 6. 産業技術総合研究所 環境創生研究部門

# * 責任著者:

Yosuke Sakamoto

<sakamoto.yosuke.7a@kyoto-u.ac.jp>

# 第18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:上田 紗也子(名古屋大学)

受賞研究課題名:大気エアロゾル粒子の発生から輸送における経験と個々の粒子の存在状態との関係に 関する観測的研究

受賞理由:大気エアロゾル粒子は、大気輸送を通し て領域的・全球的な大気環境や沈着場所の環境に 多様な影響を及ぼす。個々のエアロゾル粒子のサイ ズや組成・形態などの存在状態は、排出要因等に応 じて異なり、大気中でさらに変化する。これに伴って 粒子の光学特性や雲凝結核能、大気からの除去効 率なども変わり、個々の粒子の複雑な変化は、エアロ ゾルの輸送や沈着、放射影響力に強く関わる。地球 環境におけるエアロゾル粒子の役割を正確に理解す る上で、大気エアロゾル粒子の実態とその変動要因 を理解する必要がある。中でもススは、人為的要因で 多く排出される光吸収性の強い物質であり、その存 在状態の理解は気候モデルの精緻化に繋がる重要 な研究テーマである。

上田紗也子氏は、これまで一貫して大気エアロゾ ル粒子の野外観測に基づいた研究に従事し、電子 顕微鏡を用いた手法を中心とした個別粒子の存在状 態の解明に貢献してきた。特に、排出源から遠隔外 洋域にわたるスス粒子の観測研究で多くの成果を上 げている。アジアからの越境輸送に関わる石川県珠 洲市や沖縄県辺戸岬での観測では、硫酸塩に厚く 被覆されたスス粒子の形状を明らかにし、スス粒子の 光吸収量が被覆厚と形状に影響を受けることを観測 的に示した。また、雲過程とエアロゾル粒子との関係 を調べるための山岳観測や、南極海上の海洋大気 観測において、検出困難な遠隔大気中のスス粒子の 測定を行ってきた。近年は、遠隔地に輸送される長 寿命のスス粒子への関心から、改めて排出源でのス ス粒子表面の性質に着目した観測を東京都市部で 行った。上田会員は雲凝結核計を活用して粒子表面 の接触角・濡れ性別に粒子を測定する新たな手法を 考案し,電子顕微鏡分析と共に,排出直後の一部の スス粒子にのみ微量な水溶性付着物が存在すること を示した。

さらに上田氏は,近年世界的にも注目されている 海洋大気での新粒子生成に関する観測研究や, PM2.5濃度の簡易測定器の評価,電子顕微鏡下での 材料加工技術を鉱物粒子の解析に活用した研究に も取り組んできた。また,硫酸アンモニウム粒子の形 態と湿度の履歴条件に関する再現実験でも成果を 挙げている。スス粒子に関する研究成果と併せ,これ らの成果はエアロゾル粒子の測定技術やシミュレー ションの精度向上,および粒子を介した熱力学過程 の解明に繋がるものである。

上田氏は、約4年間の研究中断期間がありながら も高い研究アクティビティーを維持している。フィール ド観測に基づく質の高い研究成果を多く公表し、さら に今後も当該分野に大いに貢献していくことが期待 できる。以上の理由により、日本大気化学会は上田 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)



上田紗也子氏
受賞者氏名:服部 祥平 (南京大学)

受賞研究課題名:同位体分子種分析による大気硫 黄循環変動の解析

受賞理由:大気硫黄循環は,対流圏および成層圏に おける硫酸(SO4²⁻)エアロゾルの形成を通し,気候変 動や大気汚染に関係する重要な研究対象である。服 部祥平氏は,安定同位体分子種の分析化学手法を 開発し,硫黄化合物の大気化学に関する研究を展 開してきた。独自の分析手法を基軸に,アイスコアや 極域エアロゾルなどの環境試料に適用し,さらに数 値モデルと組み合わせた学際性の高い研究成果を 挙げてきた。

第一に、地球寒冷化をもたらす大規模火山噴火の 特定と規模復元に関する研究成果が挙げられる。成 層圏に噴煙が到達する大規模火山噴火では、火山 性の二酸化硫黄(SO₂)が成層圏に注入されることで、 成層圏で硫酸エアロゾルが生成されることで全球的 な寒冷化が引き起こされる。成層圏におけるSO₂分解 過程における質量非依存分別過程から、特徴的な 同位体指標が生成されることを予測し、南極ドームC のアイスコアを用いて過去2600年間の硫酸塩の同位 体指標を復元することで、大規模火山噴火の規模や 到達高度の復元に成功した。

