# 大気化学の将来構想 2022-32



日本学術会議環境学委員会·地球惑星科学委員会合同 FE·WCRP 合同分科会

### IGAC 小委員会

日本大気化学会



※ ユーザーローカル テキストマイニングによる概論の分析 ( https://wordcloud.userlocal.jp/ )

### 総合目次

## - 概論 ------

(日本学術会議 記録としての前付)2
要旨7
1 大気化学研究分野の究極のゴールとこれまでの発展9
(1) 大気化学研究の目指すもの9
(2) 大気化学研究のルーツと歴史的発展11
(3) 直近 10 年間の研究動向の分析とさらなる課題12
2 今日の大気化学研究の課題と意義
(1) 今後 10 年間で実施すべき取組13
(2) 社会的意義15
(3) 科学的価値と学術研究の方向性17
(4) 分野間連携の現状と今後の在り方19
3 国内外連携の在り方
(1) 国際プロジェクトとの協調22
(2) 国内の省庁等の関連業務と委員会
4 大気化学研究開発の基盤の拡充と課題
(1) 大気化学研究のプラットフォーム・資源
(2) 研究データの整備と利用
(3) 人材育成
<用語の解説>
<参考資料>44

## - 各論 ------

1	皮士、久 シーがの 押 西	ED
T	<b>庁义</b> :谷丽即90	

2	温室効果気体:温室効果気体とオゾン層破壊物質	55
1.	はじめに	56
2.	二酸化炭素(CO2)	57
3.	メタン (CH4)	59
4.	一酸化二窒素(N2O)	61
5.	ハロカーボン	63
6.	温室効果気体の衛星観測	65
7.	おわりに	67
8.	略語リスト	.68

3 反応性気体:大気汚染物質群の新たな科学:

化学理論の更新と排出-気候変動・健康問題の解決へ向けて	
1. はじめに	80
2. OH と化学プロセスの完全理解へ向けて	
2.1 未知化学反応のモデル評価	
2.2 トレーサーモデルとの OH 知見整合化:メタン等収支の詳細理解	
2.3 OH反応性・過酸化ラジカル反応性のフィールド観測による検証	
2.4 対流圏オゾンの化学プロセス理解の強化	91
3. 排出量と濃度のリンク	
3.1 トップダウン排出量推計	94
3.2 SLCFs インベントリのトップダウン評価と GHG との統合解析	96
3.3 GOSAT-GW 衛星検証・地上観測との融合	
3.4 日変化・高度分布など次世代衛星ミッション目標	
3.5 他の衛星ミッション検討と方向性	
4. 地球システム科学・行政・社会貢献	
4.1 現業数値予報モデル・地球システムモデルの向上	
4.2 健康影響と社会情報発信	
5. おわりに	

4 物理化学:未来の大気化学のための室内実験	
1. はじめに	
2. 気相の大気化学	
2.1 RO2の化学	
2.2 安定化クリーギー中間体の化学	
2.3 異性化反応	
3. 液相の大気化学	
3.1 オリゴマーの化学	
3.2 有機硫酸エステルの化学	
3.3 微小不均一性の化学	
4. 界面の大気化学	
4.1 界面の特異性の起源の解明	
4.2 界面反応の定量化	
4.3 界面光反応の解明	
5. 実験技術の進歩と今後の発展性	
5.1 質量分析技術	
5.2 光学技術	
5.3 反応実験研究技術	
5.4 気液界面の光化学研究	

	5.5 粒子の不均一性に注目した最新技術	
	6. まとめ	
Ę	5 大気陸域統合:陸域生態系と大気化学	
	1. はじめに	
	2. 大気-陸域間の長寿命気体の交換	
	2.1 研究の目標	
	2.2 世界と日本の研究動向	
	2.3 収支の不確実性と残された課題	
	2.4 今後求められる研究	
	3. 大気化学成分の沈着	
	3.1 はじめに	
	3.2 沈着・交換過程の課題	
	3.3 越境大気汚染の動向	
	3.4 今後の取り組み	
	4. 生物起源揮発性有機化合物の放出	
	4.1 究極的な研究目標	
	4.2 世界的な研究の動向や日本の研究の強み	
	4.3 残存する重要課題	
	4.4 今後 10 年間に取り組むべき課題	
	5. 生物起源有機エアロゾルの動態・性状と役割	
	5.1 研究目標	
	5.2 近年の国内外の研究動向	
	5.3 残存する課題	
	5.4 今後 10 年で取り組むべき研究	
	6. 地球表層システム・人間社会に関わる統合的理解	
	7. 陸域生態系・大気化学と関係する研究プロジェクト等	

6 大気海洋統合:人新世における生物地球化学的物質循環と

気候への海洋エアロゾルフィードバック	
1. はじめに	
2. 海洋から大気への物質供給・気候への影響	
2.1 海洋から大気への気体・エアロゾル供給	
2.2 海洋大気での雲凝結核	
2.3 海洋大気での氷晶核	
3. 大気から海洋への物質供給・海洋生態系への影響	
3.1 大気から海洋へのマクロ栄養塩供給	
3.2 大気から海洋へのミクロ栄養塩供給	
4. 将来展望	

7 エアロゾル・放射・雲:エアロゾルー放射・雲相互作用	
1. はじめに	
2. エアロゾルの動態	
2.1 光吸収性エアロゾル	
2.1.1 ブラックカーボン(BC)	
2.1.2 ブラウンカーボン(BrC)	
2.1.3 酸化鉄	
2.1.4 複素屈折率	
2.2 氷晶核として働くエアロゾル	
2.2.1 INP の表面構造の解析	
2.2.2 大気中の INP のモニタリング	
2.2.3 INP の計測技術の開発	
2.2.4 INP の変動をもたらす要素の解明	
2.2.5 INP のパラメタリゼーション化	
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	
2.3.2 越境大気汚染	
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	
3.1.1 放射強制力	
3.1.2 エアロゾルの物理化学特性	
3.1.2.1 AOD と光散乱性エアロゾル	
3.1.2.2 AAOD と光吸収性エアロゾル	
3.1.2.3 CCN	
3.1.2.4 INP	
3.1.3 エアロゾルの観測と数値モデル	
3.1.4 まとめ	
3.2 エアロゾル-雲相互作用	
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	
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	
3.2.3 GCRM によるエアロゾル-雲相互作用研究の現状と展望	
3.2.4 さらなる高解像モデルによるエアロゾル-雲相互作用実験	
3.2.5 まとめ	
4. おわりに	
8 成層圏・中間圏:成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	
1. エアロゾルと気候の相互作用	
1.1 対流圏界面の定義	

1.2 対流圏界面付近の観測の困難さ	
1.3 STE 研究の不確定性要因	
1.4 成層圏と対流圏の関係と STE	
1.5 STE 研究における日本の貢献と展望	
1.6 今後(10年内)の課題	237
2. 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	237
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	
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	
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	
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	
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	
3.3 地球温暖化に伴うオゾン層変化	
3.4 オゾン層変化が気候に及ぼす影響	
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	
4.2 成層圏エアロゾルの観測手法	
4.3 今後取り組むべき課題	
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	
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	
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	
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	
6.1 気球観測	
6.2 FTIR 観測	
6.3 マイクロ波観測	
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	
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	
7.3 成層圏・中間圏に関わる人工衛星の国内計画	254
8. おわりに	
9. 略語リスト	



記 録

文書番号	SCJ第25期050706-25491000-082		
委員会等 名	日本学術会議環境学委員会・地球惑星科学 委員会合同 FE・WCRP 合同分科会		
標題	大気化学の将来構想 2022-32		
作成日	令和5年(2023年)7月6日		

※ 本資料は、日本学術会議会則第二条に定める意思の表出ではない。掲載 されたデータ等には、確認を要するものが含まれる可能性がある。 この記録は、日本学術会議環境学委員会・地球惑星科学委員会合同 FE・WCRP 合同 分科会 IGAC 小委員会での審議結果を踏まえ、環境学委員会・地球惑星科学委員会合 同 FE・WCRP 合同分科会において取りまとめ公表するものである。

日本学術会議環境学委員会・地球惑星科学委員会合同 FE・WCRP 合同分科会 (第三部会員) 国立研究開発法人国立環境研究所地球シス 委員長 三枝 信子 テム領域領域長 東京大学先端科学技術研究センター教授 中村 (連携会員) 副委員長 尚 富山大学学術研究部理学系教授 幹 事 張 勁 (連携会員) 沖 大幹 (第三部会員) 東京大学大学院工学系研究科教授 春山 成子 (第三部会員) 三重大学名誉教授 大学共同利用機関法人情報・システム研究 東 久美子 (連携会員) 機構国立極地研究所教授 阿部 彩子 (連携会員) 東京大学大気海洋研究所教授 埼玉県環境科学国際センター(CESS)総 (連携会員) 植松 光夫 長、東京大学名誉教授 東京大学未来ビジョン研究センター教授、 江守 正多 (連携会員) 国立研究開発法人国立環境研究所地球シス テム領域上級主席研究員 京都大学大学院情報学研究科教授 大手 信人 (連携会員) 高崎健康福祉大学農学部長・教授、東京大 大政 謙次 (連携会員) 学名誉教授 長崎大学大学院熱帯医学・グローバルヘル 春日 文子 (連携会員) ス研究科/プラネタリーヘルス学環教授 慶應義塾大学大学院政策・メディア研究科 蟹江 憲史 (連携会員) 教授 島根大学エスチュアリー研究センター セ 齋藤 文紀 (連携会員) ンター長・特任教授 (連携会員) 東京大学大学院理学系研究科教授 佐藤 董 髙薮 緑 (連携会員) 東京大学大気海洋研究所教授 大学共同利用機関法人人間文化研究機構総 谷口 真人 (連携会員) 合地球環境学研究所副所長・教授 (連携会員) 東京大学名誉教授 自由 胦至 東京大学大気海洋研究所国際・地域連携研 (連携会員) 原田 尚美 究センター教授 (連携会員) 北海道教育大学名誉教授 氷見山幸夫 東京大学未来ビジョン研究センター 副セ 福士 謙介 (連携会員) ンター長・教授、国連大学サステイナビ リティ高等研究所学術研究官 国立研究開発法人海洋研究開発機構アプリ 山形 俊男 (連携会員) ケーションラボ特任上席研究員/東京大学 名誉教授 慶應義塾大学大学院システムデザイン・マ (連携会員) 山形与志樹 ネジメント研究科教授

吉田	大人	(連携会員)	東京大学大学院農学生命科学研究科教授
渡辺	知保	(連携会員)	長崎大学プラネタリー・ヘルス学環長、 大学院熱帯医学・グローバルヘルス研究 科教授
齊藤	宏明	(連携会員(特任))	東京大学大気海洋研究所教授
見延白	E士郎	(連携会員(特任))	北海道大学理学研究院地球惑星科学部門教 授

日本学術会議環境学委員会・地球惑星科学委員会合同 FE・WCRP 合同分科会 IGAC 小委員会

委員長	金谷	有剛		国立研究開発法人海洋研究開発機構地球環 境部門センター長
副委員	長 持田	陸宏		名古屋大学宇宙地球環境研究所教授
副委員	長 竹川	暢之		東京都立大学大学院理学研究科教授
副委員	長谷本	浩志		国立研究開発法人国立環境研究所地球シス テム領域プログラム総括
幹事	滝川	雅之		国立研究開発法人海洋研究開発機構地球環 境部門グループリーダー
	植松	光夫	(連携会員)	埼玉県環境科学国際センター(CESS)総 長、東京大学名誉教授
	張	勁	(連携会員)	富山大学学術研究部理学系教授
	猪俣	敏		国立研究開発法人国立環境研究所地球シス テム領域主席研究員
	入江	仁士		千葉大学環境リモートセンシング研究セン ター教授
	江口	菜穂		九州大学応用力学研究所准教授
	笠井	康子		東京工業大学環境社会理工学院教授、国立 研究開発法人情報通信研究機構 B5G ユニッ ト研究統括
	黒川	純一		アジア大気汚染研究センター情報管理部部 長
	齋藤	尚子		千葉大学環境リモートセンシング研究セン ター准教授
	定永	靖宗		大阪公立大学大学院工学研究科准教授
	須藤	健悟		名古屋大学大学院環境学研究科教授
	関山	岡川		気象庁気象研究所全球大気海洋研究部主任 研究官
	<u>豊</u> 田	栄		東京工業大学物質理工学院准教授
	永島	達也		国立研究開発法人国立環境研究所企画部室 長
	中山	智喜		長崎大学水産・環境科学総合研究科准教授
	原	圭一郎		福岡大学理学部助教
	廣川	淳		北海道大学大学院地球環境科学研究院准教 授

町田	敏暢	国立研究開発法人国立環境研究所地球シス テム領域室長
松木	篤	金沢大学環日本海域環境研究センター准教 授
宮﨑	雄三	北海道大学低温科学研究所助教
森本	真司	東北大学大学院理学研究科教授
米村Ⅰ	E一郎	県立広島大学生物資源科学部教授

(協**力**者)

本記録の	作成に	あたり、以	下の方々に御協力いただいた。
	梅澤	拓	国立環境研究所 地球システム領域
	江波	進一	筑波大学数理物質系化学域
	伊藤	彰記	海洋研究開発機構 横浜研究所
	松井	仁志	名古屋大学 大学院環境学研究科
	大畑	祥	名古屋大学 宇宙地球環境研究所、高等研究院
	水野	亮	名古屋大学 宇宙地球環境研究所
	丹羽	洋介	国立環境研究所 地球システム領域
	斉藤	拓也	国立環境研究所 地球システム領域
	PATRA	Prabir	海洋研究開発機構 地球表層システム研究センター
	坂本	陽介	京都大学大学院 地球環境学堂
	関谷	高志	海洋研究開発機構 地球表層システム研究センター
	藤縄	環	国立環境研究所 地球システム領域
	出牛	真	気象庁気象研究所 全球大気海洋研究部
	佐藤	知紘	情報通信研究機構 テラヘルツ研究センター
	石塚純	<b>〕</b> 之介	名古屋大学 宇宙地球環境研究所
	羽馬	哲也	東京大学 先進科学研究機構
	伊藤	昭彦	国立環境研究所 地球システム領域
	松田	和秀	東京農工大学 農学部附属広域都市圏フィールドサイエンス教育
			研究センター
	谷晃	5	静岡県立大学 食品栄養科学部
	竹谷	文一	海洋研究開発機構 地球環境部門
	岩本	洋子	広島大学 大学院統合生命科学研究科
	西岡	純	北海道大学 低温科学研究所
	當房	豊	国立極地研究所
	板橋	秀一	電力中央研究所
	大島	長	気象庁 気象研究所
	鈴木闼	【太郎	東京大学 大気海洋研究所
	佐藤	陽祐	北海道大学 大学院理学研究院
	山下	陽介	国立環境研究所地球システム領域
	秋吉	英治	国立環境研究所地球システム領域
	長濱	智生	名古屋大学 宇宙地球環境研究所
	酒井	哲	気象庁 気象研究所
	冨川	喜弘	国立極地研究所
	中島	英彰	国立環境研究所 地球システム領域
	杉田	考史	国立環境研究所 地球システム領域

坂崎 貴俊 京都大学 大学院理学研究科

本記録の作成にあたり、以下の職員が事務を担当した。

 事務
 佐々木
 亨
 参事官(審議第二担当)

 柳原
 情子
 参事官(審議第二担当)付参事官補佐

#### 1 作成の背景

将来の懸念事として認識されてきた「地球温暖化」は、今や「気候危機」へと姿を変 え、我々の生活を脅かしている。その根本的な原因は人間活動であり、CO<sub>2</sub>などの長寿命 温室効果気体(GHGs)<sup>\*1</sup>やメタンを含む短寿命気候強制因子(SLCFs)<sup>\*2</sup>などの排出量の増 大であることは疑う余地がないとされた(IPCC 第6次評価報告書、2021)。また、大気中 のPM<sub>25</sub><sup>\*3</sup>やオゾン<sup>\*4</sup>による健康リスクは、いまでも世界で年間400万人もの余命を縮める重 要な問題であり(WHO Fact Sheets、2022)、改善が強く望まれる。これらの大気中微量成 分の動態を科学的に明らかにし、自然による吸収や緩衝効果も評価しつつ、排出削減など の「緩和策」とその経路を合理化し、気候問題・健康問題の両方を「根本的な解決」に導 き、カーボンニュートラルとウェルビーイングが両立する社会づくりに貢献することは、 「大気化学」研究分野の大きな使命である。2050年カーボンニュートラルや 2030年 SDGs の達成といった時限付きの目標を念頭に、期待される社会的な役割を果たすため、また、 物質科学としての学術の深化も同時に遂ばるために、当分野が備えるべき基本姿勢と

物質科学としての学術の深化も同時に遂げるために、当分野が備えるべき基本姿勢と、今後推進すべき研究開発を明らかにすべく、今般、「大気化学の将来構想2022-32」を取りまとめた。当分野では、2000年に「日本の地球大気化学研究1989-1999-10年間の総括と今後の研究戦略-」を、2008年に「今後の日本の大気化学研究IGAC小委員会の提言」を著した経緯があり、本将来構想はそれらの後継文書に位置付けられる。7テーマから構成される各論は200ページにも及ぶものとなったため別冊(https://jpsac.org/spl/)として扱い、本「記録」では、各論を要約しつつ重要な研究開発の方向性や課題について述べる。また、分野間・国際・国内連携で当分野の果たすべき役割や、必要となるファシリティや人材育成等の課題をまとめる。特に、地球大気化学国際協同研究計画(IGAC)\*\*や、その母体である「大気化学と地球汚染に関するコミッション(iCACGP)\*\*」及び「フューチャー・アース(FE)\*\*」において、我が国の研究開発の特色をどのように活かすかについて述べる。

#### 2 究極のゴールから見た過去10年の進展と現在の課題

本将来構想の策定では、まず「究極のゴール」を描き、その達成へ向けた世界の動向 と我が国の強み、現在の重要なギャップを把握したのちに、今後 10 年間でどのような取 組を進めるべきか、と論考を進めた。読者もその論考を辿ることで理解を高められるもの とした。この作業は、設定した各論の7テーマ「長寿命気体」「反応性気体」「物理化学」 「大気陸域統合」「大気海洋統合」「エアロゾル\*\*・放射・雲」「成層圏・中間圏」でそれ ぞれ実施した(別表 1-1~7)。それらに基づき、究極のゴールは以下の3点に集約された。 1)専門知の深化:温室効果気体(GHGs)、オゾン層破壊物質(ODSs)\*\*、大気汚染を起こす 反応性気体、エアロゾル等のあらゆる大気成分について、濃度や特性の変化を方程式や パラメータを用いて表現でき、実大気中の現象や変化の仕組みの説明と将来予測が可能 となること、大気化学プロセス(排出・分子反応・輸送循環・吸収沈着など)の役割や、 自然の巧妙な酸化能\*10や浄化作用などの機能のメカニズムを理解すること

2) 地球システム\*11 の学際\*12 探求:気候影響(雲・放射相互作用を含む)や健康影響を定量

化でき、陸・海(生物圏を含む)との物質科学的な相互作用を体系的に理解すること 3)社会課題解決のための超学際連携\*<sup>13</sup>:これらの理解の深化に基づいて、排出量や濃度な どの状態変化を即時に検出でき、気候変動や大気汚染等の緩和・適応策のためのエビ デンスを提供すること、社会へ的確な将来予測情報を提供できること

過去 10 年間では、世界的に、「観測と数値モデルの高度化と統合」や、「排出量推計の 手法の複合化」が進み、新たな主題(エアロゾル状態・サイズ別モデリング等から気候危 機・カーボンニュートラルまで)が浮上してきた。日本の研究はこれらの先端を担うとと もに、地域的な特性を生かし、アジア越境大気汚染問題の解明や、付随するプロセス研究、 基礎理論評価(OH ラジカル\*<sup>14</sup>反応性評価等)で成果を上げてきた。また、酸化鉄など、新た な重要物質の収支の理解などで強みを発揮してきた。同時に、IGAC や FE・WCRP(世界気 候研究計画)\*<sup>15</sup>でも研究の組織化が進展し、日本の研究者も関与を深めてきた。一方で、 さらなる重要物質(含多酸素有機化合物 HOMs\*<sup>16</sup>、バイオ粒子\*<sup>17</sup>、氷晶核等)も見出され、 その物質循環や機能の解明が求められている。また、新たな手法(人工衛星観測・データ 同化\*<sup>18</sup>・質量分析・分光計測・同位体解析等)の適用や高度化によって、メカニズム解明 の鍵となる科学的知見や、社会課題の解決につながる重要な情報を得るための道筋も見え てきた。さらに、海・陸を含む地球システムの理解の増進とモデル化、社会経済分野との 対話など、従来の学術研究分野の単位を超えた連携が求められている。今後、根源的な科 学探求の継続に加え、環境問題の根本的解決を追求し社会の要請に陽に応えるべきである。

#### 3 今後10年に実施すべき課題

こうした状況を踏まえ、「今後10年に実施すべき課題」を7つの研究テーマで整理し、 横断的に取りまとめた結果、以下の4点へと集約された。

- A)気候安定化等の社会的課題解決に資する物質科学的知見の結集:大気汚染物質と温室効果気体の複合的視点の導入や人工衛星利用の推進による、排出量や健康影響等の社会に繋がる情報の創出
- B)大気化学に残る謎を解く鍵プロセスの探求と知識の体系化:未知過程の発見や理論と現 実の不整合の解消、非線形性や多相化学\*<sup>19</sup>の解明、分子から全地球までの包括的理解
- C)地球システム理解増進のための学際連携:地球のサブシステム(生態系・大気組成・気候及び気象・人間活動)の間の相互作用(健康影響を含む)とフィードバック\*20の解明 と統合的評価
- D)研究インフラの強化と長期観測体制向上による変化検出力の向上、人材育成の推進、デ ータ科学の展開と特色ある国際貢献

これらの課題の達成のため、大気化学プロセス理解の高度化を分野内で推進することに 加え、隣接分野(気象・気候科学、海洋学、雪氷学など)や国際研究コミュニティとの連 携を積極的に強化し、地球システム理解増進に貢献すること、社会課題解決のため、研究 開発・学術教育・民間企業など、カーボンニュートラルを目指すあらゆるステークホルダ ーや、政策決定者・市民との対話を拡大し、科学知識やデータを結集することを、2022~ 32年の基本姿勢に取り入れていく。

#### 1 大気化学研究分野の究極のゴールとこれまでの発展

#### (1) 大気化学研究の目指すもの

大気化学とは、地球大気に含まれる物質(気体や粒子)の量や性質を扱い、それらの変化に関わる自然・人為プロセスを体系的に理解し、地球温暖化や大気汚染などの地球大気環境の諸問題を解決に結び付ける学問である。本研究分野が目指す「究極のゴール」は、今回の「大気化学の将来構想 2022-32」の策定の議論を通じて、改めて以下のように整理された。

- 1)専門知の深化:温室効果気体(GHGs)、オゾン層破壊物質(ODSs)、大気汚染を起こす 反応性気体、エアロゾル等のあらゆる大気成分について、濃度や特性の変化を方程 式やパラメータを用いて表現でき、実大気中の現象や変化の仕組みの説明と将来予 測が可能となること、大気化学プロセス(排出・分子反応・輸送循環・吸収沈着な ど)の役割や、自然の巧妙な酸化能や浄化作用などの機能のメカニズムを理解する こと
- 2)地球システムの学際的探求:気候影響(雲・放射相互作用を含む)や健康影響を定量 化でき、陸・海(生物圏を含む)との物質科学的な相互作用を体系的に理解するこ と
- 3) 社会課題解決のための超学際連携:これらの理解の深化に基づいて、排出量や濃度な どの状態変化を即時に検出でき、気候変動・大気汚染の緩和・適応策のためのエビ デンスを提供すること、社会へ的確な将来予測情報を提供できること