第二に,成層圏硫酸エアロゾルの主要な生成前駆物質である硫化カルボニルのミッシングソースの解明が挙げられる。服部氏は,硫化カルボニルの硫黄同位体組成の分析手法を世界で初めて開発し,この手法を用いて東アジア域での大気観測を実施した。その結果,硫化カルボニルを人為起源と海洋起源を区別して評価し,人間活動がミッシングソースの約半分を占める重要な生成源であることを発見した。

第三に、三酸素同位体組成( $\Delta^{17}O$ 値)を用いた硫酸エアロゾル生成過程の解明が挙げられる。服部氏は、南極などで得られたアイスコア、エアロゾル試料を用いてSO₄²⁻の $\Delta^{17}O$ 値を測定し、大気酸化反応を復元してきた。特に、グリーンランド南東ドームコア(SE-Dome)で掘削されたアイスコア中のSO₄²⁻の

Δ¹⁷O値から,過去60年間で北米・西ヨーロッパで硫酸エアロゾルの生成過程が変化していることを明らかにした。1980年代以降のSO₂排出量の削減による,大気中の酸性物質濃度の低下に対し,アンモニアなどのアルカリ性物質の濃度は逆に増加している。服部氏は,低下傾向にある大気酸性度の変化により,液相でのオゾン酸化による硫酸生成が起きやすい環境の下,SO4²⁻生成効率が高くなっていることを明らかにした。この成果は,1980年以降のSO₂排出規制にも関わらず,硫酸エアロゾルの減少が鈍化しているフィードバックメカニズムを明らかにするものである。 今後の効果的な大気汚染の緩和策の策定や,将来の気候変動予測に重要な知見をもたらすことが期待される。

以上のように,服部氏は国際共同研究も含め,同 位体分子種分析による大気硫黄循環の研究を展開 し,国際的に高いインパクトの学術論文も多く発表し ている。以上の理由により,日本大気化学会は服部 氏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)



服部祥平氏

# 日本大気化学会会員集会プログラム

日時:2022年11月17日(木)13:30-14:00 場所:つくば国際会議場

冒頭: 金谷会長より挨拶

- 1) 日本大気化学会について
- 2) 賛助会員のご紹介
- 3) JpGU2023 での大気化学セッション
- 4) 男女共同参画・人材育成の活動について
- 5) 表彰委員会の活動について
- 6) 学会誌「大気化学研究」について
- 7) 次期会長・運営委員選挙について
- 8) その他
- 日本大気化学会奨励賞授与式

(日本大気化学会 運営委員会)

# 第 28, 29 回日本大気化学会運営委員会議事録

#### 第28回日本大気化学会運営委員会

(大気化学研究会より通算 59 回)
日時:2022年8月31日(水)15:00-17:30
場所:Web 会議による開催
出席者:石戸谷重之,岩本洋子,入江仁士,内田
里沙,加藤俊吾,金谷有剛,関山剛,竹川暢之, 竹谷文一,宮崎雄三(敬称略,五十音順)
欠席者:齋藤尚子,坂本陽介,山地一代

金谷会長より挨拶があった。引き続き,以下の報 告・審議を行った。

#### 1) 第 27 回運営委員会議事録

第27回運営委員会の議事録が確認された。

## 2) 第 27 回大気化学討論会について

LOC 代表の関山委員から準備状況について報 告がなされた。会場の指針によりポスター発表が 難しいため,全て口頭発表とする旨が説明された。 対面開催は若手研究者に交流の機会を設けるこ とを優先したものであるが,申込人数が予測しに くいために時間配分の設定が難しい点が懸念事 項として挙げられた。大小様々な課題はあるもの の,討論会の準備は LOC に一任するという方針 が再確認された。また,要旨集はオンライン化の 流れから PDF の配布もありうるが,今回は例年通 りの印刷物とする旨が確認された。

### 3) 論文賞細則について

推薦 WG・表彰担当の宮崎委員から,論文賞細 則および募集要項案について説明がなされた。論 文賞の授与は論文が対象だが,賞状等は代表者と して筆頭著者もしくは責任著者に与えることに なる。評価委員の選定方法や審査基準について 様々な意見が出された。運用面について諸々課題 はあるものの,提案された細則と要項(令和4年 9月1日施行)について賛成多数で承認された。

#### 4) 大気化学研究誌について

編集担当の宮崎委員から,大気化学研究第47号 の発行について報告がなされた。第47号は分量 が多く編集作業が多かったため,外部業者に編集 作業を依頼した。また,第48号の内容について説 明がなされた。今後の外注の在り方について意見 交換がなされた。

## 5) 学会 HP 特設ページについて

情報広報担当の入江委員から,学会 HP の特設 ページについて状況説明がなされた。機械的な作 業が多いため,予算に余裕があれば一部を外注と する案が提示された。学会特設ページの詳細につ いては様々な意見が出されたが,学会の普及活動 の一環として特設ページの作成を進める旨が賛 成多数で承認された。掲載内容の詳細や更新頻度 については今後検討する。

#### 6) 学会運営資金について

会計幹事の竹谷委員から,学会の運営資金につ いて説明がなされた。会費の金額については他学 会と比べて高い訳ではないが,これまでの蓄積に より繰越金が増加傾向にある。これを会員に有効 に還元するための使途について意見交換がなさ れた。例えば,旅費補助や保育支援などの使途が ありうるが,支援の上限については別途議論する 必要がある。これ以外に,単純作業の外注費,表 彰に関わる経費,外部活動のための経費などが挙 げられた。例年発生する少額の必要経費であれば, 運営委員会で決を採ることなく支出可能である 点が確認された。

以上

#### 第 29 回日本大気化学会運営委員会

(大気化学研究会より通算 60 回)日時: 2022 年 11 月 15 日 (火) 16:00-18:00

場所: Web 会議による開催

出席者: 石戸谷重之,入江仁士,岩本洋子,内田 里沙,加藤俊吾,金谷有剛,齋藤尚子,坂本陽介, 関山剛,竹川暢之,竹谷文一,宮崎雄三,山地一 代(敬称略,五十音順)

金谷会長より挨拶があった。引き続き,以下の報 告・審議を行った。

#### 1) 第28回運営委員会議事録

第28回運営委員会の議事録が確認された。

2) 2022 年度第 27 回大気化学討論会について

LOC 代表の関山委員より,翌日から開催される 大気化学討論会の準備状況について報告された。

#### 3) プログラム編成申し送り事項

プログラム担当の石戸谷委員および岩本委員 より、プログラム編成の課題について報告がなさ れた。また、学生優秀発表賞の件数や審査方法に ついても報告がなされた。今回は要旨集を印刷物 で配布しているが、次回以降の PDF 版での配布の 可能性について意見交換がなされた。

#### 4) JpGU2023 年大会の準備状況

プログラム担当の坂本委員より, JpGU2023 年 大会は 2022 年と同様にハイブリッドで開催され る旨が報告された。また,セッション提案の準備 状況について報告があり,成層圏セッションおよ びグローバル炭素循環セッションとの連続開催 希望,成層圏セッション,海洋表層-大気セッショ ン,航空機・無人機観測セッションとの同時開催 回避希望が賛成多数で承認された。

### 5) 論文賞について

表彰担当の宮崎委員より,募集×切の延長およ び最終的な応募件数について報告がなされた。今 後の選考予定について確認するとともに,副賞の 選定について意見交換がなされた。

## 6) 大気化学研究誌について

編集担当の山地委員より,2022年度冬号の準備 状況および原稿執筆の依頼予定について報告が なされた。トピックス記事として将来構想第2集 が予定されている。奨励賞受賞記念論文の取扱や 編集作業の外注について意見交換がなされた。

## 7) 男女共同参画・人材育成委員会の報告

男女共同参画・人材育成担当の齋藤委員より, 休業中会員支援ガイドラインの学会ホームペー ジ掲載について報告がなされた。また,男女共同 参画学協会連絡会シンポジウムへの参加や,大気 化学討論会における若手名刺交換会の予定につ いても報告がなされた。

#### 8) 2022 年度選挙に向けた準備状況

選挙管理担当の内田委員より,2023年3月に予 定されている運営委員選挙の準備状況について 報告がなされた。前回と同様に外部業者のシステ ムを用いたウェブ投票による実施が検討されて いる。外注に係る経費や選挙権付与の条件となる 会費納付の期日について提案があり,賛成多数で 承認された。また,被選挙権の放棄や委嘱状の発 行手続きについて意見交換がなされた。

#### 9) 会員集会の資料案

大気化学討論会の期間中に実施される会員集 会の内容について確認がなされた。

#### 10) 学会ホームページ管理の外注について

情報広報担当の入江委員より,学会ホームページ管理外注の試行状況について報告がなされた。 運営委員の負担軽減のために外注を検討する方 向性について異議はないものの,作業依頼のスキ ームや経費は検討が必要である旨が確認された。

#### 11) 2023年の大気化学討論会について

金谷会長より,2023年の大気化学討論会の開催 場所・開催形式の検討状況について報告がなされ た。地方持ち回り開催とする場合のハイブリッド 形式の是非については,今回の討論会における経 験を踏まえて引き続き検討することとなった。

以上

(日本大気化学会 運営委員会)

# 日本大気化学会役員選挙の公示

選挙管理委員 内田里沙1*,加藤俊吾2,山地一代3

# 1. 役員選挙について

日本大気化学会則の選挙細則に基づき,下記の 要領により第 13 期(大気化学研究会から通算)運営 委員会役員選挙をインターネット投票で実施します。 2022 年度会費を 2022 年 12 月 31 日時点で納入済 みの全ての正会員が選挙権と被選挙権を持ちます。 ただし,例外として選挙細則第 6 条により会長および 運営委員の被選挙権を持たない場合があります(5 項「第 13 期運営委員会役員選出に関する注意」参 照)。