(※なお、基礎作業を行った各論7テーマ「長寿命気体」「反応性気体」「物理化学」 「大気陸域統合」「大気海洋統合」「エアロゾル・放射・雲」「成層圏・中間圏」ごとの 究極のゴールについては、別表1-1~7を参照のこと。上記の3点はその集約版である。)

大気化学研究分野の現代の取組からゴールまでを表現した概念図を図1に示す。



### 図 1 現代における大気化学研究の概念図 (出典) IGAC 小委員会にて作成

空間範囲としては、我々の生活空間や排出源付近の「局所」から、我が国を含むア ジアなどの「地域」、極域を含む「全球」までとし、高度範囲としては「地表付近」を 含む「対流圏」を中心に、成層圏などの「高層」までを対象としている。図の最上部 に示すように、「大気化学プロセス」と「地球統合システム」の理解の深化から、「社 会課題解決」までを一繋ぎのものとして扱う。人間活動と自然の両方に由来する物質 を総合して「大気組成」として取り扱い、温室効果気体などの物質循環、反応性気体 の化学反応・消失、エアロゾル粒子の微物理や特性の変化などの素過程を解明する。 それらの大気組成を、人間活動、気候・気象、及び海・陸・生態系とともに地球環境 システムの重要な「サブシステム」として捉え、それら4極のサブシステム間の相互 作用やフィードバックを含めて地球システム全体の振る舞いを明らかにする。社会課 題解決のためには、システムの変調の駆動力となる「排出量」の推計など「現在の状 態」の分析結果や、シミュレーションに基づく「将来予測」の情報、及びそれらを基 にした「因果関係」などの統合的知識を、政策決定者や行政機関に提供し、「社会的な 要請」に応える(図1右部)。こうした研究開発と社会課題解決の推進のために、研究 インフラの強化、人材育成、データ科学の展開は基盤的な要素となる(図1下部)。ま た、これらは地球惑星科学・環境学の発展に通底するものであり、多分野と協働しつ つ先導的な取組を目指す。

今回の「大気化学の将来構想 2022-32」の策定においては、まず前述の「究極のゴー ル」の長期的達成を意識し、次項に示すように、これまでの歴史的発展の流れを押さえ た上で、直近の 10 年間の「世界の動向」と、その間の取組における「我が国の研究開 発の強み」を分析した。この分析を基に、現在の「重要なギャップ」とさらなる課題を 整理し、「今後 10 年間にどのような取組を進めるべきか」、と論考を進めた。この作業 についても、前述の究極のゴールの場合と同様に、各論7テーマごとに進め(別表 1-1 ~7)、その上で全体を統括した。なお、各論の本文は、200 ページを超えるものとなっ たため、別冊(<u>https://jpsac.org/spl/</u>)及び日本大気化学会の「大気化学研究」誌第 47、 48 号に掲載した。各論では、「尖った」研究構想をまとめることを目指したため、重要 な研究であっても十分に網羅されていないことがある点を付記しておく。

#### (2) 大気化学研究のルーツと歴史的発展

表1は、大気化学研究の歩みを年表にまとめたものである。これまでの研究主題は、 1990年代以降、成層圏オゾン層破壊、越境大気汚染、地球温暖化など、地球規模の社 会的課題とともに変遷してきた。研究アプローチでは、従来は小規模だった観測が人 工衛星観測の発展などによって組織化・大規模化し、数値モデルとも統合しつつある。 超高層大気学・気象学・光化学・反応速度論などを源流として生まれた「大気化学」 は国際組織である、地球大気化学国際協同研究計画(IGAC、以下「IGAC」という。)、及 び大気化学と地球汚染に関するコミッションCACGP(現iCACGP、以下「iCACGP」という。) とともに成長し、関連する複数のノーベル賞受賞も研究分野の推進力となった。国内 でも「日本大気化学会」や「日本学術会議環境学委員会・地球惑星科学委員会合同 FE・WCRP 合同分科会 IGAC 小委員会」(以下「IGAC 小委員会」という。)が中心となり、 国際会議の誘致などを契機に発展してきた。

	研究主題·社会的課 題	アプローチ	学問発展の流れ・組織や会合	発行物
1960–1979	光化学スモッグ・酸 性雨	野外観測、チャン バ実験	CACGP(1971) エアロノミー(超高層大気 学)、気象学、光化学・反応速 度論	
1980-1989	成層圏オゾン層破壊		IGAC 発足(1988)	
1990–1999	地球温暖化 グローバル大気化学	航空機・船舶・成 層圏衛星観測、集 中観測・長期観測	大気化学黎明期 大気化学シンポジウム(1991) IGAC 富士吉田会議(1994) ノーベル化学賞(S. Rowland 氏、 M. Molina氏、P. Crutzen氏 1995) 大気化学討論会(1995~) 大気化学研究会(1999~2013)	「日本の地球大気化 学研究 1989-1999 - 10 年間の総括と今後 の研究戦略- (2000)」
2000–2009	メガシティ、多相化 学、気候モデル科学	数値モデル・対流 圏衛星観測	ノーベル平和賞 (IPCC AR4, 2007)	今後の日本の大気化 学研究(2008)
2010–2019	越境大気汚染 (PM <sub>2.5</sub> )、放射性物 質、大気質	観測モデル統合、 組織化	大気化学成熟期 日本大気化学会(2014~) iCACGP-IGAC 高松会議(2018)	
2020–2050	コロナ影響排出削減 評価、SDGs、カーボ ンニュートラル、気 候変動適応、防災	面的連続・高分解 能観測、データ同 化、	ノーベル物理学賞(真鍋淑郎 氏、 2021)	本将来構想(2023)

表1 大気化学研究の歩み

(出典) IGAC 小委員会にて作成

#### (3) 直近10年間の研究動向の分析とさらなる課題

こうした歩みの中で、特に、直近の 10 年間に着目して「世界の動向」を分析したと ころ、観測と数値モデルの高度化と統合や、排出量推計手法の複合化などにおいて、 顕著な進展があったことが改めて認識された。前者については、例えば、観測された 現象のプロセス解釈に、各物質の排出量分布や気象場・化学過程等が表現された大気 化学輸送モデルを援用する事例や、エアロゾルの混合状態を解像する新たな数値モデ ルが構築され、観測によって検証された事例などが挙げられる。観測のみ、数値モデ ルのみで構成される論文の割合は減少しつつある。後者としては、社会経済の部門別

(エネルギー転換・産業・運輸・家庭など)の活動量の統計値と排出係数の積として 排出量を見積もる「ボトムアップ法」と、観測された大気濃度から排出量を逆推計す る「トップダウン法」がそれぞれ高精度化した。例えば、GCP<sup>\*21</sup>(Global Carbon Project) では両者が統合的に評価され、ハイレベルな報告書が定期的に出版されている。さら に、この直近の 10 年間においては、新たな主題(気候危機・カーボンニュートラルな どの社会的主題から、界面問題、エアロゾル状態・サイズ別モデリング等の個別研究 主題レベルまで)が浮上してきたことも特徴として挙げられた。

この期間において、「日本の研究の強み」としては、気候や生態系に影響をもたらす 新たな物質として注目が集まった産業起源の酸化鉄について、観測や数値モデルを統 合して収支を明らかにし、従来知られた自然起源鉱物ダスト由来の鉄と複合させた評 価で世界をリードした点や、大気の酸化能と自然の浄化作用を支配する OH ラジカル反 応性の定量化等を通じ基礎理論の評価を実践してきた点、長期間の高精度な GHGs 観測 によって吸収・放出フラックス変化に関する世界最先端の評価を実現した点などが挙 げられた。また、地域的な特性を生かし、アジア越境大気汚染問題の解明や、それに 付随するプロセス研究が進展し、PM<sub>2.5</sub>の越境大気汚染の発生メカニズムの解明や、起源 寄与情報の行政への提供などで成果を高めた点も特筆すべきである。さらに、この間、 IGAC や FE・WCRP(世界気候研究計画)でも研究の組織化が進展し、日本の研究者も関与 を深めてきた。

一方で、国内外の研究の進展に伴い、さらなる新重要物質(含多酸素有機化合物 HOMs、バイオ粒子、氷晶核生成物質等)も見出されるようになり、先に述べた究極のゴ ールを達成するには、既知の成分に加え、これらの物質の循環や機能の解明も求めら れるようになった。加えて、新たな手法(人工衛星観測・データ同化・質量分析・分 光計測・同位体解析等)の適用や既存技術の高度化によって、次の2章で述べるよう に、自然科学的なメカニズムを解明するための鍵となる科学的知見や、社会課題の解 決につながる重要な情報を得るための道筋も見えてきた。さらに、海洋・陸域を含む 地球システムの理解の増進とモデル化の必要性、宇宙からの影響の理解、社会経済分 野との対話など、従来の個別分野の単位を超えた連携が求められるようになった。

#### 2 今日の大気化学研究の課題と意義

(1) 今後 10 年間で実施すべき取組

1章で述べた究極のゴールの達成を数十年後に見据え、また、歴史的な発展及び最近 10 年間の進展状況を踏まえた考察の結果、「今後 10 年に実施すべき課題」は以下の 4課題へと集約された(同様に、7テーマの課題は別表 1-1~7 を参照されたい)。

- A)気候安定化等の社会的課題解決に資する物質科学的知見の結集:大気汚染物質と温室効果気体の複合的視点の導入や人工衛星利用の推進による、排出量や健康影響等の社会に繋がる情報の創出 {長寿命気体6章、反応性気体3章、エアロゾル放射雲4章、成層圏・中間圏6章} ※中括弧内は各論(別冊、<u>https://jpsac.org/sp1/)</u>の章番号を指す。
- B)大気化学に残る謎を解く鍵プロセスの探求と知識の体系化:未知過程の発見や理論と 現実の不整合の解消、非線形性や多相化学の解明、分子から全地球までの包括的理 解{物理化学3・4章、反応性気体2章}
- C)地球システム理解増進のための学際連携:地球のサブシステム(生態系・物質(大気組成)・気候及び気象・人間活動)の間の相互作用(健康影響を含む)とフィードバックの解明と統合的評価 {大気陸域統合、大気海洋統合、エアロゾル放射雲3章、成層圏・中間圏4章}
- D)研究インフラの強化と長期観測体制による変化検出力の向上、人材育成の推進、デー タ科学の展開と特色ある国際貢献 {エアロゾル放射雲2章、成層圏・中間圏3章}

ここで A)、B)、C)は、究極のゴールとして述べた1章(1)の 3)、1)、2)にそれぞれ 対応するものであり、D)はそれらの共通基盤の強化として位置付けられる。

A)においては、喫緊の課題である気候安定化を中心に、社会課題解決のために知見を 結集する。社会で掲げる目標年次(例えば、2050年カーボンニュートラルや 2030年 SDGs など)までに十分な科学的知見を得て社会へ浸透させ変容を促す。その際に、適 切な方向に進んでいるかどうかを随時確認し、対策を最適なものとするために、排出 量変化などの評価ステップを「迅速」なものとし、目標年次までに繰り返す。目標年 次を意識した社会の動きの科学的評価としては、これまでにも、オゾン層を破壊する フロン類に関するモントリオール議定書での削減や、IMO(国際海事機関)による船舶 用燃料油の硫黄分規制強化(2020年)などがあったが、今後、温室効果気体等でも広く意 識すべきものとなる。その際、技術進歩の著しい「大気環境観測衛星」からの専門的 な観測データを、遅滞なく社会で活用できる情報に転換するシステムの開発を進める べきである。また、これまで独立に取り組まれていた GHGs と大気汚染物質の変動を統 合的に解析することが有効である。その利点としては、両者で共通となるエネルギー 燃焼関連の発生源や排出量の評価を効率化できること、大気汚染で問題となる対流圏 オゾンやエアロゾルは短寿命気候強制因子 SLCFs であり、地球温暖化抑止のために GHGs と統合的な管理が必要であることが挙げられる。気候安定化だけでなく、大気質・健 康保全も念頭に、社会の対策の指標として重視される「排出量変化」や「気候・健康 へのインパクト」についても、濃度・状態といった専門分野内の変数と合わせて、解 析を強化し、科学的な情報を発信していく。

B)は、大気化学に残る謎を解く鍵プロセスを探求し、諸現象を説明するメカニズムの 見解を定めていくものである。各論の議論では、具体的には、大気の酸化能を決定づ ける OH ラジカル反応系に残る亜硝酸や不均一反応<sup>\*22</sup>の重要性、二次生成エアロゾル<sup>\*33</sup> の生成経路・収率問題、極域の大気化学反応などが挙げられた。素過程の探求を深め、 オゾン生成化学過程等の「非線形性」や、界面<sup>\*34</sup>や不均一反応を含む「多相化学」の理 解を増進し、実大気での局所(ミクロ)〜全球(マクロ)の挙動を結び付ける際の従 来の障壁を乗り越えるものである。物理と化学が複合する過程として、温室効果気体 と HFC 類<sup>\*55</sup>の増加に伴う、成層圏の気温構造と中高緯度の大気循環変化の定量化の課題 などもある。

C)については、大気化学と隣接分野との協働を深め、地球システムの統合的理解を高 めるものである。図1について解説したように、大気組成を、地球システムの1つの サブシステムと捉え、他の3つのサブシステム(生態系、気象・気候システム、人間 活動)と合わせた4「極」が相互作用するメカニズムやフィードバック(例えば、人 間活動による物質(大気組成)の変動が気候に与える影響や、気候変動が物質循環を 介して生態系へフィードバックをもたらす作用)を、統合的に明らかにするものであ る。具体的には、陸域植生からのバイオエアロゾルや二次有機エアロゾルが気候プロ セスに与える影響、地球温暖化・海洋酸性化・栄養塩の大気からの沈着量変化によっ て引き起こされる、海洋から大気へのエアロゾルや前駆物質の供給量の変化と、雲を 介した気候フィードバック、雲・降水・エアロゾルの同時衛星観測によるエアロゾル -雲相互作用の診断、北極域の湿地・永久凍土・森林火災・海洋循環の劇的な変化と 大気化学を介する地球システム変動などが挙げられる。

D)については、特色ある長期観測を継続することで、従来よりも小さな変化シグナル までを捉えられるようにすること、A)~C)までを達成するために必要な研究インフラを 強化し、データ科学など新たな視点を導入しつつ、次世代の人材を育成するものであ る。

以上の4課題への取組方についても、すでに示した概念図(図1)で表現されてい る。これらの課題の達成には、大気化学プロセス理解の高度化を分野内で推進するこ とに加え、国内の隣接分野(気象・気候科学、海洋学、雪氷・極域科学、生態学、大 気環境学、公衆衛生学など)や国際研究コミュニティとの連携を積極的に強化し、地 球システム理解増進に貢献すること、社会課題解決のため、研究開発・学術教育・民 間企業など、カーボンニュートラルを目指すあらゆるステークホルダーや、政策決定 者・市民との対話を拡大し、科学知識やデータを結集することが重要であり、これら の点を 2022~32 年の基本姿勢に取り入れていく。

#### (2) 社会的意義

2021年8月には気候変動に関する政府間パネル(Intergovernmental Panel on Climate Change: IPCC、以下「IPCC」という。)の第6次評価報告書(WG1)が公表され、地球温暖化の根本的な原因は人間活動にあり、CO<sub>2</sub>やメタン、オゾンやエアロゾルを含む短寿命気候強制因子(SLCFs)などの排出量が増大して、それらの大気中の濃度が上昇し、さらに地球の放射収支が変化した結果であることに、疑う余地がないとされた(図2)。また、パリ協定で目標とする「産業革命前から1.5℃上昇」までに残された昇温幅はわずか約0.4℃であり、許容されるCO<sub>2</sub>の今後の排出量(残余カーボンバジェット\*\*\*)は、近年の排出量換算でわずか約12年分と推定された。このように、地球温暖化問題は、前世紀末からやや遠い将来の懸念事と認識されてきたが、いまや喫緊の対応が求められる「気候危機」へと姿が変わった。2020年には、我が国としても「2050年カーボンニュートラル」を目指すとの方向性が強く打ち出され、あらゆる社会経済活動分野における排出削減の加速が求められている。残余カーボンバジェットの推定では、今後のSLCFsの変化による昇温の寄与分を除いてからCO<sub>2</sub>分を評価する必要があるため、CO<sub>2</sub>と合わせて、大気汚染にも密接にかかわる SLCFs の排出もよく管理し、気候影響を評価する必要がある。

大気組成の変化は気候リスクだけでなく、大気質・健康リスクとも直結している。 PM<sub>2.5</sub>やオゾンによる健康リスクは、世界で年間 400 万人もの余命を縮めており(WHO Fact Sheets, 2022)、改善が強く望まれる。国内の最近の大気中濃度と大気環境基準の 関係では、PM<sub>2.5</sub>(日平均 35  $\mu$ g m<sup>-3</sup>、年平均 15  $\mu$ g m<sup>-3</sup>)については達成率が向上しつつ あるが、光化学オキシダント(オゾン、1時間値で 60 ppb)の達成率は未だにほぼゼロ である。世界保健機関(WHO) は疫学などの視点から 2021 年にガイドライン値をむしろ 引き下げており(PM<sub>2.5</sub>は5  $\mu$ g m<sup>-3</sup>、オゾンは季節極大が約 30 ppb、表 2)、大幅な改善 が必要となっている。さらに、海や陸の生態系に対して重要となる反応性窒素(硝酸) やリンの物質循環は「惑星の許容限界<sup>\*27</sup>」を超えているともされ、循環径路上の大気を 含め管理が求められている。



図2 1750年から2019年にかけての地球温暖化(有効放射強制力及び世界平均気 温)への排出物質毎(縦系列)・大気成分毎(色)の寄与 (出典)IPCC第6次評価報告書WG1 第6章 Figure 6.12

表2 PM25と地表オゾン濃度に関するWHOによる大気質ガイドライン及び我が国の

汚染物質	平均時間スケール	大気質ガイドライン		ロナの珥行理培甘進
		WHO 2021 年改訂	改訂前 (WHO 2005)	口中(7)坑1] 垛児本牛
$PM_{2.5}$ (µg/m <sup>3</sup> )	年	5	10	15
	24 時間	15	25	35
オゾン(µg/m³)	極大となる季節	60 [約 30 ppb]	N/A	[60 ppb 1 吐閂]
	8時間	100 [約 50 ppb]	100 [約 50 ppb]	[nn hhn' 」中[目]]

環境基準値

(出典)https://apps.who.int/iris/handle/10665/345329 及び https://www.env.go.jp/kijun/taiki.html

こうした状況において、CO<sub>2</sub>やメタン、PM<sub>25</sub>・オゾン・窒素酸化物<sup>\*8</sup>等の大気汚染物質 の科学を扱う大気化学研究分野では、隣接分野や社会と連携して課題解決の要請に応 える必要性も高まっており、専門性に根差したエビデンス提供などの新たな使命も生 まれている。

課題解決の社会的要請に応えるためには、環境問題一般の因果関係のフレームワー クとして欧州から広まる DPSIR\*29 の概念を念頭に、自然科学的理解を増進させ、社会科 学・政策決定者へのエビデンス提供から対処を促すことが有用である(図3)。DPSIR は Driver (根本原因)、 Pressure (負荷)、State (状態)、Impact (影響)、Response (対策や対応)の頭文字であり、大気環境問題に当てはめると、Pは「排出負荷」、Sは 「大気成分濃度の変化」、Iは「気候や健康への影響」となる。それらの間の因果関係 を科学的に明らかにすることは、2章(3)で示すように必須である。その上で、獲得し た知識をスムーズに遅滞なく政策決定者や国際機関・国内省庁などへわかりやすく展 開し、R(国内・国際対策や対応)を通じて D(グローバル社会経済)の変容を促す。 例えば、排出削減対策で狙いをつけるべき地域・部門のピンポイント化、経済・社会 工学分野との連携による対策のコスト・ベネフィット評価、現況分析・将来予測や地 球統合システム変動の知識の提供、意思決定の支援などの面で、当分野の専門的知識 を社会へと普及していく。市民との対話による社会変容に対する意識の醸成も重要で ある。今後、人工衛星による大気組成の計測が、水平解像度などの点で大きく発展し、 従来は難しかった、国や都市、個別事業所単位での GHGs 排出量の変化を追跡すること までもが可能となると見込まれている。時々刻々の排出削減努力の可視化情報は、 ESG<sup>\*30</sup>(環境・社会・ガバナンス)活動やTCFD<sup>\*31</sup>(気候関連財務情報開示タスクフォース) 報告書作成などを通して気候変動問題への対応・社会変容の牽引・リスク管理の情報 公開を進める民間企業に向けても意義深く、コンサルティングなどの新たなサービス にも結び付くだろう。その意味で、大気化学の専門知識と社会経済活動の橋渡しがで きる人材を増やすことも重要な課題となっている。



図3 大気化学分野からの社会との連携に関する模式図(大気化学の専門的知識を基盤とし、社会経済~排出負荷~大気成分濃度状態~気候・健康影響の因果関係を明らかにし(青)、科学的エビデンスに基づいた政策(黄)が適切に社会変容や排出負荷の緩和に結び付くようにする。このように、DPSIR(本文参照)の概念に基づき課題解決サイクルを回していく。求められるタイムスケールでの問題解決のために、排出・濃度変化の評価を迅速化し、現況分析結果や将来予測情報などに関し、政策決定者・国際機関・国内省庁等との対話を拡張する(緑)。排出削減政策の成否を、さらなる観測によって実証する。社会変容の加速のためには民間企業や市民の選択のため

の情報を提供する。歯車は因果関係や情報の確実な伝達を象徴している。)

(出典) IGAC 小委員会にて作成

#### (3) 科学的価値と学術研究の方向性

今後 10 年間で取り組むべき研究の科学的価値や学術としての方向性に関して、個別の大気化学プロセス(排出・分子反応・輸送循環・吸収沈着など)を好奇心に基づいて深く追究し理解することの重要性は明らかであるが、本項では俯瞰的に2点、「劣決定問題<sup>\*32</sup> underdetermined systemからの脱却と優決定系への移行」、「階層的なシステム理解の確立」を取り上げる。

大気化学の諸課題への取組では、正確に知りたい変数の数に比べて観測量が不足し、 方程式の数に対し未知数が上回る「劣決定問題」に直面する場合が多い。例えば、あ る地点である物質の大気中濃度を精度よく計測できたとしても、それだけでは排出量 や化学的生成・消失・流入フラックスなど、大気中濃度の変化を引き起こす複数のプ ロセスは定量的に一意には決まらない。実際には、大気は開放系で、排出量などの境 界条件が時間とともに変化し、多種の物質群の濃度や特性が互いに関係しながら時空 間4次元にわたり変化する。そのような真の状態のうち、限られた局面のみが観測で き、その中から鍵となるプロセス(未知プロセスの場合もある)を定量評価してゆく こととなり、事態はさらに複雑である。言わば、ピースの欠けたパズルから、通底す るメカニズムや理論を推定する試みのようである。しかしながら、気象場や力学・化 学過程などを表現した大気化学輸送モデルによって、限られた観測の情報を繋ぎ合わ せることができるようになり、観測とモデルを両輪とした解析の有効性が見出される ようになってきた。今後は、観測情報量の飛躍的な向上と、データ同化技術などのス マートな方法論の併用によって、こうした劣決定状態から脱却してゆくことが重要で ある。

近年では、人工衛星から大気中の多成分について、濃度の面分布を空間連続的に、 高い水平分解能で計測することが可能となってきた {反応性気体2章}。また、大気環 境の静止衛星も登場し、日中の時間変動も追跡することが可能となってきた。複数の 物質間には、共通の排出源、共通の輸送、化学反応に伴う関係性、「共変関係」が存在 する場合があり、共通の過程を紐解くために、複数の物質を組み合わせて解析するこ とには意義がある。このように、多成分の時間的・空間的に密な観測と、それによっ て検証された数値モデルを駆使して、引き出される情報の質と量を向上させることが、 劣決定問題を overdetermined system (優決定系) へと近づけていくための鍵の1つに なると考えられる。

例えば、2024 年に打上予定となっている GOSAT-GW/TANSO-3 では、GHGs として重要な CO<sub>2</sub>、メタンの計測に加え、高温のエネルギー燃焼起源のマーカーとなる NO<sub>2</sub>の計測が同 時に行われる計画であり、都市や発電所からの排出量の把握などで我が国が世界をリ ードできる可能性がある。一方、衛星観測では手が届かないスケールの事象もあるた め、地球観測ネットワーク(地上・航空機・衛星)を相補的に拡充することが重要である。 そして、成分間・時空間の情報を複合的に繋ぎ合わせるデータ同化手法や、その基盤 となる大気化学輸送モデルの進化が、こうした膨大な観測情報の解析のために有効と なる。この複合解析においては、複数の重要因子の不確かさをどのように正確に把握 し、その上で大気化学の状態変化の解析に結び付けてゆくか、戦略やアイディアも必 要となるだろう。

また、こうした多成分の空間・時間分解能の高い計測情報の利用以外にも、同位体 情報の高度な利用\*3 や、濃度・フラックス(反応性)の同時測定も、優決定系への移行 を促進しうる。そのような取組も今後推進されるべきである。エアロゾルの光学的性 質や雲凝結核 CCN 等としての特性、活性酸素種などを通じた健康影響の指標など、「物 質の性質」とその変化を明らかにすることも当分野の大きな目標の1つであり、性質 の次元の情報量を増やすことも重要である。このような考え方は、個別の排出物質や オゾン・PM<sub>25</sub> など大気中で生成する重要物質、さらには未知の重要物質のいずれに関し ても、自然・人為起源寄与割合や大気中の化学過程、輸送過程、消失過程に至るまで の全ライフサイクルを明らかにするために重要となるだろう。そして、大気酸化能と 自然の浄化作用を支配するものの、全球スケールでの変動が捉えられていない、OH ラ ジカルの挙動解明など、大気化学の残された中心的課題を解くためにも有効なアプロ ーチとなるだろう。

2点目の「階層的なシステム理解」は、大気化学分野内の理解の体系化を起点として、大気と接する陸・海を含む地球表層物質循環の自然システム面を理解し、さらに、 人間活動の地球環境への影響や、逆に地球環境が人間へ与える影響を加えた気候・物

質科学をシステム的に理解することを、階層的・段階的に目指すものである。第一段 階の大気化学の理論としては、素反応過程単位の知識の集積と大気化学方程式の体系 化が重要であり、液相・気相とそれらの界面を含む多相化学など、今後の取組が必要 な部分も大きい。また、エアロゾルの化学組成・微物理特性と放射をよりよく結び付 ける必要性がある。第二段階では、地球サブシステムとしての海・大気・陸といった 各構成要素内を体系的によく理解した上で、それらのサブシステム間や、人間活動と の間にみられる物質交換フラックスや相互作用に関して、定量的・整合的な理解を得 ることが重要である。例えば、陸域と大気との間の CO2 交換量について、大気プロセス 側から見た評価と、陸域植生側から見た評価とを十分にすり合わせ、共通の理解を得 るということなどである。第三段階は、自然システムだけでなく、人間活動との相互 作用のメカニズム(社会経済活動による排出量変化や人為的な土地利用改変と、気候 変動との相互作用や、大気組成変化がもたらす健康影響の作用機序も含む)の理解を 促すものである。このような考え方で、個別分野としての大気化学研究を深化させた 上で、地球システムの学際研究や、社会課題解決に向けた超学際連携へと段階的に貢 献していけるだろう。そして、こうした活動の中で対象としたシステムに関して獲得 した「知」を、外のシステムにも適用できる普遍知へと昇華させていくことも目指す べきであろう。

#### (4) 分野間連携の現状と今後の在り方

3章(3)のような10年計画の達成には、前述したように、分野内の研究開発の深化に 加え、以下に例示するような、隣接分野との連携の強化や、これまで接点のなかった 分野との連携も強く求められる。

#### ・地球システムモデル科学

IPCC 報告書へ直結する CMIP 結合モデル相互比較<sup>834</sup>実験では、標準的に扱われる CO<sub>2</sub> 変化に加え、大気微量気体やエアロゾルの変動を含むシナリオ実験が多く組まれ、我 が国の地球システムモデル<sup>835</sup>(気象研究所の MRI-ESM2.0 や海洋研究開発機構他の MIROC-ES2L)が参画している。今後も、これらの地球システムモデル実験への参加や、詳細度 の高い大気化学プロセスモデルや観測との地球システムモデル比較評価などが望まれ る。生態系を含む陸面・海洋と大気組成の間のフィードバックのうち、例えば、生物 起源揮発性有機化合物 BVOC<sup>836</sup>類の反応によるエアロゾル・オゾン生成、バイオエアロゾ ル粒子の氷晶核化がもたらす気候へのインパクト評価や、地球温暖化に伴う森林火災 の頻発化や永久凍土の融解による GHGs 放出の温暖化フィードバックなどについて、理 解を高めることができる。

#### ・経済・社会工学

CO<sub>2</sub>やSLCFsなどの人為排出インベントリ<sup>\*37</sup>作成は経済・社会工学分野との直接的な 接点であり、削減対策の基盤として高精度な情報が必須である。科学面でCO<sub>2</sub>やSLCFs、 大気汚染物質の有効な排出削減対策が見出されても、経済的な合理性が伴わないと社 会的に有効な対策とならない。経済分野と連携した限界削減費用計算なども一部なさ れつつあるが、費用対便益<sup>\*38</sup>の評価に発展させるなど、今後の連携強化が必要である。 CO<sub>2</sub>削減等に関する民間企業の ESG 活動や TCFD 対応のためのコンサルティングや専門的 知識提供・普及も重要な方向性である。

新型コロナウイルス感染症の蔓延防止策がもたらしたグローバル社会経済の変化は、 大気中 NO<sub>2</sub> 量を計測する当分野の全球衛星観測<sup>\*39</sup>から一目瞭然であり、地域・時期ごと に定量化された。また、将来の排出抑制がもたらす大気質改善・気候安定効果を先取 り評価した。それ以外にも、例えば原発事故や火山噴火など、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、それを追跡するためのデータを 整備することも、大気化学と社会経済学との重要な接点になる。基盤データは長く継 続すればするほど学術的な価値が高まり、当分野の科学者コミュニティに資するのみ ならず、社会的な各種対策の長期的な検証などにも役立つことになる。

#### · 衛星地球観測

地球観測衛星は、これまでも大気化学分野と密接な関わりを有してきた。従来は、 大気化学コミュニティから衛星センサの開発等に直接的な貢献をする動きは限定的で あったが、関係者の継続的な尽力により近年その活発化がみられる。我が国として、 限られた資源を意義のある地球観測衛星計画に投入するため、諸学協会が合同で運営 する「今後の宇宙開発体制のあり方に関するタスクフォース会合・リモートセンシン グ分科会」の場で公平な議論やミッション公募がなされるようになった。日本大気化 学会はこの活動に加わり、関係者として、静止衛星からの大気環境計測などの提案や 他ミッションの評価などを行うことで連携や相互理解を高めている。また、日本学術 会議「地球惑星科学委員会地球・惑星圏分科会地球観測衛星将来構想小委員会」でも、 地球観測衛星の科学的・社会的な意義の議論と推進を行っている(3・4章を参照)。

·計算科学

スーパーコンピュータ「京」や「富岳」に代表されるように、近年の計算科学の進 歩は目覚ましく、分子レベルから全球スケールまで幅広い現象の理解向上に貢献して きた(4章を参照)。大気化学としても、エアロゾルなど界面反応に関わる理論計算や、 CO<sub>2</sub>や SLCFs の気候影響予測の精緻化など、既に多くの接点がある。さらに、AI や機械 学習を活用したデータ解析も行われるようになり、古典的な統計解析ではデータセッ トのバイアスで隠れていたような現象の発見につながることも期待される。

一方で、大気化学分野で計算科学を専門としている人材は限られており、ブレーク スルーとなりうる革新的なアルゴリズムを開発するレベルには至っていない。このた め、モデルで用いられる大気化学プロセススキームの多くは海外の知見に依存してい る状況にある。今後は、計算科学を専門とする数理科学分野の研究者とも緊密に連携 し、日本独自のアルゴリズム開発につなげることも必要であろう。観測データの拡充

20

との相乗効果により、観測とモデルのギャップを埋める方向に向かうことが期待される。

・健康・医学・生命科学

オゾンやPM25など呼吸器を介して健康に悪影響を与える因子については、疫学調査を 中心とした長い研究の歴史がある。近年では、肺胞での物質交換など多相・不均一系 のダイナミクス、大気中で生成する有機エアロゾルや過酸化物が誘起する酸化ストレ ス、あるいは不溶性の固体粒子の循環器系への移行など、より物理・化学過程に踏み 込んだ研究も盛んになっており、大気化学と医学・生命科学との重要な境界領域にな っている。さらに、インフルエンザやコロナウイルスなど空気を媒介とした感染症に 加えて、川崎病など原因が十分に特定されていない感染症に対する大気組成の関わり の探求なども今後取り組む意義がある問題である。このような研究は欧米が先行して いるが、アジア特有の汚染物質発生源や気候、あるいはアジアの人種的な特性を踏ま えて、疫学研究や毒性評価に新しい展開をもたらすことは重要であり、その研究の推 進において大気化学研究分野のポテンシャルが発揮されることが期待される。

#### 3 国内外連携の在り方

#### (1) 国際プロジェクトとの協調

大気化学の研究では、地球規模での包括的な理解や課題の解決につなげていくため に、最先端の研究成果を磨くことに加え、国際的な研究コミュニティと共有し連携し ていくことも等しく重要である。

この国際連携の点で大きな役割を果たしているのが、地球大気化学国際協同研究計 画(IGAC: International Global Atmospheric Chemistry Project)並びに、大気化学と 地球汚染に関するコミッション(iCACGP: International Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution;発足当時は CACGP)である。IGAC 発足当初は、 Scientific Steering Committee (SSC)と呼ばれる執行部は欧米の研究者が中心であった が、現在は日本や中国だけでなく、南・東南アジアの研究者が SSC に入り活躍している。 今後も、SSC への関与を通じて日本から国際的に貢献するとともに、世界の動向や趨勢 を日本の研究コミュニティに伝えることも重要である。

IGAC 及び iCACGP は、定期的に国際会議を開催しており (2022 年以降は 2 年毎に合同開 催予定)、草の根で国際連携のシーズが生まれる場、将来のリーダーを育成する場とし て重要な役割を果たしている。日本では、黎明期の 1994 年の富士吉田会議(参加国 27 カ国から外国人約 170 名、日本人約 90 名)、1997 年の名古屋会議(外国から約 90 名、 日本人約 90 名)、成熟期の 2018 年の高松会議(45ヶ国から 725 名)を成功させ、日本 の大気化学コミュニティが世界に認知され国際交流と連携を飛躍的に高める機会とな った。また、近年では、国際会議の参加者のうち約 40%が Early Career Scientists (IGAC の定義では大学院生及び学位取得後 3 年以内の研究者)であり、次世代の大気 化学者の育成にとっても、こうした国際会議の重要性は増している。

2022 年現在、IGAC は 10 種の Activity(表 3)と6 種の Working Group を推進してお り、それぞれ国際共同研究のリーダーシップとキャパシティビルディングの役割を担 っている。これらの定常的な活動も、国際連携を継続的に推進し、発展させる場とし て重要な役割を果たしている。

略称	Activity名称	和訳
PACES	Air Pollution in the Arctic: Climate, Environment	北極の大気汚染と気候・環境・社会
	and Societies	
AMIGO	Analysis of Emissions using Observations	大気観測からの排出量解析
ACAM	Atmospheric Composition and the Asian Monsoon	大気組成とアジアモンスーン
CCMI	Chemistry-Climate Model Initiative	化学気候モデリングイニシアティブ
GEIA	Global Emissions Initiative	地球規模の排出量研究イニシアティブ
MAP-AQ	Monitoring, Analysis and Prediction of Air Quality	大気質のモニタリング・解析・予測
CATCH	The Cryosphere and Atmospheric Chemistry	寒冷圏と大気化学
TOAR	Tropospheric Ozone Assessment Report	対流圏オゾン評価報告書
ACPC	Aerosols, Clouds, Precipitation and Climate	エアロゾル・雲・降水・気候
DEBITS	Deposition of Biogeochemically Important Trace	生物地球化学的に重要な微量成分の沈着
	Species	

表3 IGAC が推進する Activity (2023 年時点)

(出典)https://igacproject.org/activities

これらが扱うトピックスは、本将来構想の各論が対象とした内容とも重なりあって おり、現在日本から参画している研究者に加え、今後、若手・学生を含む広い年代層 が関わっていくことで、直接的な貢献の厚みを増すべきである。

一方のWorking Group は、大気化学として重要な地域にもかかわらず、当該地域にお ける研究者コミュニティが発展途上で国際的な代表性や認知度が弱い地域について、IG AC が 2010 年に立ち上げた活動である。草の根的な研究者ネットワークを強化し、他の 地域の研究者との国際的な連携を促進することを目的としており、現在、アフリカ、 北・中南米、中国、日本、モンスーンアジア、南半球を対象としたものがある。日本 を対象とした Japan National Committee (http://igacproject.org/JapanNationalCommit tee)は、日本学術会議の IGAC 小委員会を Working Group として位置付けたもので、国際 的な「見える化」が進んだ。今後もさらに相互発展的な関係性の維持が求められる。 また、大気化学研究者が組織化されておらず、国際コミュニティとあまり繋がってい ないモンスーンアジアでのワーキングループ MANGO (Monsoon Asia and Oceania Network ing Group) に対しても、日本が果たせる役割は大きい。



図4 IGAC のビジョンダイヤグラム。(IGAC のビジョンは、大気プロセスを完全に理解するために、すべての大気化学分野の協力とバランスを確保し、大気プロセスに関連する他の科学分野と交流し、持続可能性について政策立案者、ステークホルダー、 社会と関わることである。)(出典) https://igacproject.org/mission

iCACGPの活動としては、前述の国際会議の準備に加えて、国際測地学・地球物理学連 合 (IUGG: International Union of Geodesy and Geophysics) \*10国際会議の中の大気化学 関連 IAMAS セッションの企画がある。地球システム科学の中において大気化学のポジシ ョンを適宜見直し、陸域や海洋を含む周辺分野と広く連携していくための窓口の役割 を果たしうる。一方、地球圏-生物圏国際協同研究計画(IGBP: International Geosphere-Biosphere Programme)が、周辺プログラムとマージして発足した国際研究プ ログラムであるフューチャー・アース (Future Earth) は、IGAC が Global Research Project (GRP)\*1として属する母体であり、大気化学コミュニティが、持続可能性を軸に した社会への貢献と連携を強化する上で重要な役割を果たしうる。フューチャー・ア ースには、事務局長を置く日本ハブがあり、国立環境研究所や総合地球環境学研究所、 東京大学等も支援している。SDGs の 17 のゴールの内、気候変動対策やクリーンエネル ギー等、大気化学者が果たせる役割も大きいが、そのレベルでは健康に影響する「大 気質」の観点が見えにくく、大気化学コミュニティとして今後働きかけが必要である。 特に、アジアにおいては、大気汚染の健康被害や気候変動による災害が深刻化してお り、大気化学研究のさらなる貢献が必要である。さらに、フューチャー・アース傘下 の隣接分野である SOLAS (Surface Ocean-Lower Atmosphere Study)\*42や iLEAPS (Integrated Land Ecosystem-Atmosphere Processes Study)\*43、 GCP(Global Carbon Project)と、それ ぞれ海洋・陸域・炭素循環の観点での連携を深め、大気化学へも新たな観点や人材を 取り込むことが重要である。以上のように、地球システム科学としての進化と、持続 可能な社会への貢献は、今後の大気化学研究の2つの軸として重要である(図4)。

IGAC や iCACGP 以外にも、重要な役割を果たすべき国際研究委員会、国連・国際機関 の活動は多い。世界気象機関(WMO)は、リサーチ・ボードと呼ばれる仕組みを通じて Environmental Pollution and Atmospheric Chemistry Scientific Steering Committee (SSC-EPAC) (https://community.wmo.int/governance/commission-membership/researchboard/ssc-epac)という委員会があり、大気化学に関係が深い。特に、GAW<sup>44</sup> (Global Atmosphere Watch) Programme は、温室効果ガスや大気汚染物質の大気モニタリングで重 要な役割を果たしており、その Scientific Advisory Group (SAG)には、Ozone、UV Radiation, Greenhouse Gases, Aerosols, Precipitation Chemistry, Reactive Gases, GURME(都市気象・環境)といった7つの委員会がある。気象庁が担う温室効果ガス世 界資料センター\*<sup>45</sup> (World Data Centre for Greenhouse Gases: WDCGG) などのデータセン ターやデータの品質管理への関与から、(GAW ステーション以外の)観測ステーション の維持や観測データの提供まで、広い貢献を目指すべきである。また、研究的インフ ラストラクチャーの技術面を議論し答申する Expert Team があり、サイエンスを社会へ のサービスにつなげるイニシアティブとして GAFIS (Global Air Quality Forecasting and Information System)、IG3IS(Integrated Global Greenhouse Gas Information System)で は、それぞれ大気質と健康、都市の温室効果ガス排出を対象にしている。国連環境計 画 (UNEP) \*46 は、Climate and Clean Air Coalition (CCAC)\*47、International Methane Emissions Observatory (IMEO)<sup>\*®</sup>といったイニシアティブを立ち上げ、SLCFs に関する研 究開発と国際的な機運の醸成を推進している。

東アジアでは、2001 年に開始された東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET)<sup>\*49</sup>が大きな役割を果たしており、酸性雨問題だけでなく、オゾン汚染、エア ロゾル汚染、さらには、SLCFs を通じた気候変動問題への取組の点で今後さらなる役割 が期待されており、日本に拠点を置くアジア大気汚染研究センター (ACAP)を通じて日 本の大気化学研究者が果たせるポテンシャルは大きい。広域の大気汚染問題に関して は、ACAP が事務局を担う MICS-Asia<sup>\*60</sup> (Model Inter-Comparison Study for Asia)を通じて Task Force on Hemispheric Transport on Air Pollution (TF HTAP)<sup>\*61</sup>への貢献も重要で ある。

2009年に打ち上がった GOSAT 衛星による温室効果ガス観測への取組を中心に、人工衛 星による地球観測にも日本の大気化学研究者の貢献は大きい。GEO<sup>\*52</sup>(Group on Earth Observations)傘下の CEOS<sup>\*53</sup>(地球観測衛星委員会)は、GEOSS<sup>\*54</sup>(Global Earth Observation System of Systems)の宇宙部分を担っており、具体的なグループとして Atmospheric Composition-Virtual Constellation (AC-VC)等がある。日本としては、2020 年に大気汚染物質観測のための静止衛星を打ち上げた韓国とも連携しつつ、GOSAT-GWの 推進や新規提案ミッション{各論の長寿命気体、反応性気体を参照}を通じて、宇宙から の地球観測の点でも国際連携を深め、アジアにおけるリーダーシップを強化する余地 は大きい。

気候変動問題の点でも国際的な連携は重要である。特に、2021 年の気候変動枠組み 条約(UNFCCC)<sup>\*55</sup>の締約国会議COP26では、パリ協定の「2℃/1.5℃目標」実現に向け て各国が 2050 年カーボンニュートラルに向けた政策目標を打ち出しており、脱炭素対 策による温室効果ガス排出量とその推移の把握、そして気候変動の緩和策の1つとし ての SLCFs の削減は、大気化学者が重要な役割を果たせるテーマである。この点で、 IPCC への関与は重要である。国内の大気化学分野からは第5次・第6次評価報告書に 執筆チームメンバー(Lead Author, Review Editor)等を輩出してきた。SLCFs に関しては、 第6次評価報告書で独立章が設けられ、また、第7次評価報告書に向けて、2023 年頃 にもインベントリガイドラインの目次案が作成されることが IPCC で決定され、排出削 減に向けて国際的な動きが加速している。SLCFs は、IPCC 以外にも北極評議会も EGBCM<sup>\*56</sup>(Expert Group on Black Carbon and Methane ブラックカーボン<sup>\*57</sup>及びメタン専門 家会合)やAMAP\*<sup>58</sup>(Arctic Monitoring and Assessment Programme 北極圏監視評価プログ ラム)で取り組まれている。特に、北極評議会ではブラックカーボン・メタン削減のた めに、排出量を報告したオブザーバ国は、非北極圏国であっても北極圏国(カナダ、 デンマーク、フィンランド、アイスランド、ノルウェー、ロシア、スウェーデン、米 国の8カ国)と対等な地位でExpert Groupに参加して今後の対策につき議論に参加する ことができる。科学的知見の提供は、我が国の国際的立場を高めることができる場合 があり、その観点で、国際法学者や政策決定者との議論も重要である。

25

国際的な観測キャンペーンやモデル相互比較実験への関与もまた重要である。例え ば、NASA は、Global Tropospheric Experiment (GTE)と呼ばれる大気化学の航空機観測 を世界各地で実施してきた。アジアでは、日本をベースとした PEM-West A 及び B (1991、 1994 年)、TRACE-P (2001 年)があった。いずれも日本をベースに、アジア大陸から西 太平洋上空への広域を観測対象にしていた。2016 年、約 20 年ぶりにアジアでの NASA に よる航空機観測 KORUS-AQ が韓国をベースに行われたが、これは韓国上空の比較的狭域 に焦点を当て排出源からの排出と化学変質を直接観測した。また、2018 年には、ドイ ツ主導で台湾をベースに EMeRGe-Asia 航空機観測が行われた。今後、NASA は、KORUS-AQ の後継となる ASIA-AQ を 2024 年に計画し、人工衛星や数値モデルと連携して、東・東南 アジアの超広域を対象に、排出源と化学変質を観測することを計画している。人工衛 星観測の検証や、統合的な三次元的大気組成変動の把握には航空機観測は欠かせない 要素であり、研究用航空機の保有に至っていない日本としては、引き続き他学会と共 同で、地球観測専用の航空機保有へ向けた提案と働きかけを学術界や省庁へ継続する とともに、当面は、このような機会に地上観測や船舶観測を同期させて関与するほか、 独自開発した観測機器を持ち寄って参加し実績を積むことも重要である。

以上の国際連携全般において課題となるのは、科学コミュニティがどうしても欧米 中心となりがちで、かつ中国が著しく存在感を増しつつある現状において、我が国か らの新知見や成熟した成果をいかに効果的に発信するかである。国際的なハイレベル 報告書が頼りにするような地域レポートのイニシアティブや、AOGS (Asia Oceania Geosciences Society) などアジア・オセアニア地域でのリーダーシップの発揮なども有 効であろう。また、カーボンニュートラルに便乗した実効性のない取組や提案が広ま るようなことがないよう、専門的視点や公平中立な評価を提供し、適正なルール作り に貢献することも、我が国の研究者が担うことができる役割と考える。