#### 2. 選挙選出日程

2023年1月

大気化学研究 48 号(本記事)による公示 2023 年 2 月 被選挙権者へ ID・PW の通知 2023 年 2 月 21 日~3 月 2 日

会長選挙の投票期間

2023 年 3 月上旬 会長当選者確定と公表 2023 年 3 月 14 日~3 月 23 日

会長以外の運営委員選挙の投票期間

- 2023年4月 運営委員当選者確定と公表
- 2023 年 7 月 新運営委員会活動開始

# 3. 選挙要領

- 3. 選出役員数:会長1名,および会長以外の運営 委員10名。
- 2. 無記名インターネット投票を2回行う。
- 第1回投票は会長選挙とし、候補者1名に投票 する。第2回投票は会長以外の運営委員選挙と し、会長当選者以外の候補者5名に投票する。
- 4. インターネット投票手順は,2 月上旬に正会員宛 に電子メールで通知される。

# 4. 役員の選出に関する細則(抄)

- 第1条 役員選挙の管理事務を行うため,3名の委員 をもって構成する選挙管理委員会を置く。
- 第2条 選挙管理委員会委員は,会長が運営委員より3名を委嘱する。委員長は互選とする。
- 第3条 選挙管理委員会は次の事業を行う。
  - 選挙の公示
  - 2. 投票および開票に関する事務
  - 3. 投票結果の確認と当選者の確定
  - 4. 選挙結果の運営委員会への伝達および会員 への公表
  - 5. その他選挙管理に必要な事項
- 第4条 選出すべき運営委員会役員およびその定数 は以下の通りとする。

会長1名,運営委員10名

第5条 選出すべき運営委員会役員は,当該年度会 費を納入した全ての正会員同士の互選とし,正会 員は選挙に際して選挙権と被選挙権を有する。

2 学生会員ならびに賛助会員は選挙権なら びに被選挙権を有しない。

- 第6条 役員任期を2期連続したものは被選挙権を 持たない。ただし例外として会長の選出について は、会長を2期連続したもの以外の正会員は被選 挙権を持つものとする。
- 第7条 選出すべき運営委員会役員として,会長1 名,および会長以外の運営委員会役員5名を無 記名投票する。
- 第8条 当選者は得票数の多い順に選出され,得票 同数の場合は抽選によるものとする。
- 第9条 会長は任期内に正会員の中から2名を限度 に運営委員を指名することが出来る。
- 第 10 条 運営委員に欠員を生じたときは,前条とは

別に,会長の指名により補充することが出来る。た だし補充された運営委員の任期は前運営委員の 残余期間とする。

- 第11条 副会長は選出された運営委員会役員による 互選とする。
- 第 12 条 監事は運営委員会で,運営委員以外の正 会員の中から選出される。
  - 2 監事は, 再任は妨げないが, 3 期連続して 監事になることはできない。

## 5. 第13期運営委員会役員選出に関する注意

会長に関しては,全ての正会員(2022 年度の会費 を 2022 年 12 月 31 日時点で納入済みの方)が被選 挙権を持ちます。運営委員の選出に関しては,2 期 連続して役員をされている次の 6 名の方(▲印)は, 被選挙権を持ちません。

(注:▲印のついた方には,会長としての被選挙権 はあります)。

第12期の運営委員会役員(委員会推薦の役員を 含む)は以下の通りになります。

会 長: ▲金谷有剛

副会長:▲竹川暢之

運営委員:石戸谷重之,入江仁士,岩本洋子,

▲内田里沙,加藤俊吾,▲齋藤尚子,坂本陽介,

▲関山剛(庶務幹事),竹谷文一(会計幹事),

宮﨑雄三,▲山地一代(50音順)

#### 著者所属:

1. 日本自動車研究所

- 2. 東京都立大学 都市環境学部
- 3. 神戸大学大学院 海事科学研究科
- * 責任著者:

Risa Uchida <urisa@jari.or.jp>

#### 編集後記

今号では「大気化学の将来構想 2022-32」より、全体で7つのテーマ記事のうち第二弾として2つの記事を収録しました。その他の記事も含む全ての著者の皆様には、貴重な原稿をご執筆頂きましたこと、お礼申し上げます。国内外の学会開催に関わる記事からは、オンサイト開催の状況がコロナ禍前のそれに少しずつ戻りつつも、オンライン形式のメリットも生かしたハイブリッド開催も成熟に向かいつつあることが実感とともに読み取れます。今後も学術研究に関わる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48号 (2023年1月24日 発行)

編集兼発行: 日本大気化学会 編集委員: 山地一代(共同編集長), 宮崎雄三(共同編集長), 八代尚, 大畑祥 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@as.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。