#### (2) 国内の省庁等の関連業務と委員会

1995年に始まった「大気化学討論会」に源流を置く「日本大気化学会」は、日本の 大気化学研究者の発展と連携に貢献してきた。2006年には、日本地球惑星科学連合 (JpGU: Japan Geoscience Union)に加盟し、それまで開催してきた2つの研究集会の うちの1つである「大気化学シンポジウム」を2007年からJpGU大会における「大気化 学セッション」に発展的に移行し、今では連合大会の主要セッションの1つとなって いる。こうした JpGU への関与は、大気化学を他分野の研究者にアピールするだけでな く、大気化学に関連する地球科学分野との連携を強化する機能を果たしている。また、 JpGU のみならず、日本地球化学会、大気環境学会、日本気象学会、日本海洋学会等の 会員を兼ねる会員も多く、研究集会やセッションを共催・後援とする場面もあり、周 辺分野との連携も進んでいる。今後は、地球表層システムを構成する分野として、総 合的な科学理解にいかに貢献しうるか、地球環境問題への関わりの面で社会への科学 的知見の発信をいかに効果的に果たしうるか、といった点が重要である。こうした点 で、日本大気化学会のポジショニングと強み・弱みを整理するとともに、周辺学会と の相補性を意識して今後の連携に取り組むべきであろう。

先に、日本大気化学会は IGAC と関連が深い旨を述べたが、日本大気化学会の特徴は、 IGAC に関連する研究者を中心にしつつ、それだけでなく WCRP の SPARC<sup>509</sup> (Stratosphere – Troposphere Processes And their Role in Climate、成層圏対流圏過程とその気候にお ける役割)、フューチャー・アースの SOLAS や iLEAPS にも関係する研究者が会員となり、 研究集会や運営に参加している点にもある。対流圏大気だけでなく、より広く、対流 圏や成層圏、炭素循環と反応性物質、陸域生態系や海洋表層との物質交換・相互作用 を議論するフォーラム(場)を作っている点が世界的にみてもユニークであり、10~20 年の間に変化する学問分野の趨勢や地球環境問題への社会的ニーズに伴って求められ る組織やコミュニティの再編圧力に対してレジリエントな体制となっている。

現在、日本大気化学会は日本学術会議の協力学術団体であり、多様な活動に関与し ていくことは重要である。IGAC 小委員会は、国際対応面で日本の大気化学研究を IGAC 国際連携に結び付けるものである。大型研究計画マスタープランや未来の学術振興構 想に提案された、気候環境変動の改善を健康・エネルギー・食糧など他の価値とどの ように両立させるか、といった更なる課題に取り組む際には、キープレイヤーの役割 を果たすべきであり、また日本学術会議の「カーボンニュートラル(ネットゼロ)に 関する連絡会議」では、気候変動の物質科学に関する最新知見を、日本学術会議第三 部(理学・工学)だけでなく第一部(人文・社会科学)・第二部(生命科学)へも普 及すべきであろう。このような当分野の最新の動向や課題については、隔年で出版さ れている科学技術振興機構・研究開発戦略センターの「研究開発の俯瞰報告書 環 境・エネルギー分野」の取りまとめにも反映されており、今後の横断的取組等の起点 の1つとしていくべきである。

科学的知見を社会課題の解決に結び付けるために、大気化学の専門性を生かして国 内の省庁等の関連業務や委員会への貢献しているものには以下のような例がある(表 4)。

省庁・委員会等	活動内容
環境省中央環境審議会・微小粒子状物	PM25及び光化学オキシダント(オゾン)の国内濃度削減、基準値達成のため
質等専門委員会	の方策を専門的見地から議論しており、越境大気汚染や脱炭素などの影響も
	加味した専門的知見を提供している。
経済産業省 VOC 排出削減効果の定量的	経済産業推進の視点から、オゾンの前駆物質としての VOC 削減を、国内一律
評価に向けた検討等業務検討会	ではなく地域性・業種別特性を加味した形で推進する方策などを検討してお
	り、その科学的根拠等を専門的見地から議論している。
文部科学省・気象庁・環境省・経済産	IPCCAR6の著者チームメンバーを中心に組織され、章や WG 間の情報交換や、
業省 IPCCAR6WG1 国内幹事会、IPCCAR6	我が国の IPCC への貢献拡大のための議論を行っている。
国内連絡会	
国土交通省気象庁品質評価科学活動懇	気象庁が行っている WMO/GAW 全球大気監視計画に沿った GHGs、オゾン、エア
談会	ロゾル、放射等の計測に関し、その品質向上などについて専門家の意見や科
	学的・技術的助言を行っている。
文部科学省地球観測推進部会	関係各府省や機関等が連携して地球観測を推進するための実施方針や実施計
	画を策定している。

表4 大気化学の専門的知見が提供されている行政関連の委員会の例

(出典) IGAC 小委員会にて作成

その他、常設またはアドホックに開催される、環境省の大気汚染常時監視業務に関 する委員会、宇宙航空研究開発機構の人工衛星観測ミッションに関する委員会等が挙 げられる。

こうした活動は、地球規模の気候変動や大気汚染問題への社会的ニーズの高まりを 受けて、今後さらに拡充すべきであろう。また、より柔軟な形での政策貢献や、政策 貢献をリードしていくことも考えられる。例えば、環境省は、外務省経由で北極評議 会の EGBCM に「ブラックカーボン/メタン排出量の年次 National Report」を提出して いるが、省内所掌の都合上、複数部局が関わっているためそのプロセスは複雑であり、 窓口である省庁と、正確な情報・最先端の科学的知見を有する研究者が繋がっている とは言い難い。そこで、少なくとも研究側での体制や情報を整理しておくことで、研 究側からの行政支援がスムーズかつ迅速に行える。IPCC でも、第7次評価報告書に向 けて SLCF インベントリの方法論を構築することが正式決定、2023 年前半に SLCF インベ ントリガイドラインの目次案が決定されて文書作成が早速始まる見込みであるが、こ うした動きに日本として遅滞なく、かつ科学的合理性を備えて政策対応するためにも、 研究側で準備・検討を開始しておくことで、スムーズな行政支援が可能となり、さら には IPCC の動きを先導することにもつながる。このように、「行政・実務・研究の連携 強化」に関して研究側からできることは大きい。

国レベルだけでなく、地方自治体レベルでも大気化学者が果たせる役割は大きく、 都道府県や市などの環境影響評価委員会などにも貢献している。その際、人間活動に 起因する温室効果ガスの排出を抑えていく「脱炭素化」も今後貢献すべきテーマであ る。日本政府は「2050年のカーボンニュートラル、2030年の温室効果ガス排出量46%削 減(2013年比)」の削減目標を掲げ、世界的な約束事となっているが、具体的な対策や 検証は局所的で、自治体レベルの対応となることも多い。温室効果ガスだけでなく、 大気汚染物質についても、人為または自然起源から大気中に排出される物質を扱う大 気化学は、これら物質の排出インベントリの構築に加え、大気中濃度から排出量の逆 解析(逆推計)も対象としており、気候変動や大気汚染の原因物質の排出量を精緻に 把握することで削減対策につなげ、これらの緩和策に貢献しうる。こうした研究開発 は、現在、亜大陸や国レベルで行われているが、今後の観測やモデル技術の向上によ り、都市レベルでの現状把握が可能となり、地方自治体の脱炭素化や大気汚染対策に 対しても、より直接的に政策貢献できる時代が来ると思われる。

このような重要な役割にもかかわらず、大気化学に関する地球観測の長期維持や連携については課題も大きい。2004年の「地球観測の推進戦略」以降、GEO戦略計画に関連し、現在では2015年の「今後10年の我が国の地球観測の実施方針」に基づいて、文部科学省・気象庁・環境省等や各機関が連携した大気観測計画を構築し維持しているが、実際はオゾンゾンデ観測など、各省庁において予算削減により観測終了を余儀なくされている場面も多い。研究コミュニティとの連携強化などにより、観測終了の影響を和らげるソフトランディングを図ることや、地球観測連携拠点のSLCFs分野の構築など、体制の強化が望まれる。

28

#### 4 大気化学研究開発の基盤の拡充と課題

#### (1) 大気化学研究のプラットフォーム・資源

様々な時空間スケールにおける大気成分の動態を対象とする観測では、観測対象に 応じたその場測定あるいはリモートセンシングを実施するためのプラットフォームが 必要となる。これまで利用されている代表的なプラットフォームには、広域・全球の 長期観測に適した人工衛星、ある領域の空間的分布の把握に適した航空機・船舶、さ らには、長期監視や地表・鉛直分布の状態の観測、先端的計測機器の運用に適した地 上観測ステーションなどがある。

人工衛星による微量ガス及びエアロゾルの観測は、広域の時空間分布を把握するた めの強力な手法であり、大気化学における重要性はさらに高まると考えられる。その 応用には、大気モデルシミュレーションにおける評価や、逆計算による発生源の推定、 データ同化による予報などがある。日本はこれまで、GOSAT シリーズ衛星の1・2号機 による CO2・メタンの衛星観測に成功しており、新たに NO2を加えた3号機による観測ミ ッションが予定されている。面的に連続した、キロメートル級の解像度を持つ観測か らは、非線形大気化学プロセスの直接評価や個別発生源の評価が期待される。また、 ADEOS/ADEOS-II 衛星に搭載された改良型大気周縁赤外分光計(ILAS/ILAS-II)によるオ ゾン層観測、人工衛星ではないが国際宇宙ステーションに搭載した超電導サブミリ波 放射サウンダ (JEM/SMILES) による、オゾン破壊に関わるハロゲン化学物質等の観測の 実績がある。人工衛星による大気観測は、日本の大気化学研究の特徴ある取組の1つ と言え、継続的な基盤の維持と強化により世界の学術コミュニティへの貢献が望まれ る。米国や欧州では大気微量成分の衛星観測が継続的に進展しており、日本の研究者 にとって極めて重要な観測データの基盤となっているほか、近年開始された韓国の GEMS センサによる静止衛星観測は、アジア太平洋域の大気化学研究において強力な手 段となると考えられる。日本において、これら海外の衛星観測と連携した研究を推 進・強化することも重要な課題である。将来の衛星観測プロジェクトにおいては、既 に衛星観測の実績がある成分については、観測の時間・空間分解能の向上により、都 市など局所的な発生源を持つ成分の動態を追跡するなどの発展が期待される。また、 揮発性有機化合物(VOC)<sup>\*0</sup>などの新たな微量成分の検出・定量の可能性を広げること も望まれる。地球惑星科学委員会の地球観測衛星将来構想小委員会での議論や 25 の学 協会で構成される「タスクフォース会合・リモセン分科会」でのミッション公募提案 を継続し、実現を図ってゆくべきである。また、日本大気化学会は、正式メンバーと なったCONSEO(衛星地球観測コンソーシアム)の場を活用し、産官学連携や社会課題解 決のためのデータ活用を推進すべきである。

航空機は、鉛直分布を含む大気成分の空間分布を把握するための優れたプラットフ オームであり、現在の人工衛星では捉えきれない多様な気体成分の計測や、組成・粒 径など複雑な属性を持つエアロゾルの観測において強みを持つ。日本の大気化学研究 における取組としては、A-FORCE 航空機観測や米国が主導した TRACE-P など海外の航空 機プラットフォームを用いる観測研究などの実績がある。しかし、日本において航空
機を利用する観測研究を支援する体制は脆弱であり、大気化学分野を含め、地球科学 分野における観測は外部資金による短期のチャーター機利用に頼る現実がある。この ため、国内の研究者の航空機観測への参入は難しく、また、観測技術を蓄積し発展さ せる基盤は極めて脆弱である。そこで今後、支援体制を整備し航空機観測のすそ野を 広げることが求められる。日本学術会議が提案する「第 24 期学術の大型研究計画に関 するマスタープラン」(マスタープラン 2020)では、重点大型研究計画の1つとして

「航空機観測による気候・地球システム科学研究の推進」が学術大型研究計画の中か ら特に速やかに推進すべき計画として選定された。本計画で提案されている地球観測 専用の航空機の導入が実現すれば、大気微量ガス・エアロゾルの動態・発生源の把握 や陸面・海洋との相互作用や気候・気象との関連について、地上や人工衛星のプラッ トフォームでは得られないデータの取得が大きく進むと期待される。なお、本計画で は、名古屋大学宇宙地球環境研究所の飛翔体観測推進センターが共同利用・運用の中 核となる形が提案されている。また、本計画に関連して、日本気象学会で「航空機観 測による気候・地球システム科学システムの推進研究計画書」が報告書としてまとめ られている。引き続き関係する学術機関・団体と協力し、地球観測航空機の導入に向 けた検討を継続することが望まれる。

CONTRAIL (Comprehensive Observation Network for Trace gases by AIrLiner)プロジ ェクトでは、民間定期航空機を利用した CO<sub>2</sub> 濃度連続測定が行われており、国立の研究 機関が民間の事業者と連携した航空機観測も大気化学研究の強力な手段となっている。 航空機の利用に加え、ドローンなど他の飛翔体の利用においても大気化学研究におけ る民間のプラットフォームの活用について検討する価値がある。なお、民間との連携 においては、民間側の厚意に依存する側面もあるため、安定的で基盤的な観測体制の 確立について留意する必要がある。東アジア域における近年の航空機観測には、米国 の NASA の研究プロジェクトである KORUS-AQ において米国と韓国の研究者の連携による 朝鮮半島南部付近を対象とする航空機観測研究などがある。アジア域における国際航 空機観測に対する日本からのコミットについても、強化していくことが望まれる。ま た、成層圏の観測においては大気球の利用が有効であり、持続的な観測体制の確立が 望まれるほか、成層圏通信プラットフォーム(HAPS)の開発状況も注視すべきものであ る。

船舶は、空間分布を把握する重要なプラットフォームであり、設置できる観測機器 の自由度は、積載量に厳しい制限のある航空機よりもはるかに大きい。観測域が海洋 上に限られるが、地上観測ではカバーできない領域を観測できる重要なプラットフォ ームである。海洋域に特有の化学的プロセスを対象とする研究を行う上においても、 船舶観測は重要である。さらに極域の大気環境の把握においても重要なプラットフォ ームである。これまで、学術研究船白鳳丸/新青丸・海洋地球研究船みらいなどを利 用した大気化学分野の観測研究が行われており、日本の海洋大気観測の環境は比較的 に恵まれていると言える。しかしながら、大気化学観測を対象とするプロジェクトは 必ずしも豊富とは言えず、大気化学分野が船舶観測を主導する余地はまだ十分にある。

その外、微量気体の観測において民間の船舶の利用実績があり、今後も民間の観測協 力船の活用を進めることも重要である。2026 年度の竣工へ向け現在建造中である北極 域研究船では、大気組成の基礎的な成分を常時計測する計画で、海洋研究開発機構を 起点とし、持ち込み機材を加えた総合的な国内・国際協同観測を推進すべきである。 また、将来の南極観測船しらせの後継船などの議論も継続することが重要である。

地上観測網は、長期モニタリングと、先端的計測機器を用いる大気プロセスを対象 とする集中観測の両方にとって重要なプラットフォームである(図5)。長期モニタリ ングのプラットフォームとしては、国立環境研究所の辺戸岬大気・エアロゾル観測ス テーションや千葉大学が代表機関として維持する福江島大気環境観測施設、金沢大学 の能登スーパーサイトなどの研究拠点の外、気象庁の全球大気監視観測所、環境省に よる大気汚染物質の常時監視のネットワークや、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリ ングが挙げられ、今後の継続が望まれる。特に、島嶼・沿岸部においてアジア大陸か らの汚染物質のアウトフローの長期観測において大気化学分野における大きな実績が あり、今後の維持発展が強く望まれる。国内の施設は、例えば、韓国のスーパーサイ トの設備・施設の充実ぶりと比較すると大きく見劣りする場合もあり、欧米研究者を 招いて国際共同観測研究を行う際の障壁ともなっている。また、エアロゾルの個数濃 度や粒径に関わる地上観測の体制はまだ乏しく、エアロゾルの気候影響評価などへの 貢献を視野に、今後の拡充が望まれる。



図5 国内の地上観測サイト(赤:気象庁、青・灰色:研究コミュニティ及び研究所 が維持するスーパーサイトと観測点、緑:リモートセンシング計測点。背景の塗りは衛星 TROPOMIによる対流圏 NO<sub>2</sub>カラム濃度(排出量の分布が読み取れる)、等高線はデータ同化 TCR-2による典型的な春季の地表付近オゾン濃度分布)

(出典) IGAC 小委員会にて作成

研究プラットフォームの整備は大気観測において必要であるだけでなく、大気化学 の素過程を理解するための室内実験研究においても、その整備が求められる。特に、 大型の反応チャンバ(反応槽)は、気体成分やエアロゾルの化学的変質を追跡する実 験において強力なツールとなる。国立環境研究所にあるスモッグチャンバは、日本の チャンバ実験の中心的なプラットフォームとして多くの成果を挙げてきた。チャンバ やそれに付随する計測装置の維持管理を個人研究者レベルで行うことは負担が過大で あり、効率的とは言い難いことから、今後のプロセス研究の継続と発展に向け、大気 化学のコミュニティとして反応実験のプラットフォームの維持や発展について検討す ることが望まれる。特に、化学反応を追跡するチャンバの利用だけでなく、氷晶核等 に関わるテーマについて、雲チャンバを用いる実験のプラットフォームを大気化学研 究と結び付けることについて検討が望まれる。また、大気中の新粒子生成の課題は大 気微量成分が関わりガス・エアロゾルにまたがる重要残存課題であるが、その機構に 関する研究は欧州原子核研究機構(CERN)における CLOUD 実験の独走状態にある。この ような海外の先端実験研究にコミットすること、また、室内実験研究を日本が主導す るための独自の実験プラットフォームについて検討することも望まれる。

計算機は、大気化学分野で広く行われているモデルシミュレーションにおいて必須 となる研究資源である。大気化学シミュレーションは気象・気候モデルと結合したオ ンラインモデルと、気象・気候モデルの計算結果を入力データとして取り込むオフラ インモデルとに大別され、前者の場合は予報変数の数が飛躍的に増加するため CPU 資源 及びメモリ使用量が非常に増加し、後者の場合はそれらに加えて、ストレージ資源及 び I/0 通信量が顕著に増加することになる。データファイルを転送する負担も大きいた め、オンプレミスあるいはプライベートクラウドのサーバが使われることが多い。オ ンプレミス、すなわち、使用者が管理している施設内に機器を設置して運用する形式 のサーバとしては理化学研究所の富岳、海洋研究開発機構の地球シミュレータ、各機 関の大型計算機があるが、今後は、パブリッククラウドサーバや仮想サーバの利用へ と選択肢が広がる可能性もある。現在は、実機から実機以外の解析手法への過渡期に あると考えることもでき、計算機性能や利用可能資源の発展に伴い、それらを活かし た大気化学研究を積極的に提案・推進していくことが望まれる。現状では、大気シミ ュレーションはベクトル型あるいはスカラー型のコンベンショナルな CPU を搭載した大 型並列計算機に大きく依存している一方、昨今その技術進歩が著しい機械学習計算用 の GPU を搭載した汎用機が充実するようになった。今後は、これまでのような著しい CPU 性能の向上は難しいと考えられており、GPU を活用した効率的な並列処理による高

速化も視野に入れる必要がある。GPU の活用においては旧来の物理化学モデル計算を GPU 向けに移植するだけでなく、機械学習を大気化学シミュレーションに活用する手法

(いわゆる代理モデリング)についても技術開発が必要となるはずである。大気化学 シミュレーションにおける目的と計算方法に応じて、今後どういった計算機資源が必 要あるいは利用可能か整理することが求められる。

### (2) 研究データの整備と利用

近年、学術雑誌上での論文発表時に使用したデータの公開が求められることが一般 的となり、研究者間相互でデータ利用を推進する土壌が整いつつある。しかし、大気 化学に関わる観測データの見える化は必ずしもシステマティックに行われているとは いえず、研究者個人による努力や模索が求められる現状にある。PANGAEA などのデータ リポジトリが整備される中、日本からデータ公開・利用にどのように貢献するかを考 える必要がある。大気化学分野では多数の変数が利用対象となる上、今後、データの 高解像度化が更に進むと見込まれ、サイズの大きなデータを安定的に公開しDOIを付与 できる仕組みの整備について検討することが望まれる。このため、世界資料センター (WDC)の1つである温室効果ガス世界資料センター(WDCGG)や国立極地研究所のADS な どの既存の取組との連携を含め、データの収集・保管・配布に関する議論を進めるこ とが望まれる。日本での大気化学観測データ全体のポータルを整備する、あるいは一 元化する取組や、大気化学分野のニーズを取り込んだ、新たな取組について検討する ことが望まれる。これらの大気観測データの利用を推進する上で、測定手法の標準化 を進めることも重要である。この点においては、先端的な計測を中心に、標準化がそ ぐわない観測データをどのように収集しまとめるかを検討することも求められる。

気象データの再解析データや排出インベントリは、海外の取組を中心に長くデータ の共有が行われており、大気モデル研究等における重要な資源となっている。実験・ 観測とモデル研究を結び付けるこれらの研究資源の維持・発展は、今後も引き続き重 要となる。気象データとしては日本の気象庁、欧州中期気象予報センター(ECMWF)や 米国の国立環境予測センター(NCEP)が提供する再解析データがある外、微量化学成分 の情報を含むデータとしてアメリカ航空宇宙局(NASA)が提供する MERRA-2 がある。ま た日本においても、エアロゾル版再解析プロダクト(JRAero)や第2世代化学再解析デ ータセット(TCR-2)の取組があり、微量成分の情報を取り入れたデータの更なる拡充 が望まれる。これらの再解析の進展に伴い、微量成分の再解析データを整備し一元化 する取組についても検討が望まれる。排出インベントリに関しては、日本ではアジア 域の大気汚染・気候変動関連物質の排出インベントリの開発に実績があり、今後もア ジア域のインベントリ開発や、排出削減施策の指針提供への貢献が強く期待される。

データサイエンスに対する学術分野からの投資は、今後更に大きくなっていくこと が考えられる。大気化学は大きなデータを扱う学問分野の1つとはいえ、データサイ エンスとの連携により、新しい角度からの大気化学の発展に結び付く可能性がある。

人工知能のアプローチを用いる大気化学研究はまだ黎明期にあると考えられるが、今後の発展が大いに期待される手法である。一例として海外では、モデルの全球 OH ラジカル変動に深層学習を適用し、変動要因を解析する取組が報告されている。現状のデータアーカイブの仕組みをどのように整え、ビッグデータに関する基盤整備を進めるかは、機械学習などの人工知能の手法の利用を進める上で検討する必要がある。

### (3) 人材育成

日本における大気化学の継続的な発展には、それを支える人材の育成に関わる課題 を整理し、その改善を図ることも重要である。中等教育では、大気化学の基礎となる 化学・物理に関する学習の機会が得られる一方、大気化学が関わる気候変動・大気質 のトピックスを含む地学の学習機会は、大学受験科目の関係などから、外の理科科目 と比較して格段に少ないと考えられる。高校での地学教育に対する学術コミュニティ からの支援強化や、高校地学の学習経験が乏しい学生に配慮した大学学部授業の整備 により、地球科学教育における高校・大学間の接続を整えることが望まれる。中等教 育機関においては、SDGs などを念頭に、グローバルな視点での環境問題・社会課題解 決能力を備えた次世代の人材育成に力を入れており、当分野からも積極的な貢献を行 うべきである。また、高等教育における大気化学の教育は、大学院における取組が主 流であると考えられ、学士課程で取り上げられる機会は少ないと思われる。学部授業 で扱いやすい教材の拡充など、学部教育の支援を通して、大気化学に対する学生の興 味を惹きつける取組を考える余地がある。大学院における大気化学系の研究室では、 地球環境問題などに興味を持つ、化学・物理一般のバックグラウンドを持つ学生を広 く受け入れており、地球科学の専門に限らず幅広い専門性を活かすことができる学問 分野であることは強みといえる。また、地球温暖化や大気汚染などで改善指標となる 物質濃度のデータを取り扱い、効果的な削減策を提示するなど、社会課題の根本的な 解決に直結する知識を創出しうることなどを広くアピールすることが望まれる。国立 研究機関においては、研究者が連携教員などの立場で高等教育の支援を行っており、 これらの研究機関の豊富な研究資源を有効に活用することで、大学における人材育成 を大幅に充実させられる可能性がある。

大気化学を学んだ学生の学位取得後の進路として、国立環境研究所などを中心に若 手向けのポストの公募があり、学位を取得して間もない若手研究者を取り巻く就職状 況は悪いとは言えない。ただし、他の学術分野と同様に、パーマネントポストの獲得 は容易とはいえず、任期付きのポストを続けてパーマネントポストやテニュアトラッ クポスト(審査後にパーマネントへ移行できるポスト)への採択を目指す状況にある。 大学においては、外部資金で雇用されるポストドクトラル研究員(以下「ポスドク」 という。)に加え、若手のポストとしてテニュアトラック教員や任期付き教員のポスト があるが、多くの募集で関連分野との競合があると考えられ、大気化学分野の優秀な 若手人材の輩出が大学における大気化学教育の継続・発展の大きな鍵となる。なお、 大気化学分野に限らず日本の学術界の課題として、ポスト獲得の競争に見合う待遇や

異なるキャリアへの再挑戦の機会が不十分で、学術研究職が若手にとって魅力的な選 択肢になっていない懸念がある。また、日本の名目・実質賃金が伸び悩む中、大学や 研究所を問わず、ポスドクを含む研究職の待遇が国際的な競争力を失い、海外の優秀 な若手人材の呼び込みを阻害している可能性も考えられる。政府の若手支援策などに より当該分野の就業を取り巻く状況が改善していくのか、今後注視していく必要があ る。

大気化学に関わる製造業や産業界との接点は多いとは言えず、より接点のある分野 の取組などを参考に、計測手法開発やコンサルティング業などに繋がり得る連携を考 えることは、大気化学研究の強化に資するだけでなく、多様なキャリアパスの形成や、 産学の人材交流の視点からも考慮する価値がある。大気化学の専門性を有した人材を 民間や社会に輩出することは、当分野からの社会還元にも位置付けられる。地球環境 のデータサイエンス利用には期待が高く、大気組成の衛星観測データの Google Earth Engine での利用などを通じ、産業界や隣接分野の専門家にも浸透させることは、広い意 味での人材確保に結び付くだろう。男女共同参画の推進は、大気化学分野の就業にお ける重要な課題の1つであり、日本大気化学会では運営側に立つ女性比率を積極的に 高めているほか、日本大気化学会における男女共同参画・人材育成委員会では、研究 集会中の保育支援や女性会員を対象とした交流企画を実施するとともに、国内外の次 世代を担う若手人材への積極的な支援や働きかけを行っている。

大気化学は地球全体の大気を対象とし、地球温暖化などの人類共通の課題を扱う学 問分野であることから、海外の研究者と研究対象を共有し、国際的な交流に結び付け やすい分野だと考えられる。この利点を活かし、人材交流に基づく国際的な人材育成 を進める余地がある。日本の大気化学研究の推進のためだけでなく、国内の若手研究 者を育成する機会としても、国際共同研究の積極的な展開が望まれる。また、海外の 若手研究者の育成に貢献していくことも、世界の中の日本の学術コミュニティとして の重要な務めである。2018 年に高松で開催された iCACGP-IGAC 2018 国際会議における 若手向けのショートコースの取組など、海外の学生・若手研究者を対象とするスクー ル等の取組を参考に、国内の大気化学コミュニティへも波及させるべきである。国内 の共同利用研究所などが主導して海外の若手を招くなどの取組により、将来の国際交 流に繋げていくことが期待される。

### <用語の解説>

\*1 温室効果気体(GHGs):地球が黒体として放射する赤外線を吸収して再び放射する性質 をもつことで、大気中濃度の増加が地球温暖化に寄与する気体の総称。二酸化炭素・メタ ン・一酸化二窒素、ハロカーボン類、オゾンなどが含まれる。Greenhouse Gases の略。

\*2 短寿命気候強制因子(SLCFs):およそ 20 年以下の大気中寿命(滞在時間)をもつガス成 分・粒子のことで、直接的あるいは間接的に(化学反応を経て)地球の放射収支に影響を 与える物質のこと。メタン、ハロゲン化合物、オゾン、窒素酸化物、二酸化硫黄、一酸化 炭素、揮発性有機化合物、アンモニア、エアロゾル粒子では、ブラックカーボン、有機エ アロゾル、硝酸・硫酸・アンモニウム塩、鉱物ダスト、海塩粒子などを指し、ほぼすべて の大気汚染物質類が含まれる。SLCFs は Short-lived Climate Forcers の略。

\*3 PM<sub>2.5</sub>: 2.5µm 以下のサイズの空気中のエアロゾル粒子のことで、微小粒子状物質とも 呼ばれる。気道の奥にまで入り込みやすいために、呼吸器疾患などの健康被害を引き起こ す。主な化学成分としては、硫酸塩、アンモニウム塩、有機物、ブラックカーボンなど。

\*4 オゾン:成層圏オゾン、対流圏オゾンのように、大気中の存在高度で区別されて呼ば れる。成層圏オゾンはオゾン層としても知られ、有害な紫外線が地表に降り注ぐことを防 ぐ役割をもつ。対流圏オゾンは、光化学オキシダントの主成分であり、人間の健康影響だ けでなく森林の光合成機能や農作物の収量の低下をもたらす大気汚染物質である。また同 時に、赤外線等を吸収するため第3の温室効果ガスとして地球温暖化に寄与している。

\*5 地球大気化学国際協同研究計画(International Global Atmospheric Chemistry: IGAC): IUGG-IAMAS(\*40 参照)傘下の iCACGP と、FE(\*6 参照)を母体とする、地球大気化学に関する グローバル研究プロジェクト(GRP)。

\*6 大気化学と地球汚染に関するコミッション(International Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution: iCACGP): IUGG-IAMAS 傘下のコミッションの1つ。以前は CACGP と呼ばれていた。

\*7 フューチャー・アース(Future Earth:FE):持続可能な社会への転換をめざす、地球環境研究・サステイナビリティ科学の国際的研究プラットフォーム。旧地球圏・生物圏国際協同研究計画(International Geosphere-Biosphere Programme: IGBP)、地球環境変化の人間的側面国際研究計画(International Human Dimension Programme on Global Environmental Change: IHDP)、生物多様性科学国際協同計画(International Programme on Biodiversity Science: DIVERSITAS)が合流して2013年に発足。

\*8 エアロゾル:大気中に浮遊する液体または固体の粒子と周囲の気体の混合体のこと。 IPCC報告書などでは、その粒子(エアロゾル粒子)のことを指す場合もある。PM25はエア ロゾル粒子の一部である。

\*9 オゾン層破壊物質(ODSs):クロロフルオロカーボン、四塩化炭素、1,1,1-トリクロロ エタンや代替フロン類、ハロン、塩化メチル、臭化メチル、極短寿命ガスなど、光化学反 応を経て成層圏オゾン破壊に寄与する物質の総称。Ozone-Depleting Substancesの略。

\*10 自然の巧妙な酸化能:対流圏大気中にはごく少量(1 pptv(体積混合比1兆分の1)以下)、反応性が極めて高いOH ラジカルが存在し、メタン・窒素酸化物・一酸化炭素・二酸化硫黄など、多くの成分と反応して酸化・除去を開始し、それぞれの物質の大気中寿命を決定づけている。他に、NO<sub>3</sub> ラジカルなども存在するが、主に、OH ラジカルが酸化能を支配していると考えられている。その大気中の濃度は長期にわたり自然システムの中でほぼ一定に保たれ、また人間活動による摂動が加わっても変化は±10%以内に収まっていると考えられ、大気化学反応メカニズムがもつ巧妙な側面と捉えられる。

\*11 地球システム:地球を構成する大気圏、水圏、固体地球圏、生物圏(サブシステムと 呼ぶ)や、それらの間の相互作用などを含めて統合的に扱い、組織化された複雑系として の地球の全体的な振る舞いを明らかにしようとする捉え方。地球統合システムとも呼ばれ る。

\*12 学際:学問の一専門領域と、隣接する領域との間を指す。異なる学問分野が横断的に協業して研究する活動を学際研究と呼ぶ。

\*13 超学際連携:科学各分野の協力である学際を超えた概念で、学術と社会の間の垣根を こえて、社会のさまざまなステークホルダー(利害関係者)が連携して取り組む活動。

\*14 OH ラジカル:メタンや多くの大気汚染物質を分解させる大気中の超微量物質。オゾン や二次的なエアロゾル粒子の生成にも深く関与する。その場の大気中の OH ラジカル濃度 の計測は可能となったが、時空間変動が大きく、全球的な存在量や分布などは直接観測か らは情報が得られておらず、大気化学研究の心臓部でありながら、ブラックボックスとな っており、今後の研究が必要である。酸化能(\*10)の記述も参照。

\*15 WCRP (World Climate Research Programme、世界気候研究計画):世界気象機関 (WMO)、 国際学術会議 (ISC) 及び政府間海洋学委員会 (IOC) のもとで行われている、気候変動予 測及び人間活動が気候に及ぼす影響の研究を行うプログラム。

\*16 含多酸素有機化合物 HOMs: 大気中に存在する有機過酸化ラジカル RO2の自動酸化反応

の繰り返しによって、分子内にヒドロペルオキシド基-00H が複数個存在するようになった物質のことで、エアロゾル粒子の生成、特に、新粒子の成長に寄与していると考えられている。

\*17 バイオ粒子:生物起源一次粒子のことで、花粉や胞子、真菌、細菌からウイルスなどの総称。生死を問わず、破片や滲出物なども含む。バイオエアロゾル粒子とも呼ばれる。

\*18 データ同化:シミュレーションを実際の観測データとつきあわせ、シミュレーション の軌道を修正して「確からしさ」を高める手法。気象だけでなく化学物質などにも応用範 囲が広がっている。

\*19多相化学:気相・液相・固相やその界面など、複数の相の存在により引き起こされる 化学プロセスのこと。

\*20 フィードバック:地球システムのある変化(例えば地球温暖化)が、それによって引き起こされる、システム内の別の変化によって強められたり弱められたりすること。

\*21 Global Carbon Project (GCP): 世界の温室効果ガス排出量とその原因を定量化する ことを目的とした組織で、CO<sub>2</sub>,メタン、N<sub>2</sub>Oの収支評価を定期的に報告している。フュー チャー・アースのグローバル研究プロジェクトの1つであり、WCRPの研究パートナーで ある。

\*22 不均一反応:2種の相の共存下で進む反応のこと。大気化学では特に、気相とエアロ ゾル・雲粒子の境界、あるいは気相と地表面・海表面・雪氷面の境界で起こる反応のこと を指すことが多い。

\*23 二次生成エアロゾル:ガスを原料とし、大気中の化学反応や熱力学的平衡によって二次的に生成するエアロゾル粒子のこと。有機物や硝酸塩・硫酸塩・アンモニウム塩の生成が代表例。

\*24 界面:気液・固液界面など、物質の密度分布のミクロな偏りなどの影響で、大気化学的視点でも特有の反応が起こる場のこと。

\*25 HFC 類: ハイドロフルオロカーボン類。代替フロンの一種で、塩素原子を含まないためオゾン層を破壊しないが、強力な温室効果を持つ。

\*26 残余カーボンバジェット:カーボンバジェットは、地球温暖化による気温上昇をある 目標水準(1.5℃など)までに抑えようとする場合に、許容される CO<sub>2</sub>の累積排出量(過去 と今後)の上限のこと。残余カーボンバジェットは、そのうち今後に許容される上限値の こと。

\*27 惑星の許容限界:プラネタリー・バウンダリーとも呼ばれ、人類が生存できる安全な 活動領域と限界点を、9つの指標プロセスについて表現したもの。生物地球化学的循環 (リン・窒素)についてはすでに限界を超えているとされている。成層圏オゾン層破壊、 大気エアロゾル負荷、気候変動なども指標プロセスとなっている。

\*28 窒素酸化物:一酸化窒素(NO)、二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)から成る NOx のこと。

\*29 DPSIR: Driver(根本原因) - Pressure(負荷) - State(状態) - Impact(影響) -Response(対策や対応)の頭文字をとったもので、環境問題一般に適用される、因果と対処のフレームワーク。欧州環境機構により1999年に構築され、広まった。

\*30 ESG (環境・社会・ガバナンス)活動:環境や社会、ガバナンスに対する企業取組の こと。持続可能な未来社会への貢献度が、業績や財務状況と合わせて企業の評価に重要と なっており、CO<sub>2</sub>排出量削減や大気汚染軽減なども指標となる。

\*31 TCFD(気候関連財務情報開示タスクフォース)報告書:金融安定理事会(FSB)により 設置された気候関連財務情報開示タスクフォース(TCFD)が推奨する年次の財務報告書で、 財務に影響のある気候関連情報(気候変動のリスクと機会)を開示したもののこと。脱炭 素を目指す社会の仕組みの一環と捉えられる。環境省も賛同し、民間の取組をサポートし ている。

\*32 劣決定問題:得られる計測データ数mに対して、未知パラメータnが多く、連立方程 式の逆問題で一意に解が得られない問題のこと。

\*33 同位体情報の高度な利用:例えば、ある分子がもつ2種の起源の寄与割合を調べたい 場合に、2種の起源が異なる固有の同位体組成をもっていれば、同分子の同位体比を計測 すれば、劣決定問題は解決し、求めたい起源寄与割合の情報が得られる(同位体により化 学的挙動は変化しないとする)。

\*34 CMIP 結合モデル相互比較: IPCC 報告書での気候シミュレーションのアンサンブル評価 のために WCRP がコーディネートし、世界の数十のグループが協調して取り組む、大規模 な相互比較モデル実験のこと。全球気候モデルに生態系・物質循環を結合した地球システ ムモデルも参加する。IPCC AR6 用の CMIP6 では、21 種のモデル相互比較実験(MIP) が公式 選定された。CO<sub>2</sub>を扱う MIP に加え、大気化学やエアロゾルに焦点を当てた AerChemMIP な ども含まれる。 \*35 地球システムモデル:大気・海洋・陸域における物理現象を中心に取り扱う気候モデルを核とし、炭素や微量成分の地球表層物質循環や生態系を統合したモデルのこと。

\*36 生物起源揮発性有機化合物 BVOC 類:陸上や海洋の生態系から大気へ放出される、揮 発性有機ガスの総称。炭素数 5, 10の炭化水素であるイソプレンやモノテルペン類が代表 例。Biogenic Volatile Organic Compoundsの略。

\*37 排出インベントリ:大気汚染物質や温室効果ガスが、地域や国・自治体などの単位で、 どのような経済活動部門から、あるいは自然界のメカニズムによって、大気中へ排出(放 出)されているか、社会経済統計情報等をもとに集計されたもの。大気化学輸送モデルの 重要な入力データとなる。

\*38 費用対便益の評価:地球温暖化や大気汚染の対策の優先順位や有効性を調べるために、 対策ごとに、緩和されるダメージコストや他の経済的便益と、対策に要する費用との比に より評価すること。

\*39 当分野の全球衛星観測:例えば、大気汚染ガスである二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)の TROPOMI セン サによる衛星観測では全球を毎日 5.5×3.5km の解像度で計測している。新型コロナの蔓 延防止のためのロックダウンにより経済活動が低下(運輸部門等)した際には、どの地域で 影響が出ているかが、こうした衛星画像から一目瞭然となり、大気組成の衛星観測の有効 性が浮き彫りとなった。

例 : https://www.esa.int/Applications/Observing\_the\_Earth/Copernicus/Sentinel-5P/COVID-19\_nitrogen\_dioxide\_over\_China

\*40 国際測地学・地球物理学連合 (IUGG: International Union of Geodesy and Geophysics): IUGG は国際学術会議 (ISC) の加盟団体の1つであり、下部組織として国際 気象学・大気科学協会 (International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences, IAMAS) が含まれる。

\*41 Global Research Project (GRP): フューチャー・アース傘下の、IGAC を含む 19 のプ ロジェクトのこと。

\*42 SOLAS (Surface Ocean-Lower Atmosphere Study): 海洋・大気間の物質相互作用研究計 画のことで、IGAC と同様にフューチャー・アース傘下のグローバル研究プロジェクトの1 つである。

\*43 iLEAPS(Integrated Land Ecosystem-Atmosphere Processes Study):統合陸域生態系—

大気プロセス研究計画のことで、IGAC と同様にフューチャー・アース傘下のグローバル 研究プロジェクトの1つである。

\*44 GAW (Global Atmosphere Watch) Programme:世界気象機関 WMO が各国気象機関や研究 機関の協力を得て実施している、大気化学・地球環境に関する地球規模の観測プログラム。

\*45 温室効果ガス世界資料センター(World Data Centre for Greenhouse Gases: WDCGG): 世界気象機関(WMO)の全球大気監視(GAW)計画の下に設立された世界資料センター(WDC)の 1つで、気象庁において運営されている。大気や海洋で観測された温室効果ガス(CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CFCs, N<sub>2</sub>O など)と関連するガス(CO)のデータを収集・保管・配布している。(気象庁ウェ ブページ https://gaw.kishou.go.jp/jpより)

\*46 国連環境計画 (United Nations Environment Programme:UNEP):環境分野における国連 の主要な機関。国連システム内にあって持続可能な開発の取組の中で環境に関連した活動 を進めている。

\*47 Climate and Clean Air Coalition (CCAC): UNEP 等が 2012 年に発足させた、気候と大 気浄化の国際パートナーシップ。

\*48 International Methane Emissions Observatory (IMEO): 2021 年に G20 サミットで発足 した、UNEP 傘下のメタン排出の国際観測所のこと。研究レベルの観測データ、Methane Alert and Response System (MARS)からの衛星データ、産業界の報告書、国別の排出イン ベントリの間の整合性を図ることを目的としている。

\*49 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(the Acid Deposition Monitoring Network in East Asia: EANET): 2001 年に本格稼働した、東アジア地域における酸性雨の現状の把 握やその影響の解明に向けた地域協力の体制を構築することを目的としたネットワークで、 北東・東南アジアの 13 か国が参加する。日本環境衛生センター・アジア大気汚染研究セ ンター(新潟)が EANET の活動の技術的拠点であるネットワーク・センターに指定されて いる。

\*50 MICS-Asia (Model Inter-Comparison Study for Asia):アジアの大気環境に関する科学 的理解を深めるとともに、政策検討のための科学的共通認識を構築することを目的とし、 大気質モデル・化学気候モデルの精度向上を目指しているプロジェクト。 https://www.acap.asia/research-main/mics-asia/

\*51 Task Force on Hemispheric Transport on Air Pollution (TF HTAP): 国際連合欧州経 済委員会 (UNECE) の長距離越境大気汚染条約(LRTAP)のための、大気汚染の半球規模移動 に関するタスクフォースのこと。最近では HTAP\_v3 排出インベントリモザイクの作成や大気化学輸送モデルシミュレーションの相互比較などに取り組んでいる。 https://htap.org/

\*52 GEO (Group on Earth Observations): 地球観測に関する政府間会合で、100以上の各 国政府と国際機関の任意のパートナーシップ。GEOSS (\*53) も参照のこと。

\*53 CEOS (Committee on Earth Observation Satellites、地球観測衛星委員会):各国の宇 宙関連機関等が集まり、地球観測に関する標準、国際的な情報インフラ、将来的な開発や 協力に関わる構想を議論する委員会。

\*54 GEOSS (Global Earth Observation System of Systems):地球観測に関する政府間会合 (GEO)参加国・機関のボランタリーな貢献による、環境分野における国際条約義務の実 施を含む、社会における情報に基づく意志決定を支援する調整され統合された地球観測及 び情報システムのネットワークのこと。

(https://www.mext.go.jp/b\_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/035/shiryo/attach/1236367.htm より)

\*55 気候変動枠組み条約 (United Nations Framework Convention on Climate Change:UNFCCC): 1994 年に発効した、地球温暖化問題に関する国際的な枠組みを設定した 環境条約のこと。締約国会議はCOP と呼ばれ、2022 年には COP27 が開かれた。IPCC の評価 報告書などをもとに、国際的な取り決めを決定する場となる。

\*56 EGBCM (Expert Group on Black Carbon and Methane): 北極評議会のもとに設置された ブラックカーボン及びメタン専門家会合のことで、2015 年に採択した「強化されたブラ ック カーボンとメタンの排出削減: 北極評議会の行動枠組み」の実施を支援している。 隔年で進捗状況と推奨事項の概要を整理しレポートを発出している。

\*57 ブラックカーボン:エアロゾル粒子に含まれる「すす」粒子のことで、大気中で太陽 光を吸収し、雪氷表面に沈着して光反射率を弱めることによって、地球温暖化に寄与する 物質。

\*58 AMAP (Arctic Monitoring and Assessment Programme 北極圏監視評価プログラム):北 極評議会の6つの分野別作業部会の1つ。1991 年に設立され、北極域の汚染や気候変化 の問題について監視を行い、その状態を評価する報告書を発表している。 https://www.amap.no/

\*59 SPARC (Stratosphere -Troposphere Processes And their Role in Climate、成層圏対

流圏過程とその気候における役割):WCRPのコアプロジェクトの1つで、気候形成・変動における成層圏・対流圏及びその間の相互作用の役割解明を主眼においている。

\*60 揮発性有機化合物(VOC):人間活動や自然界から大気へ排出(放出)される、ガス状の有機化合物の総称。生物起源の VOC は BVOC と呼ばれる(\*36 参照)。近年では BVOC として主要なイソプレン(C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>)の人工衛星観測も直接的に実現され、大気化学研究のブレークスルーの1つとなっている。

## <参考資料>

## 別表 1-1. 長寿命気体テーマでのサマリー表 (出典)「大気化学の将来構想 2022-32」各論、https://jpsac.org/sp1/

1. 究極のゴールは何	・GHG や ODS の大気中濃度の変動要因を放出源や消失・吸収源の観点から定量的に理解し、循環メカニズムの理解にもとづいて正確な
カゝ。	将来予測を可能とすること
	・パリ協定やモントリオール議定書にもとづく国際社会の取組に対し、対象気体の放出起源や分布の情報を正確に提供し、実効的な排
	出削減策の立案に貢献すること
2. この 10 年での世界	・継続的に発展してきた大気観測、排出インベントリ、大気化学輸送モデル、陸域生態系モデルなどを活用し、トップダウン法とボト
的な動向や日本での	ムアップ法の統合比較解析が可能になり、そのための国際プロジェクトが組織されて日本の研究者も多く参加してきた
研究の強み	・日本の GHG 観測衛星である GOSAT/TANSO-FTS による CO <sub>2</sub> や CH <sub>4</sub> のカラム平均濃度のデータ処理・利用研究が大きく進展し、後続の国内
	外の衛星観測データも利用可能となって、衛星観測データを利用した地表面フラックスの推定研究も進展した
	・パリ協定の発効を受け、GHGの人為排出量を地域・都市域スケールで把握するための観測・モデル研究が盛んに行われている
	・GHG や ODS の放出源としてアジア地域の重要性が高まるなか、アジア地域の放出源変動を高感度に検出できる日本の観測データの価
	値は高く、継続的で高品質なデータ提供が求められている
	・日本国内の観測では、地上のみならず、大気球、航空機、船舶など、独自の観測プラットフォームが開発・維持されるとともに、
	GHG の循環解析に有効な関連トレーサーの観測も独自の技術開発にもとづいた成果が報告されている
	・大気化学輸送モデルや陸域生態系モデルが日本の複数の研究グループで独自に開発され、世界的にも高い認知度を得ている
3.現在の重要なギャ	・全球スケールでは大陸内陸部や熱帯地域の観測データが依然として不足しており、地域・都市域スケールではさらに高密度の観測デ
ップ	ータが期待されているが、高精度観測の維持や解析システムの整備、新たな観測の展開などには技術的・コスト的な課題が大きい
	・多様なプラットフォームによる観測データが飛躍的に増加しているが、統一的なデータの質の担保やデータを最大限活用するための
	モデルの高度化など、多様なデータを地表面フラックスの逆解析に十分に活用するための課題がある
4.それらを踏まえ、	・パリ協定やモントリオール議定書が機能しているかをどのように評価するか?どのような時空間密度・測定精度・観測プラットフォ
今後 10 年の研究をド	ームの観測データが必要なのか?多様な観測データを活用するためのモデル解析システムをどのように構築すべきか?
ライブする key	・気候変動、海洋酸性化、オゾン層破壊・回復などに伴って、海洋と陸域生態系の GHG と ODS の放出源・吸収源、大気化学反応はどの
question or 作業仮	ように変化するか?特に劇的な変動が起こりうる北極圏の湿地、永久凍土、森林火災がどのような影響を受けるのか?
説	
5. 主な連携相手	GCP、 RECCAP、 NOAA、 AGAGE、 IGAC

別表 1-2. 反応性気体テーマでのサマリー表 (出典)「大気化学の将来構想 2022-32」各論、https://jpsac.org/sp1/

1. 究極のゴールは何	・光化学反応・大気輸送・沈着等の諸プロセスを方程式で表現でき、排出量や境界条件が与えられれば、大気微量ガス成分群の濃度時
か。	間発展や収支を将来予測できること。各プロセスの役割を定量的に理解できること。
	・濃度変動の原因を排出量変化に結び付けて把握でき、フィードバックを含め各成分による短寿命気候強制因子 (SLCFs) としての気
	候変動への寄与や健康影響を定量化でき、緩和策を提案できること。
	・物理および化学等の法則に基づき、精度のよい化学天気予報を社会に発信できること。
2. この 10 年での世界	・世界的に、衛星観測や高精度現場観測・標準化が進展し、大気成分濃度情報の時空間的なカバレッジが大幅に向上し、観測と数値モ
的な動向や日本での	デルの統合化が進んだ。
研究の強み	・日本の強みとしては、東アジア広域オゾン・PM25大気汚染の原因把握、0Hラジカル反応性や不均一反応取り込み係数の評価、同位体
	などからのプロセス知見、複数の地球システムモデル開発、大気化学輸送モデルとデータ同化の進展、GOSAT 等で培った衛星観測解析
	技術、排出インベントリの高度化がある。
3.現在の重要なギャ	・大気化学の心臓部となる OH ラジカル反応系の理解不足
ップ	・オゾン化学の非線形性と生成速度制限因子の空間分布の理解不足
	・大気組成変化と排出との因果関係定量化、排出インベントリ/削減施策の迅速評価が不十分
	・向上した衛星観測でも高度分布情報(成層圏含む)、日変化情報が得られない
	・突発事象予測のための早期検出観測情報の不足
4.それらを踏まえ、	・OH 反応系の理解不足は亜硝酸、 ハロゲン類、不均一反応、揮発性有機化合物などで解消し、全球 OH 量推定における方法間のギャッ
今後 10 年の研究をド	プ(半球間勾配、 トレンド)は埋まるか?
ライブする key	・キロメートル級の水平分解能を備え、連続的な面分布を計測できる衛星観測システムや温室効果気体(GHG)-大気質(AQ)の統合解析
question or 作業仮	は、オゾン化学の非線形性・生成制限因子の把握や、重要な排出源の評価を格段に進展させるか?
説	<ul> <li>・地球温暖化による各物質へのフィードバック等の理解も向上させて、脱温暖化などの意思決定に科学エビデンスを与えられるか?</li> </ul>
	・数値モデルへのデータ同化の対象に、アンモニア、 VOC などを NOx 等に加え総合化すると、オゾン、 PM25予測等が向上するか(気
	侯変動・健康問題に加えて食糧問題へも知見を提供してゆけるか)?
	・大気化学と気象・地球システムとの相互作用の理解向上や、鍵となる観測情報の取り込みにより、化学天気予報・地球システム将来
	予測だけでなく、気象の現業数値予報モデルが向上でき、社会に有益な情報を与えられるか?
5. 主な連携相手	IGAC、 iCACGP、 COSPAR、 CEOS、 SPARC

1. 究極のゴールは何	・大気中で起こるすべての物理化学過程の理解。									
か。	・分子レベルの不均一性が与える溶媒効果や界面の特殊性を考慮した反応速度定数・取り込み係数・光学定数の導出。									
	・上記のデータをもとに、大気中で起こるすべて物理化学過程(エアロゾルに関しては、化学組成・揮発性分布・吸湿性・光学特性)									
	を計算によって再現・予測可能。									
2. この 10 年での世界	・世界的に、エアロゾルの生成につながる気相反応の理解が進んだ。									
的な動向や日本での	・界面を含む多相反応の重要性が認識されるようになった。									
研究の強み	・界面の性質を明らかにする実験装置や理論計算が発達した。									
	・日本では、物理化学をベースとしたオリジナルの研究成果が出ている。									
	・アジアの新興国の台頭と日本の地理的なメリット(共同研究や人材交流)。									
3. 現在の重要なギャ	・室内実験(シンプルな系かつ高濃度)と実大気(複雑な系かつ低濃度)のギャップ。									
ップ	・最終生成物の生成メカニズムを確定するための中間体の検出。									
	・エアロゾル成分の中で、どれだけの割合のものを分析でき、また正しく定量できているか。									
	・エアロゾルと雲の相互作用の理解が不十分。									
	・大気との間で物質移動がある海洋のマイクロレイヤーや氷雪が関与する反応が与える影響評価が不十分。									
	・界面現象は定性的にしか扱えず、定量化できていない(例えば界面における反応速度定数の非線形的増大)。									
4. それらを踏まえ、	<ul> <li>・計測機器の高感度化・多成分同時高時間分解能計測装置の精度の向上ができるか?</li> </ul>									
今後 10 年の研究をド	・酸化過程におけるモノマー・ダイマーの生成機構(特に HOM)や粒子相での化学反応過程を正しく理解できるか?									
ライブする key	・二次生成エアロゾルの生成収率は、鍵と考えられる要因(酸化剤・気温・湿度・既存粒子の量や性状)でどう(シンプルに)整理で									
question or 作業仮	きるか?他に見落としている要因はあるか?									
説	・エアロゾルの化学的変質過程をmicroscopic に捉えられないか?(具体例:光ピンセットで大気中のエアロゾルを捕捉、そのまま数									
	日キープして分光(Raman、 IR)測定。日中の OH 酸化、夜間の NO3酸化による成分変化の証拠が得られないか?)									
	・界面特有の現象の把握									
	・不均一性(複雑さ)・界面現象の定量化に向けたブレークスルーは何か?									
5. 主な連携相手	IGAC・分子科学会・有機合成化学									

別表 1-3. 物理化学テーマでのサマリー表 (出典)「大気化学の将来構想 2022-32」各論、https://jpsac.org/sp1/

## 別表 1-4. 大気陸域統合テーマでのサマリー表 (出典)「大気化学の将来構想 2022-32」各論、https://jpsac.org/sp1/

<ul> <li>た朝町し、地球環境変動に伴う収支を定量的に予測することで影響評価、遠応・緑和葉の立案に貢献する。         <ul> <li>・大気物質の洗剤・交換プロセンの理解を深め、現象をモデル化し、化学輸送でデルので利用原目トレン繋げる。             <ul></ul></li></ul></li></ul>	1. 究極のゴールは何	・長寿命気体、特に温室効果ガスの動態・交換量をマルチスケールで短期~長期にわたり高精度に把握する。交換の変化のメカニズム
<ul> <li>・大気物質の沈着・交換プロセスの理解を深め、現象なモデル化し、化学輸送モデルの予測結度向上へと繋げる。</li> <li>・股の、の加出機構やそれに及ぼす要因を、分子・細胞・組織・個体・群落の各レベルで明らかにし、BWC が介在する大気質や気候への影響を指明する。</li> <li>・大気、アロブルの収支における防硬生態系の影響を定量的に把握し、その将来予測を可能とする。また、これをエアロブルの気候影響や気候と植生の関係から理解する。</li> <li>2.この10年での世界</li> <li>・地上・衛星による戦調アーク量の飛躍的た増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地 防な動向や日本での</li> <li>・地上・衛星による戦海アーク量の飛躍的た増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地 地気の強み</li> <li>・地上・衛星による戦海アーク量の飛躍的た増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測でシータや、大気輸送・地 地気の強み</li> <li>・地上・衛星による戦力能による様々な化学成分・北着表面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速 度の不確実性が大きい成分・表面などが明らかいなった。</li> <li>・植物間コミュニケーション、放出の規境応答等の分子へ生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進度、日本で 土地数字、都市港地に関するBWC 研究が追視した。</li> <li>・自動輸化による高次に酸化された有機分子(HOBs)の生成など、本参起調二次有機エアロブル(BSQA)の生成皮糖体の理解が向上、分 子トレーサーク析や発光測定に基づくペイオエアロブルが完に進展、日本ではBSQAに関わる当時大襲・野外観測での貢献、</li> <li>3.現在の重要なギャ</li> <li>・温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖難が大きい、繊細イレンペントリアレタイム測定装飾野が向黒かっ見いて、 ・「福祉間」を認ったります。</li> <li>・他物問二キュニシーション、放出の規境応若等の行法に進長した。</li> <li>・自動輸化によるなたず目を自たの注意、日本ではBSQAに関わる当際大動・野外観測での貢献、</li> <li>・予ルレーサーク板や音光測定に基づくペルム・エアロブルの研究に進展、日本ではBSQAに関わる当戦手が効果の理解が消し、分 子レーサーク析や音光測定に基づくペルスエアロブルの状に出たりとい、(BSQA)の生成が確実の理解が消し、 クモレーサンの作業と加定を、それらの推定の手段となる常星観測手法の通見等が近く外のの輸送・洗着シミュレーションの精緻化への貢献、</li> <li>・BSQAのの電力職・報行の定なと大気で下か見な数な分野でない。</li> <li>・BSQAの少数備が急速度の作品であり、それらの推定の予想を分析ではなる取り組みが差しい。</li> <li>・1000-mEUD別小の支援してデル・対応取り組みが差しい。</li> <li>・01-施品の物質領域等とく気をでバスト間もたいける取り組みが差しい。</li> <li>・01-施品の物質領域等とく気を行びたられ取り組みが差しい。</li> <li>・24-50-52</li> <li>・44-53-52</li> <li>・45-53-54</li> <li>・45-53-54</li> <li>・55-54</li> <li>・5</li></ul>	カゝ。	を解明し、地球環境変動に伴う収支を定量的に予測することで影響評価、適応・緩和策の立案に貢献する。
<ul> <li>BDC の放出機構やそれに及ぼす要因を、分子・細胞・組織・個体・群落の各レベルで明らかにし、BDC が介在する大気質や気候への影響を解明する。</li> <li>・大気エアロブルの収支に対する陸城生態系の影響を定量的に把握し、その将来予測を可能とする。また、これをエアロブルの気候影響や気動でも大気なアロブルの収支に対する陸城生態系の影響を定量的に把握し、その将来予測を可能とする。また、これをエアロブルの気候影響や気動でも大気なかり、</li> <li>2. この 10 年での世界</li> <li>・地上・衛元による戦調データ量の飛躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地 上物質循環モデルによる収支推定で貢献、iLENS が実施され、国内でも大気単敏間の物質交換に関する学際的な研究が活性化した。</li> <li>・他が質循環モデルによる収支推定で貢献、iLENS が実施され、国内でも大気単敏間の効質交換に関する学際的な研究が活性化した。</li> <li>・他が簡相でよったの手続ないた有機分子(初始の)の生成など、生物起源二次有機エアロブルの後部・比較が行われた。法者速度の不確実性が大きい成分・法素面に対するクラーシーないの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展した。</li> <li>・植物間にミュニテレーション人放出の環境応定等か分子・生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展しまで</li> <li>・目動能化による高次に酸化された有機分子(初始の)の生成など、生物起源二次有機エアロブル (BS04)の生成増して、モデル相互比較の活が必要、</li> <li>・見かの化によるかのモニタリンノグ体制の拡充が必要、</li> <li>・調査の東方がたち酸しされた有機分子(初始の)の生成など、生物起源二次有機エアロブル (BS04)の生成増使の理解が向上、分子レーサー分析や電光測定に基づくパオエアロブル研究に進展。日本では IS04 に関わる室内実験 オペントに伴う</li> <li>* 27</li> <li>* 温室効果ガスに関して、モデル相互比較の活動を取ったがの一般</li> <li>* 28</li> <li>* 28</li> <li>* 27</li> <li>* 28</li> <li>* 28</li> <li>* 27</li> <li>* 28</li> <li>* 28</li> <li>* 29</li> <li>* 28</li> <li>* 29</li> <li>* 20</li> <li>* 20</li> <li>* 29</li> <li>* 29</li> <li>* 29</li> <li>* 29</li> <li>* 29</li> <li>* 20</li> <li>* 29</li> <li>* 29</li> <li>* 20</li> <li>* 20</li> <li>* 20</li> <li>* 29</li> <li>* 20</li> <li>* 40</li> <li>* 20</li> <li>* 20</li> <li>* 40</li> <li>* 40<th></th><th>・大気物質の沈着・交換プロセスの理解を深め、現象をモデル化し、化学輸送モデルの予測精度向上へと繋げる。</th></li></ul>		・大気物質の沈着・交換プロセスの理解を深め、現象をモデル化し、化学輸送モデルの予測精度向上へと繋げる。
<ul> <li>○と整を解明する。         <ul> <li>・大気エアロゾルの取支に対する陸城生籠系の影響を定量的に把握し、その特米予測を可能とする。また、これをエアロゾルの気候影響を欠気と植たの関係から理解する。</li> <li>この10年での世界             <ul></ul></li></ul></li></ul>		・BVOCの放出機構やそれに及ぼす要因を、分子・細胞・組織・個体・群落の各レベルで明らかにし、BVOCが介在する大気質や気候へ
<ul> <li>・大気エアログルの収支に対する陸城生態系の影響を定量的に把握し、その将米予測を可能とする。また、これをエアログルの気候影響や気候と植生の関係から興幹する。</li> <li>2. この10年での世界</li> <li>・地上・衛星による観測データ量の飛躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地上物質循環モデルによる収支推定で貢献。LLANS が実施され、国内でも大気/普域前の物質交換に関力を学院的な研究が活性化した。</li> <li>・今世紀にくり、新技術による限々な化学成分・注着美面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。だか 通称問コニュニケーション、放田の環境応客等の分子へ生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・音及が進展。日本で</li> <li>・植物間コミュニケーション、放田の環境応客等の分子へ生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・音及が進度。日本で</li> <li>・植物間コミュニケーション、放田の環境応客等の分子へ生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・音及が進度。日本で</li> <li>・植物間コミュニケーション、放田の環境応客等の分子へ生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・音及が進度。日本で</li> <li>・地世交 都市緑地に関する BWO 研究が進度した。</li> <li>・自動感化によこ高次に酸化された有機分子(HMM)の生成など、生物起源二次有機エアロゾル (ISOA)の生成爆構の理解が向上。分子トレーサー分析や蛍光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進度。日本では BSOA に関わる室内実験・野外観測での貢献。</li> <li>3. 現在の重要なギャップ</li> <li>* 温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インペントリにも深刻な不確実性、予測困難なイベントに伴う変がを把握すためのもこキクリング体制の拡充が必要。</li> <li>・加速効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インペントリにも深刻な不確実性、予測回撃なイベントに伴う 空がを把握すためのもエクリング体制の拡充が必要。</li> <li>* 認定の測定をしたのやロチリング体制の拡充が必要。</li> <li>* 認定の理解・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、総境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精健化への貢献</li> <li>* BMO の好所装置と気の支化が人間社会に与える繁響を理解する上を、BMOC やエアログルに関子る学が前的知見が不足しており、これのの生成が容易に取り見知の方気でない。</li> <li>* BMO の使用の拡張 BSOA 研究でない。</li> <li>* BMO の支援取るの手、再次の森林破壊、火気の反束取支への影響、大気汚染効響が温室効果ガス交換に与える影響、</li> <li>* ATA マルモ製造の有工・用水の森林破壊、火気の反束取支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響を建築の目上が、シスクロ単体の規研究化とモデルド制満着の回用となたちず。</li> <li>* Ata マルモ Ata Ata Ata Ata Ata Ata Ata Ata Ata Ata</li></ul>		の影響を解明する。
<ul> <li>              響や気候と植生の関係から理解する。             こつい10年での世界             が上・欲星にはる雑測データ量の滞躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地             かりた動したし、             かした。彼星にはる雑測データ量の洗濯的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・             ・             やもにした。             かりた動した。             かした。彼星にはる雑測データ量の洗濯的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・             ・             や</li></ul>		・大気エアロゾルの収支に対する陸域生態系の影響を定量的に把握し、その将来予測を可能とする。また、これをエアロゾルの気候影
<ul> <li>2. この10年での世界・地上・衛星による観測データ量の飛躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輪送・地 的な動向や日本での 研究の強み         が変簡縮展モデルによる収支推定で貢献、LILABS が実施され、国内でも大気、陸坡間の物質交換に関する学務的な研究が活性化した。 と物質循環モデルによる以支推定で貢献、LILABS が実施され、国内でも大気、陸坡間の物質交換に関する学務的な研究が活性化した。 た物質が構定したる構築なな化学成分・沈着表面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速 度の不確実性が大きい成分・裏面などが明らかれなった。         ・ ・ 相参問してよる高次に取りたいなった。         ・ 自動酸化による高次に酸化された有様分子(UMOs)の生成など、生物起源二次有機エアロゾル (BSOA)の生成機構の理解が向上。分 子トレーサー分析や蛍光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進展。日本ではBSOAに関わる室内実験・野外観測での貢献。         ・ 1 雪効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に本部離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性、予測困難なイベントに伴う 変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。         ・ ・ 北着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーション が着速度の可能。         ・ 1 密なの実力を若容易に広り創める分野でない。         ・ 1 形のの生成量、特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に 初用できるリシースが活用されていない。         ・ 1 ための知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。         4 それらを踏まえ、 今、10 施肥可効果及る主体での力は気楽を使力の必要素のまするに向けた利学のデータを提供のための取り組 が、光量のの周囲が広気装の有無、単来の素材検護・火気の炭素取支への影響、大気汚染効質が温室効果ガス交換に与える影響、 Alie Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得、 かど差、 4 それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。         4 それらの知見を社会実装に結びつける取り組みがとしい。         ・ 4 たれらの知見を社会実装におっていない。         ・ 4 たれらな原の看知的た成装み可有無、特殊の素材検護・火気の炭素取支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響、 4 かどとこれる新規研究者の多入環境の整備。 4 かどと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得、 がとまの一発生したがたらす。 5 いぞれたの理解を目れたがなします。 4 かえにしてみの理解を得たいないなるの事件とするころ。</li> <li>         4 かが必要。 4 定したいすたか。 5 いました、特に森本をターゲットをするである。 5 いためを引く着いないないたます。 5 いためるの表現をの新したついたます。 5 い を見なではなどと連携した、特に本本をターゲットとするフラックス構測による。 5 いためるの表現をの都定したがないます。 5 い を見なでいたまかる。 5 い を見なでいたませんます。 5 い を見なかませんた を 1 定 5 で 2 からたるう。 5 の 2 のよびでのですたまかの 5 定 5 を 5 の 5 に 5 の 7 に 2 が 5 0 を 5 の 5 定 5 0 5 0 c 1 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0</li></ul>		響や気候と植生の関係から理解する。
的な動向や日本での 研究の強み 研究の強み 中総に入り、新技術による様々な化学成分、状着表面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速 度の不確実性が大きい成分・表面などが明らかになった。 ・植物間コミュニケーション、放出の環境広営等の分子〜生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展。日本で 出改変・部市緑地に関するBWC 研究が進展した。 ・自動酸化による高次に酸化された有機分子(100ks)の生成など、生物起源二次有機エアログル(BSOA)の生成機構の理解が向上。分 子トレーサーク好不要光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進展。日本でにBSOAに関わる室内実験・野外観測での貢献。 ・温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性、予測困難なイベントに伴う ップ ・温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性、予測困難なイベントに伴う 変動を把握するためのモニタリング体制の広先が必要。 ・活達速の空間論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーション の精緻化への貢献。 ・BWC の放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であ り、老手研究者が容易に取り組める分野でない。 ・BSOA の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に 和用できるリソースが活用されていない。 ・大気・陸坡生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BWC やエアロゾルに関する学術的知見が不足して さり、それらの知見を社会装定結ビッドは支切りみがこしい。 ・OD 施肥効果の長期的気は震気の有無、将来の森林破壊・火災の炭素取支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響、 4.をれらを踏まえ、 今後10 年の研想を社会実装に結ビッドしたもるフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が必要。 ・Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットときるのラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が、プロセスの理解の深化とモデルー制構度の向上ともたらす。 ・BWC の数出測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェク トの立ち上げにより新規研究者の多人環境の容無、提定を明らかにする。 ・分野間(例えばCO、CPH BWC、DSOAD)にまたがおお相互作用(例えば室薬沈着によるGPP 促進とCDAE」 ・分野間(例えばCDAC、CPH BWC、CPADAD)にまたがお相互作用(例えば室薬沈着による GPP 促進とCDAE」 や影面をしたっための距離について、人間活動の影響と含めて定量子測性を含え、同定一マの社会実装を推進すること ・ 地球表層システムの加く目が大力、使用数のな気になった。、	2. この 10 年での世界	・地上・衛星による観測データ量の飛躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地
<ul> <li>研究の強み         <ul> <li>・今世紀に入り、新技術による様々な化学成分・沈着表面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速度の不確実性が大きい成分・表面などが明られてなった。                 <ul></ul></li></ul></li></ul>	的な動向や日本での	上物質循環モデルによる収支推定で貢献。iLEAPS が実施され、国内でも大気–陸域間の物質交換に関する学際的な研究が活性化した。
<ul> <li>度の不確実性が大きい成分・表面などが明らかになった。         <ul> <li>・植物間コミュニケーション、放出の環境比客等の分子〜生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展。日本で</li></ul></li></ul>	研究の強み	・今世紀に入り、新技術による様々な化学成分・沈着表面に対するフラックス観測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速
<ul> <li>・植物間コミュニケーション、放出の環境応答等の分子〜生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展。日本で 土地皮変・都市緑地に関する BWC 研究が進展した。</li> <li>・自動酸化による高次に酸化された有機分子(HMs)の生成など、生物起源二次有機エアロゾル(BS0A)の生成機構の理解が向上。分 子トレーサー分析や蛍光測定に基づくパイオエアロゾル研究に進展。日本ではBS0Aに関わる室内実験・野外観測での貢敵。</li> <li>3. 現在の重要なギャ ップ</li> <li>* 2 2 3 2 4 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2</li></ul>		度の不確実性が大きい成分・表面などが明らかになった。
<ul> <li>土地改変・都市緑地に関する BVOC 研究が進展した。</li> <li>・自動酸化による高次に酸化された有機分子(BOMS)の生成など、生物起源二次有機エアロゾル(ISOA)の生成機構の理解が向上。分子トレーサー分析や蛍光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進展。日本では BSOA に関わる室内実験・野外観測での貢献。</li> <li>3.現在の重要なギャップ</li> <li>*温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う変動を把握するためのモニタリンツ/体制の拡充必要。</li> <li>・花着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精敏化への貢献。</li> <li>*BOM の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>*BOM の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>*CO 施加と加泉や反異物的な減度の有無、特平の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>*Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>*BOM 全成 近の理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>*BOM 全成 近の理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>*BOM 全成 近の理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>*BOM 全成 近の理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>*BOM 全成 近の理解の深化とモデル予測構度の向上を記をいた。</li> <li>*BOM 全域研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BOM 全域研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BOM 全域研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BOM 全域研究者である人環境で整備</li> <li>*BOM 全域研究者であるの参入環境の整備。</li> <li>*BOM 全域研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BOM 全域研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BOM 全域研究者にもていて、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>*地球表層システムの統合的理解を目指す大気、</li> <li>*地球表層システムの統合的理解を目指す大気、</li> <li>*地球表層システムの統合的理解を目指す大気、</li> <li>*地球表層システムの統合的理解を目指す大気、</li> </ul>		・植物間コミュニケーション、放出の環境応答等の分子~生態学レベルの研究や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展。日本で
<ul> <li>・自動酸化による高次に酸化された有機分子(HOMS)の生成など、生物起源二次有機エアロゾル(BSOA)の生成機構の理解が向上。分子トレーサー分析や蛍光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進展。日本ではBSOA に関わる室内実験・野外観測での貢献。</li> <li>3.現在の重要なギャップ</li> <li>*温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インペントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。</li> <li>*記室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インペントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。</li> <li>*沈着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精敏化への貢献。</li> <li>*BVOの放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>*BVOのの生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリンースが活用されていない。</li> <li>*ALのの生成量を特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に 利用できるリンースが活用されていない。</li> <li>*ための知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>*COD 施胆効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>*ALの研究をドライブする key</li> <li>question or 作業仮</li> <li>*ALの単力と生デルキ法と高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組 が、プロセスの理解の深化とモデルを測構してあたらす。</li> <li>*DVC の新規測に、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が、プロセスの理解の深化とモデルを測構度の向しをもたらす。</li> <li>*DVC の新規測でが分析主要で開発と分析装置の低価格化、大気化学・生能学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BSOA 生成プロセスの理解な深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>*DVC の新規和研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BSOA 生成プロセスの理解などなどの聴聞のためでする。</li> <li>*DVC の新規和研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BSOA 生成プロセスの理解などなどの理解のもたらす。</li> <li>*DVC の新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>*BSOA 生成プロセスの理解の深れるの参入環境の整備。</li> <li>*BSOA 生成プロセスの理解などなどなどの理解したってる。</li> <li>*DVC BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素洗着による GPP 促進と Cot、固定)を網羅的に把握すること で、表発見の過程の解明や物質収支の定量性の向したつながる。</li> <li>*地球技術の名の、PVC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素洗着による GPP 促進とCot、置かる、 ・地球技層のを有機物の動態について、人間活動の影響を含めれて違う例のした。</li> <li>*地球生態を支援の解析の物質化を引いためてなる。</li> <li>*地球生態を含めたるる。</li> <li>*地球性俗の名のと分析装置の低価本化とながながる GP に進むないてる。</li> <li>*地球生態を含めのにまたがる相互作用のないためでする。</li> <li>*地球生態を含めのになるのがこころのである。</li> <li>*地球生態を有機物の動態についている。</li></ul>		土地改変・都市緑地に関する BVOC 研究が進展した。
<ul> <li>オトレーサー分析や蛍光測定に基づくバイオエアロンが研究に進展。日本では BSOA に関わる室内実験・野外観測での貢献。</li> <li>3.現在の重要なギャップ</li> <li>*温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う 変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。</li> <li>*洗着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・洗着シミュレーションの 物徴化への貢献。</li> <li>*BVC の放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であ り、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>*BSOA の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に 利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>*大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BVOC やエアロゾルに関する学術的知見が不足して おり、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>*CSmEの教見の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>*AUIII ・モデル手法を高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組 が必必要。</li> <li>*Asia=Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が、プロセスの理解の深化ととモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>*BOM での研究とドブルドはなどと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得</li> <li>*BSOA 生成プロセスの理解の深化ととモデル予測精度の問上をもたらす。</li> <li>*BOM での理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を載的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・経費を明らかにする。</li> <li>*分野間 (例えばの、GPP、BVOC、BSOA) にまたがる相互作用 (例えば窒素洗着による GPP 促進と COL 固定) を網羅的に把握すること</li> <li>*地環及層のな気術物目を物質したつながる。</li> <li>*地球表層システムの統合的理解を目指す大気、陸域生態系研究を進め、また、それに基づく、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		・自動酸化による高次に酸化された有機分子(HOMs)の生成など、生物起源二次有機エアロゾル(BSOA)の生成機構の理解が向上。分
<ul> <li>3.現在の重要なギャップ</li> <li>・温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。</li> <li>・洗着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精緻化への貢献。</li> <li>・BV0Cの放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>・BS0Aの生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題、バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BS0A 観測に利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BV0Cやエアロゾルに関する学術的知見が不足しており、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらを踏まえ、</li> <li>・60、施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>の2. 施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・7. (4. それらの加速の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・2. それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>・4. それらを踏まえ、</li> <li>・6. (5. (4. **********************************</li></ul>		子トレーサー分析や蛍光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進展。日本ではBSOA に関わる室内実験・野外観測での貢献。
<ul> <li>ップ</li> <li>変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。</li> <li>・沈着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精緻化への貢献。</li> <li>・BV0C の放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>・BV0C の放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>・BS0A の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BS0A 観測に 利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BV0C やエアロゾルに関する学術的知見が不足して おり、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらを踏まえ、</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・0.応防効果を計算した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BV0C の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BS0A 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BS0A・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば CO。GPP、BV0C、BS0A) にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO。固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向しにつながる。</li> <li>・陸域主能系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気、陸域主能系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>	3. 現在の重要なギャ	● 温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う
<ul> <li>・洗着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・洗着シミュレーションの精緻化への貢献。</li> <li>・BVOCの放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>・BVOCの放出量・滞性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BVOCやエアロゾルに関する学術的知見が不足しており、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらの無定の事類的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・00.施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・80.0 たごの効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>・80.0 たごのが用が成し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定のGSTに向けた科学的データ提供のための取り組</li> <li>かが必要。</li> <li>・4. それらの開発した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得</li> <li>が必要。</li> <li>・80.0 生成プロセスの理解の深化とセデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの用が含め、大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境型整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に</li> <li>・ BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に</li> <li>・ BSOA 生成プロセスの規構の算い、程度を明らかにする。</li> <li>・ 今野間(例えば02, GPP, BV0C, BSOA) にまたがる相互作用(例えば22素洗着による6, 同社をする2, 一分野間(例える140, GPP, BV0C, BSOA) にまたがる相互作用(例えば240, GPP, GPUC, BSOA) にまたがる相互作用(例えば240, GPP, GPUC, BSOA) にまたがる相互作用(例えば240, GPP, GPUC, CPUC, CPUC, CPUC, ACAA)</li> <li>・ 地域との部長の御外や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・ 地域表層システムの統合の理解を含めで量もたくなどの。</li> <li>・ 地域表の温の解明や物質の定くされてる相互作用(例えば240, GPP, BV0C, BSOA) にまたがる相互作用(例えば240, GPP, GPUC, CPUC, CPU</li></ul>	ップ	変動を把握するためのモニタリング体制の拡充が必要。
<ul> <li>の精緻化への貢献。</li> <li>・BVOCの放出量、濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>・BSOAの生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BVOCやエアロゾルに関する学術的知見が不足しており、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらを踏まえ、 今後10年の研究をドライブする key</li> <li>question or 作業仮</li> <li>説、 モデル手法を高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組 が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェク トの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェク トの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェク トの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェク トの立ち上げによる新規研究者で参加したたちろう。</li> <li>・BVOC の新規測定なのの参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化とさせ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えばCOS, GPP, BVOC, BSOA) にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		<ul> <li>・沈着速度の理論・観測値との不一致、上向きの放出現象を再現できない点、越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーション</li> </ul>
<ul> <li>BVOCの成出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり、若手研究者が容易に取り組める分野でない。</li> <li>BSOAの生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソースが活用されていない。</li> <li>・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BVOC やエアロゾルに関する学術的知見が不足しており、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらを踏まえ、</li> <li>今後10年の研究をドライブする key</li> <li>question or 作業仮</li> <li>説</li> <li>・00. 施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>(初)、モデル手法を高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組みが必要。</li> <li>・00. 施肥効果の長期的な減衰の有無、将来の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>(初)、モデル手法を高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組みが必要。</li> <li>・0. 施肥効果の長期のな減度の有無、特定ながなり、たちてフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスもたらす影響を量的に把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば 02, GPP、BV0C、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と 00.6 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・逆域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		の精緻化への貢献。
<ul> <li>り、若手研究者が容易に取り組める分野でない。         <ul> <li>・BSOA の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソースが活用されていない。             <ul></ul></li></ul></li></ul>		・BVOCの放出量・濃度の測定や、それらの推定の手段となる衛星観測手法の進展、安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であ
<ul> <li>・BSOA の生成量・特性の把握と大気モテルによる表現に課題。パイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリゾースが活用されていない。</li> <li>・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BVOC やエアロゾルに関する学術的知見が不足しており、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらを踏まえ、 今後 10 年の研究をド ライブする key</li> <li>question or 作業仮</li> <li>・Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えばCo、GPP、BVOC、BSOA) にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		り、若手研究者が容易に取り組める分野でない。 
<ul> <li>         ・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解する上で、BVOC やエアロゾルに関する学術的知見が不足しており、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。         <ul> <li></li></ul></li></ul>		・BSOA の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に
<ul> <li>・大気・陸城生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を埋解する上で、BV0Cやエアロソルに関する字術的知見が不足して おり、それらの知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。</li> <li>4. それらを踏まえ、 今後 10 年の研究をド 調・モデル手法を高度化し、全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定の GST に向けた科学的データ提供のための取り組 みが必要。</li> <li>・Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BV0C の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェク トの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化さ生生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えばCO2、GPP、BV0C、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・陸城生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		利用できるリソースが活用されていない。   人気、時は少したす。2.5 時になった、1.5 時になった、2.5 時になって、1.5 時になって、1.5 時になって、1.5 時になって、1.5 時になって、1.5 時になって、1.5 時になって、1.5 時になって
<ul> <li>おり、それらの知見を住会実装に結びつける取り組みか之しい。</li> <li>4.それらを踏まえ、</li> <li>今後10年の研究をドライブする key</li> <li>question or 作業仮</li> <li>Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BSOQ の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば CO2, GPP、BVOC、BSOA) にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		・大気・陸域生態糸の物質循境とその変化が人間社会に与える影響を埋解する上で、BVOCやエアロソルに関する字術的知見が不足して
<ul> <li>4. それらを踏まえ、</li> <li>+ CU<sub>b</sub>施肥効果の長期的な減量の有無、将米の森林破壊・火災の炭素収支への影響、大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。</li> <li>今後 10 年の研究をド ライブする key</li> <li>question or 作業仮</li> <li>純 ホsia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得</li> <li>みが必要。</li> <li>・ Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得</li> <li>が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・ BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・ BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・ 分野間(例えば CO<sub>2</sub>、GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO<sub>2</sub>固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・ 地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		おり、それらの知見を住会実装に結びつける取り組みか之しい。
今後10年の研究を下 ライブする key question or 作業仮 説 ・Asia-Flux などと連携した、特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得 が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。 ・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。 ・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。 ・分野間(例えば CO <sub>2</sub> GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO <sub>2</sub> 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。 ・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。 ・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。	4. それらを踏まえ、	・00 施肥効果の長期的な減衰の有無、将米の森林破壊・火災の灰素収文への影響、大気汚染物質が温至効果カス父換に与える影響。
<ul> <li>マロシステムの縦骨の</li> <li>マロシステムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> <li>マロシスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BVOCの新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば CO2、GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>	今後10年の研究をド	観測・モアル手法を高度化し、全球的な収文の整合的な説明が氷められる。ハリ協定のGSIに同けた科学的アータ提供のための取り組
<ul> <li>Asta+Flux などと連携した、特に緑林をダーケットとするノワックス観測に基づく戦略的な観測による高精度データセットの取得が、プロセスの理解の深化とモデル予測精度の向上をもたらす。</li> <li>・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば CO<sub>2</sub>、GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO<sub>2</sub>固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>	フイノ9 \$ Key	かか必安。 A: Pl. わじし声嫌した。性に本社たね。ビューレナスマニュカマ知測に甘べく淡吹的わ知測に上て宣標座ご。なお、しの取得
<ul> <li>         ・BWOCの新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。         ・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に         把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。         ・分野間(例えばCO<sub>2</sub>、GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着によるGPP促進とCO<sub>2</sub>固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。         ・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。         ・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。     </li> </ul>	question or 作美仮	・ASIa=FIUX などと連携しに、特に緑体をタークツトとするノブツクス観測に基づく戦略的な観測による局有度アータセツトの取停 が、プロセスの理解の源化してデルズ測集座の点したたたとす
<ul> <li>BVGC の新規測定・分析手伝の開発と分析装置の低価格化。人気化子・主恵子・植物生理生態子など分野預め組織の編成とクロシェクトの立ち上げによる新規研究者の参入環境の整備。</li> <li>BS0A 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BS0A・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば CO<sub>2</sub>、GPP、BVOC、BS0A)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO<sub>2</sub>固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>	<b></b> 司尤	か、ノロビスの理解の保住とモアルア側相度の回上をもたらり。 - DWCの新田測学・八振毛法の明惑し八振法器の低価枚ルーナケル学・仕能学・拡励圧囲圧能学れば八野横断知嫌の須式レプロジェル
<ul> <li>・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば CO2、GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		・DVOの利規側圧・万竹子伝の開発と万竹表直の低価俗に。八×11日・土態子・恒初生理生態子など万野傾倒組織の構成とノロノエク しの立たしげに上る英坦研究者の会乱増培の政備
<ul> <li>一版の生成プロセスの建解を保忙させ生成量、特性を説明する。広めインドイスエアログルの生成が気候プロセスもたらす影響を重めた 把握し、植生に対するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。</li> <li>・分野間(例えば O2, GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。</li> <li>・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。</li> <li>・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。</li> </ul>		「の立り上りによる利焼明九日の≫八環境の金脯。  ・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・性性を消明する BSOA・バイオエアロゾルの生成が気候プロセスまたらす影響を豊めに
・分野間(例えば CO <sub>2</sub> 、GPP、BVOC、BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素沈着による GPP 促進と CO <sub>2</sub> 固定)を網羅的に把握することで、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。 ・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。 ・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。		・DOVA 生成ノロビへの理解を保住させ生成重・特性を読明する。DOVA・ハイオエノロノルの生成が気候ノロビへもにらす影響を重印に   抑振し   病生に対するフィードバック燃構の右無・理度を明らかにする
で、未発見の過程の解明や物質収支の定量性の向上につながる。 ・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。 ・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。		い山産し、恒上にATT のイオード、ソノ1%時の日ボー住反とりじんでする。 ・分野問(例えげ CO。 CPP BVOC BSOA)にまたがろ相互作田(例えげ雲表沈差による CPP 促進し CO。田宝)を網羅的に押提すること
・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定量予測性を高める。 ・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。		カメ雨、(かれていい) (1、100、1001) (これにかつ)(111)(1)(1)(1)(1)(1)(1)(1)(1)(1)(1)(1)(
・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会実装を推進する。		・ 膝城生能系が関わる全有機物の動能について 人間活動の影響を含めて定量予測性を高める
		・ 地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸城生能系研究を進め、また、それに基づき、同テーマの社会宝装を推進する
5. 主な連携相手 IGAC、 GCP、 iLEAPS、 FLUXNET、 iCACGP など。	5. <b>主</b> な連携相手	TGAC、 GCP、 iLEAPS、 FLUXNET、 iCACGP など。

別表 1-5	大気海洋統合テーマでのサマリー表	(出典)「大気化学の将来構想 2022-32」各論_https://insac.org/sp1/	
JJJ2X I U.		(山央/「八文IL」」の行入情芯 ZUZZ UZ」 古論、ILLUS:// JP3d0. 01g/ sp1/	

1. 究極のゴールは何	・人類は地球規模での大気汚染や温暖化を引き起こし、人新世と呼ばれる時代に突入した。それらの人為的な地球環境変化が大気化
か。	学・陸域海洋生態系相互作用へ与える影響およびその影響による気候フィードバックを本質的に理解し、統合的に評価・予測すること
	は重要である。従って、観測・実験・数値モデル研究を融合し、人新世における「大気微量成分と海洋生物活動の相互作用による気候
	影響と海洋生態系へ与える影響およびその気候フィードバックを明らかにすること」が究極のゴールとなる。
2. この 10 年での世界	<ul> <li>・海洋生物-大気エアロゾルの化学・物理過程-雲凝結核能・氷晶核能への影響に関する統合的な研究が国内外で進んだ。</li> </ul>
的な動向や日本での	・国内では北太平洋を中心として船舶による大気化学観測データが蓄積された。
研究の強み	・有機物・鉄・反応性窒素の大気-海洋間収支に関する分野横断の観測・モデルの統合研究体制が構築された。
	・同位体を用いた解析や蛍光法を用いた成分解析など先端的な計測/分析による洋上観測により海洋大気エアゾロル組成の新たな情報
	が蓄積された。
	・北太平洋亜寒帯において、海洋内部の鉄の分布や循環に関する知見が蓄積された。
	・鉱物起源鉄に加えて燃焼起源鉄を新たに考慮することで、大気モデルによるエアロゾル中鉄濃度および鉄溶解率の観測再現性が向上
	し、燃焼起源鉄は鉱物起源鉄より効率的に栄養塩施肥効果に働くことが海洋モデルから示唆された。
3.現在の重要なギャ	・表層海水から大気への有機物の供給過程・量と、その雲凝結核能・氷晶核形成能、雲降水過程への影響に関する気象・気候システム
ップ	としての総合的な理解が不十分である。
	・各海域において海洋生態系に影響を与える大気成分の供給量および起源に関する理解が未だ不十分である。
	・北極海・北太平洋・インド太平洋・南太洋において、大気・海洋パラメータを同期させた統合的な船上観測やメソコスム等の現場実
	験による検証データが少ない。
	<ul> <li>・海洋-大気境界層での有機物と栄養塩の相互作用の理解が不足している。</li> </ul>
4.それらを踏まえ、	・地球温暖化や海洋酸性化および海洋への栄養塩の沈着量の変化に伴って、海洋から大気へのエアロゾルや前駆体の放出量・質はどう
今後 10 年の研究をド	変化し、雲凝結核・氷晶核を介してどの程度の正または負の気候フィードバックが生じるのかを明らかにする。
ライブする key	・大気から海洋への様々な栄養成分および阻害成分の供給に対する海洋生態系(基礎生産など)の応答を定量化する。
question or 作業仮	・北極海・北太平洋・インド洋・南太洋において長期的な大気・海洋統合船上観測と大気・海洋物質循環モデル研究を展開する。
説	・大気化学だけでなく、海洋分野も含め、個別に行われてきた有機物・栄養塩の観測・実験・モデル研究を融合するとともに、分野横
	断型研究へと発展させる。
5. 主な連携相手	・日本海洋学会、日本気象学会、日本地球化学会、日本エアロゾル学会、SOLAS、CATCH、 BEPSII、 GESAMP、 GEOTRACES、 IMBeR

# 別表 1-6. エアロゾル・放射・雲テーマでのサマリー表 (出典)「大気化学の将来構想 2022-32」各論、https://jpsac.org/sp1/

1. 究極のゴールは何か。	・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-放射相互作用やエアロゾル-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。
2. この 10 年での世界的	・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
な動向や日本での研究の	ータが蓄積された。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・雲凝結核能などの諸特性や、新粒子生成・二次有機エアロゾル
強み	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デル研究により、エアロゾ
	ルの放出・輸送・化学変化・沈着等の諸過程の知見が蓄積され、越境大気汚染の影響やエアロゾルの放射強制力の推定が改善されてきている。
	・衛星観測・大循環気候モデル・全球雲解像モデルが相互に影響しながら発展し、エアロゾルー雲相互作用の理解が進んできた。衛星観測では、能動型セン
	サと受動型センサの複合利用により、エアロゾル摂動に対する雲応答の観測的な理解が進んだ。京や富岳などの世界最高性能の大型計算機の活用により、日
	本は全球雲解像モデルによるエアロゾルー雲相互作用の研究をリードしてきた。
3.現在の重要なギャップ	・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ー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不十分である。
	・欧州と比較して、相対的にアジア、南米、アフリカ、オセアニア、シベリアの長期モニタリング観測拠点が不足している。
	・エアロゾル摂動に対する雲・降水系の応答の理解は不十分である。特に、氷を含む雲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。
	・エアロゾル・雲・降水に関わる素過程のモデル表現は観測によって十分に拘束されていない。
4. それらを踏まえ、今後	<ul> <li>・エアロゾルー放射相互作用とエアロゾルー雲相互作用による放射強制力の推定の不確定性幅は、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</li> </ul>
10年の研究をドライブす	合、数値モ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?
る key question or 作業	・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・
仮説	生成過程、新粒子生成など)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?
	<ul> <li>・大気汚染要因の将来変化を定量的に予測できるか?</li> <li>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?</li> </ul>
	・既存のほとんどのエアロジルモナルで十分に考慮されていない要素(水晶核特性、鉱物ダストの鉱物組成、バイオエアロジルなど)を数値モナルに導入
	し、その時空間分析や放射動制力を明らかにしていくことかできるか?
	・人為起源エアロソルたけでなく、自然起源エアロソルの気候変化に対する応答も含め、より正重的かつ総合的なエアロソルと気候との相互作用の推定・評   (# * 中国 = * * 2 + 2
	御ど夫現じさるか? 「夢」」が「欧山」」が「ここだで同時世界」とがしい毎日知道に「シーンにより」「マママジュ」の電信体を指摘していて他も知道のした公園のの中で作
	・美レーク・ドボルーグ・ライタを同時捨戦しに対しい増基戦別、ジンヨンにより、エノロフルへの芸心谷を複雑にしている板物理過性と力子過性の相互性
	用を解明できるか?この復合的な観測情報をとのよりに活用してエノロンル・芸・降小の里安な茶週桂を観測的に診断できるか? - 、土紙環気伝エデル(2010) において、火な会な混合担害。のエアロゾルの影響しるわたたてお針影響や、台湾電しエアロゾルの担互佐田な敏明できてから合
	・人相衆気候モアル(GOM)にわいて、水を含む低合相芸へのエアロアルの影響とてんによる放射影響で、対価芸とエアロアルの相互作用を解明できるが?主 「球電艇海エデル(GOM)」とい過土の気候地能な再用」「気候研究に対バーはなこしができるかのCOM」からシートレフに敷がる形で会球 LES エデルでのエア
	林美性像モノル(GAM)により週本のACK氏が思と特徴し、ACK的元に描い、バラることかくさるか?GAMがらノームレベに素がるかく主体LESモノル(のエノ ロジュー 雪和互佐田正なといくしくかっきょう。
	ビノルニ 去印ム F 山町加 ひとうサト 延めることが くさるかく ・ これたの エデルにおける エアロゾル・電・ 際水表 温 細の 素相 を 衛見 細測 標 却に 其 べいて どの とうに 協声・ 宣産 化 できるか 9
	- ペロジットノルにわけるモノル・云・陸小米迴性ツ系先を開生戦別用報に至ういてこのように拘木・同反してさるが? - 燃励学習を任用して エデル表温程の真特度化と真清化をどのとうに高立できるか?
5 主抄演進相手	1001%于目で10円して、「ノバボ迴住い同相反して回応してていよりに凹立てさなが、   日本気免受今 日本電波受合 日本地球或見到受演合 日本エアロゾル受合 ICAC FSA-IAVA ForthCAPF 海見ミッション MACA ANS 海見ミッション
0.土化出历旧十	日平X1豕于云、日平ヨ小于云、日平地怀念生祥子建口、日平土ノロノル子云、IOAC、 EOATJAAA EdruioAne 開生ミツノヨノ、NADA AUS 開生ミツノヨノ

別表 1	-7. 成層圈 ·	中間圏テー	マでのサマリ	一表	(出典)「	大気化学の	将来構想 2	2022-32」 1	各論、htt	ps∶//jpsac.	org/sp1/	
1. 究極のゴールは何 か。	<ul> <li>・対流圏と成構</li> <li>・微量成分(G</li> <li>・気候変動に係</li> </ul>	層圏との境界領 HG、オゾン、 ( 半うオゾン層変	減の構造の理解 代替フロン、水 記化、およびオソ	¥と対流圏 蒸気等)の ン層変化	-成層圏間 つ変化が成 が気候に-	の力学的結 層圏の大気( 与える影響の	合と物質交 盾環に与え・ )理解。	換との関係 る影響の理	系の理解。 単解。			
	・火山噴火や 解。	大規模森林火災	¿起源の成層圏コ	ニアロゾル	の化学影	響の理解と丿	(為起源エン	アロゾルの	成層圏へ	の寄与およて	<b>び流入過程の</b>	定量的な理
	<ul> <li>・温暖化対策</li> <li>・太陽活動(加)</li> <li>それが気候に</li> </ul>	として成層圏エ 放射・高エネル 与える影響の理	ニアロゾル層を改 /ギー粒子)や磁 !解。	変するジ 気圏現象	オエンジ: がイオン(	ニアリングの 化学を通して	)影響予測と 「NOx、 HOx	:それに基 を生成し、	づいた適 ・中間圏	刃な指標。 ・成層圏オゾ	ンを変化させ	せる影響と
2. この 10 年での世界	・日本は熱帯地	或における SOW	ER などの気球観	測、大型	の大気レー	ーダー(イン	ドネシア、	南極 PANS	Y)、CONTH	AILなどでU	TLS 領域の観	測で貴重な
的な動向や日本での研	貢献。	1										
究の強み	・数値モデルの ソースの発展	り高度化。積雲 こ伴う分解能の	客や重力波のパラ )向上。	メタリゼ	ーション(	の改良。化学	輸送モデル	レによる じ	TLS の各i	過程の精緻化	(への貢献)。	計算機リ
	・数値モデルる	を用いたオゾン	/層の気候影響の	F究は、オ	・ゾン分布	を与えるので	ごはなく、イ	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。						4.177.2	1 2				
	・世界初の機構	<b>戒式極低温伶</b> 冴	限で動作する超いない。	伝導検出	おを搭載	し、地万時の	)制限を受け	すない太陽	非同期軌	直で観測した	日本のSMIL	-S はオソン
	の日同変化や「	コ良に干ノ変男	1を完兄りるなと	リエニー	クな成未行	と軍山した。 日祖帝 武臣	国の in-ai	+., 毎日泪山ふい	可能にする	2		
	・ 抽上 FTIR で	ノンマヤ ス頃	を用いるこ、ほしや分子パラメー	ロタを世界	度しエクノ 眼的に統一	「産疫、成層	酒の III SI	「山甸」の「 グローバル	小松在郊	」。 シルを調べるね	亜空が増加	確度の弱い
	CFC やHFC など	の吸収線につ	いてもカラム量	の道出がす	可能となっ	てきた。				10CHM 00F		JA/2 • > 44
	・地上、衛星の	ともにマイクロ	波観測は、他の	) 測器では	困難な中国	間圏以上の領	東域のデータ	マを提供。	日本は、	SMILES をはじ	じめ地上の放射	射計でも超
<ol> <li>9</li></ol>	同感度()但KA	穿文信機開光(	同時政府を有り	<u>い。</u> 9万作田を	田韶ナス	ためにけ 刊	シートの知道に	データわエ	デルの時	問心留台しる	八古八िをむて	け不上公で
3. 現住の里安なイヤツ プ	・ 対加固・ 成層 あろ 執帯積	「固(「中间固)」 重対流や対流圏	の初員個塚・和 限面褶曲(trong	ヨエTト用で nause fol	些所 9 つ ding) た ど	このには、 う	むんり 観測 / す小ないが!	か 雪 輸 送 に	アルの時	间刀 件 肥 C ឆ 重要 と 思われ	1旦刀 牌肥 し 1 ろ現象を解	はホーカし
-	うな高解像度の	の観測・モデル	による現象の理	解が必要				の真相心で		主文で応知る		
	・将来予測の料	青緻化のため、	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	の入れる必要	要がある。
	・世界的な衛星	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	いる) により	)、グロー	バルデー	タの継続性や	観測可能な後	散量成分の
	種類が限られる	る恐れがある。	これによって、	微量成分	濃度の長期	朝トレンドの	理解や輸送	も過程の理	解(気象	昜と様々な微	電成分輸送。	との間の整
	合的な理解)、	等価実効成層	圈塩素(EESC)やF	反応性窒素	素酸化物 (N	0y)等の量の	推定に支障	をきたす	可能性があ	5る。 		
4.それらを踏まえ、今	・微量成分、物	特に短寿命化学	を種が対流圏から	ら成層圏に	こどのよう	に流入する	か? また	、そのタィ	イムスケー	ール、対流圏	-成層圏の交	換時定数は
後10年の研究をドフ	どれぐらいか	くい、しまたよ	いっし当任っち		바묘교		ートファンド	いかけいよ	7 - 1.1-		フロックに	としていたいです。
イブする key question	・GHG の増加(	こ伴い水烝気な	その化子種の必	「沉固から 剄泣キロお日	成 唐 圏へ	7)流入重(ま	にての史)	か変化す	ることに	よつし、成権	111回の気温博	這かどう変
or 作耒収祝	北りるのか?		加による成	固行和別ろうる	モルラ 仮も	の又能的だか、 なり得る。 >	、国际的な	規刑に以 ↓ 憲注の亦ル	ノ、旧し奇	の 康度 か 増 に た に	もに場合は下 ナス七与活費	部成層圏に けどのとる
	にたろのか?		「小別木を叩刀」	いしかれての	可肥圧も			再迫り友忙	ルトキシナ	同程度におい	ノの八×川相衆	ほこのよう
	・太陽活動やる	兹氨圈活動 🔤	宇宙線などによる	地球大気	へのエネ	レギー流入け	との程度な	ブローバル	な環境に	影響を与える	のか? また	と、 そうし
	た影響は対流	圏まで伝播する	のか?					,.				_, _ / 0
5. 主な連携相手	SPARC, NDACC,	SCOSTEP										

※「大気化学の将来構想 2022-32」の各論詳細版を含む全編は <u>https://jpsac.org/sp1/</u>を参照のこと。





# 大気化学の将来構想 2022-32:各論部の概要

Future Vision for Atmospheric Chemistry 2022-32: Overview of the topical section

金谷有剛,持田陸宏

# 大気化学の将来構想 2022-32:各論部の概要

# Future Vision for Atmospheric Chemistry 2022-32: Overview of the

# topical section

## 金谷有剛<sup>1</sup>\*,持田陸宏<sup>2</sup>

日本大気化学会と日本学術会議・IGAC 小委員会 は、大気化学の研究分野において今後10年で推進 すべき研究で,周辺分野も巻き込みつつ実施すべき 課題を整理し、「大気化学の将来構想 2022-32」とし て取りまとめ,この度,公表開始に至った。学術研究 の方向性の道標として活用することに加え,今後,大 型プロジェクトや大型設備等を提案・獲得していく目 的で,また,本学会の活動をアピールしつつ,周辺 学会とのコミュニケーションを高める目的での活用を 狙うものである。当分野では、2000年に「日本の地球 大気化学研究 1989-1999 -10 年間の総括と今後 の研究戦略一」を、2008年には「今後の日本の大気 化学研究 IGAC 小委員会の提言 |を取りまとめてき た経緯があり、本将来構想はそれらの後継文書に位 置付けられる。近年,学問の成熟とともに学術的によ り深い探求・洞察が求められるようになり、また、 Future Earth や SDGs といった超学際的な出口や社 会実装も求められるようになるなど、私たちを取り巻く 状況も大きく変化した。今回の取りまとめにおいて、こ れらの点も強く意識することとなった。

本将来構想は,序論部と各論部から構成される。 各論部は専門内外の研究者向けとし,最先端の科学 トピックスや,喫緊の社会要請に応える取組等を,研 究開発のアプローチとともに具体的に述べるものであ る。一方,序論部では,より広い読者を想定し,各論 部全体を俯瞰的に捉え,当分野の果たすべき役割 や分野間・国際・国内連携,必要となるファシリティや 人材育成等の課題をとりまとめる。本特集はこの全体 構成のうち,7 つのコアテーマから成る各論部を取り まとめるものである。序論部は今後,IGAC 小委員会 において日本学術会議の「記録」としてゆく計画であ る。また,序論部と各論部を統合した全体版は本学 会のウェブに掲載予定である。

各論の作成作業は、2019年から約3年にわたって 進められた。作成の当初から全ての分野の網羅を意 識しすぎると、広く薄い内容の文書となることが懸念 されたため、いくつかのコアテーマと代表者をトップダ ウンで指名し、「尖った」サイエンスを記述する文書と することを目指した。代表者には,作成の段階でコミ ュニティからの広いインプットを受けられるように小研 究集会等を開催し、活動を進めてもらう想定であった が,新型コロナ感染症の蔓延により,対面での会合 開催は難しくなり、オンラインで限られた機会を活用 し,構想と執筆を進めることとなった。その代替として, 一次原稿を広く本会会員に読んでもらいコメントをも らう「パブリックビューイング・パブリックコメント」を充実 させ、オープンな形で広いインプットを取り込むものと した。また, 第26回大気化学討論会(2021年)と日本 地球惑星科学連合大会 2022 において, 各論の内容 について代表執筆者から紹介し, 議論する場を設け た。これらの過程で得られたコメントと回答についても 公開する段取りになっている。本将来構想を通して, コアテーマは最終的に、「長寿命気体」、「反応性気 体」,「物理化学」,「大気陸域統合」,「大気海洋統 合」、「エアロゾル・放射・雲」、「成層圏・中間圏」の7 つとなった。それらのうちの5テーマの決定稿を今回

の第 47 号で,残りの 2 テーマを次回の第 48 号に収録する。

各論部の筆致はそれぞれ著者の個性が残るものと なっているが、統一感を得るための工夫として、末尾 に共通フォーマットの「サマリー表」を設けることとし、 究極の目標は何か、最近の世界の動向と我が国の 強み、現在の重要なギャップを記述してから、今後10 年どのような取り組みを進めるべきか、と論考を進め られるものとした。読者の皆様には参考にしていただ ければありがたい。最後に、各論の執筆や取りまとめ を担った学会内外の皆様、また、査読コメントを寄せ ていただいた皆様、ご協力いただいたすべての方々 に感謝申し上げたい。

> 原稿受領日: 2022 年 7 月 4 日 掲載受理日: 2022 年 7 月 4 日

### 著者所属:

1. 海洋研究開発機構 地球表層システム研究セン ター

2. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所

\* 責任著者:

Yugo Kanaya <yugo@jamstec.go.jp>

2

# 温室効果気体

# 温室効果気体とオゾン層破壊物質

Greenhouse gases and ozone depleting substances

梅澤拓,丹羽洋介,斉藤拓也,齋藤尚子,豊田栄

# 温室効果気体とオゾン層破壊物質

# Greenhouse gases and ozone depleting substances

## 梅澤拓1\*,丹羽洋介1,斉藤拓也1,齋藤尚子2,豊田栄3

大気中の温室効果気体(GHG)やオゾン層破壊物質(ODS)は、多様な人為・自然放出源を起源に持ち、様々な消失・吸収過程によって大気から除去される。大気中のGHGやODSの変動を理解するためには、地球表層でのGHGやODSの交換や大気中での輸送ならびに化学反応を定量的に把握する必要がある。将来のGHGやODSの収支を正確に予測するためにも、これらの循環メカニズムの解明が重要である。このため、地上、航空機、船舶、人工衛星による大気観測、フラックス観測、大気輸送モデル、陸域・海洋の物質循環モデルなど、多様なアプローチによる研究が行われ、GHGやODSの全球・地域収支が推定されてきた。現在の収支推定では不確実性の大きい低緯度地域や、急激な変化が起こり得る北極圏については、循環メカニズムの理解を深化すべく、より重点的な研究が必要である。パリ協定やモントリオール議定書にもとづく国際社会の取り組みも進展しており、対象気体の放出起源や分布を正確に把握して排出インベントリの検証に関する科学的知見を提供し、国際枠組みが実効的に機能しているかを定量的に評価するとともに、実効的な排出削減策の立案にも貢献することが求められている。現在では、複数のアプローチを組み合わせた統合的研究が国際的に展開されるようになり、我が国の研究も大きな責務や貢献を果たしている。

### 1. はじめに

人間活動による様々な化学物質の放出量の増加 は、大気の物理化学過程に大きな影響を与えている。 産業革命後に大気中濃度が大幅に増加した二酸化 炭素(CO<sub>2</sub>)やメタン(CH<sub>4</sub>),一酸化二窒素(N<sub>2</sub>O)など の温室効果気体(Greenhouse Gases, GHG)は、地球 温暖化の緩和のため、その放出量の削減が喫緊の 国際的課題として認識されている。特に、2015 年に パリ協定が採択され、各国が GHG の排出削減目標 の策定義務を負うなど、国際社会の取り組みも実効 的になってきた。一方、オゾン層破壊物質(Ozone Depleting Substances, ODS)については、1987 年の モントリオール議定書の採択以来、国際社会の取り 組みの成果として、様々な化学物質の大気中濃度が 減少に転じてきた。このように、GHG や ODS の研究 は国際的な社会背景や政策課題と密接に関連して おり,排出削減対策への貢献が強く求められている。

しかし、これらの大気中微量気体の将来にわたる 正確な濃度予測は簡単ではない。大気中濃度の変 動要因を支配する地球規模の循環メカニズムの解明 は未だ不完全であり、人為起源から自然起源まで多 岐におよぶ GHG や ODS の放出源・吸収源や、これ らと大気との多様で複雑な交換過程の理解を積み上 げる必要がある[例えば持田ら、2022]。そのため、多 様なプラットフォームを活用した大気観測のみならず、 個別の放出源・吸収源での交換過程の観測、大気 輸送モデル、陸域生態系モデル、海洋フラックス観 測、排出インベントリなど、様々な手法を駆使した解 析が行われている。近年では、後述のように、Global Carbon Project (GCP)による統合解析が定期的・組織



図1 CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, ハロカーボンの全球循環の概観図。図中に示された地上基地, 船舶, 航空機, 人工衛星などの観測プ ラットフォームを利用した大気観測が行われている。*Nakazawa* [2020]の Fig. 1を改変。

的に報告されるようにもなってきた[Friedlingstein et al., 2020; Saunois et al., 2020; Tian et al., 2020]。

本稿では、重要なGHGやODSであるCO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O およびハロカーボンの循環の解明に向けた国内 外の研究動向をまとめる。また、近年発展の著しい GHG の衛星観測についても記述した。我が国の研 究の現状や成果についても触れ、現在および将来の 研究課題についても議論する。

### 2. 二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)

人間活動における化石燃料消費や土地利用変化 によって、CO2の大気中濃度は増加の一途を辿って おり、地球温暖化に最も影響を及ぼしている大気成 分となっている。海洋や陸域生態系が大気中のCO2 の大きな吸収源となっており、これらの正味吸収量の 合計は人間活動による放出のおよそ半分に及ぶ [Friedlingstein et al., 2020]。そのため、人間活動に伴 う放出だけでなく、陸域生態系と海洋における放出・ 吸収の量を正確に把握することや、それらのメカニズ ムの理解を深化させることが重要な課題である(図1)。

地表面におけるCO2の放出・吸収量(地表面フラッ クス)を求める研究手法には二つのアプローチがある。 ーつはボトムアップ・アプローチであり,統計データや CO2フラックスの現場観測,陸域生態系モデルによる シミュレーションなどにもとづいて,個々の素過程を 積み上げて拡張することで,特定の領域や地球全体 での量を推定する。もう一つは,トップダウン・アプロ ーチであり,大気観測にもとづいて,地表面での排 出・吸収の結果を反映する大気中濃度の時間変化 や空間分布から推定する。本章においては,大気化 学との関連が深いトップダウン・アプローチの研究を 中心に議論を行う。

我が国による GHG の大気観測は世界的に見ても 有数の規模で展開されており、これらは CO<sub>2</sub> の観測 を基礎に発展してきた。東北大学では、1970 年代末 に高精度の非分散型赤外分光計(NDIR)を開発し、 1979 年には民間旅客機を用いた日本上空での CO<sub>2</sub> 濃度の観測を開始した[*Tanaka et al.*, 1983]。この旅

客機観測は世界最長の GHG の航空機観測となって 今も継続中である [Ishidoya et al., 2012; Umezawa et al., 2014]。1980 年代以降は, 南極昭和基地や北極 ニーオルスン基地,国内でも綾里,南鳥島,与那国 島, 落石岬, 波照間島での地上観測が, 東北大学, 国立極地研究所,気象庁,国立環境研究所によって 開始され,現在まで観測が継続されている[Morimoto et al., 2003; Goto et al., 2017a; Watanabe et al., 2000; Tohjima et al., 2010]。1984年には, 民間旅客機の国 際線航路での CO2 濃度の定期観測も世界に先駆け て実施された[Nakazawa et al., 1991]。この観測は, 日本航空国際線定期航路を用いて1993年に開始さ れた自動大気採取装置による観測[Matsueda et al., 2002]や, 2005 年からの CONTRAIL プロジェクト(自 動大気採取装置と自動連続 CO2 濃度測定装置を搭 載) [Machida et al., 2008] へと発展し, 観測範囲と頻 度が大幅に拡大された。また,気象庁の観測船 [Hirota et al., 1991]や, 民間貨物船を用いた観測も 実施されている[Morimoto et al., 2000; Tohjima et al., 2005]。さらに、大気球を用いた成層圏の観測 [Sugawara et al., 2018]や、シベリアでのタワー観測と チャーター航空機による観測[Sasakawa et al., 2013] など、多様なプラットフォームでの観測ネットワークも 長期にわたって維持されている。過去10年間ほどの 観測の展開も目覚ましく, 富士山山頂やアジア各国 での観測[Nomura et al., 2017, 2021; Nishihashi et al., 2019], 南鳥島航路上での航空機観測[Tsuboi et al., 2013; Niwa et al., 2014], 東京都市圏内での観測 [Ishidoya et al., 2020; Sugawara et al., 2021]など、上 述の研究機関に加えて,産業技術総合研究所,防 衛大学なども参画し,地域スケールや都市域スケー ルでの人為排出を含むフラックス推定も視野に入れ た多様なネットワークへと発展してきている。

また, CO<sub>2</sub> の濃度データだけではなく, CO<sub>2</sub> の炭 素・酸素同位体比の観測, O<sub>2</sub> 濃度の精密観測も, 独 自の高精度測定技術が確立されて, その長期観測 が炭素収支の推定に活用されてきた[Morimoto et al., 2000; Ishidoya et al., 2012; Goto et al., 2017a; Tohjima *et al.*, 2019]。最近では,陸上生態系における光合成 量の関連指標として,光合成によって CO<sub>2</sub> と共に植 物に取り込まれる硫化カルボニル(COS) [*Campbell et al.*, 2008]を利用した研究にも注目が集まっている。

地表面フラックスを時間・空間的に均一に並んだ グリッドデータとして得るためには、まばらな観測デー タを使って大気中に拡散された情報を"拾い集める" 必要があり,そのため大気中での移流拡散を考慮す る大気輸送モデルや先験情報としてボトムアップ・ア プローチで得られたデータを使う必要がある。この大 気輸送モデルを用いた地表面フラックス推定は逆解 析と呼ばれる。国内では,国立環境研究所,海洋研 究開発機構,気象庁気象研究所などで逆解析の研 究が行われているが、どれも異なる大気輸送モデル をベースとしており, NICAM-TM [Niwa et al., 2011], MIROC-ACTM [Patra et al., 2018], NIES-TM [Belikov et al., 2013], GSAM-TM [Ishijima et al., 2022]といった全球モデルが使われている。逆解析で は、一般にベイズ推定が用いられ、評価関数が最も 小さくなる解(最適解)を求めることで、観測と整合的 な地表面フラックスが求められる。どの手法でも評価 関数の定義の仕方はおおよそ同じであるが, 最適解 の求め方は異なっている。その一つが,解析的な計 算が可能となるまでフラックスの時空間解像度や観 測データのサイズを落として解析解を求める synthesis inversion 法[Enting, 2002]である。この手法 は国際的なモデル比較解析プロジェクト TransCom [Gurney et al., 2002]が採用したことで最もポピュラー な手法として知られており, MIROC-ACTM や GSAM-TM で用いられている[Maki et al., 2010; Saeki & Patra, 2017]。一方で, NICAM-TM やNIES-TM で は、4次元変分法が用いられている[Niwa et al., 2017; Maksyutov et al., 2021]。4次元変分法では, 観測デ ータのサイズを落とさず,また,フラックスの時空間解 像度も落とさずに大気輸送モデルのグリッド解像度で 最適化を行うことが可能となっている。近年,利用可 能な観測データの量は急激に増えており、観測デー タの持つ情報を最大限に抽出することができる4次元

変分法やアンサンブル・カルマンフィルター(もしくは スムーザー)といった手法が逆解析の主流となりつつ ある。これらの手法は、後述する衛星観測のデータを 用いた逆解析にも利用されている[e.g., Baker et al., 2010]。これらの逆解析では、大気観測データに加え て、ボトムアップ・アプローチによるデータも初期値推 定値として重要な役割を果たしており、化石燃料起 源排出データや、大気-陸域植生・海洋間フラックス、 森林火災のデータが用いられている[e.g., Oda & Maksyutov, 2011; Ito & Inatomi, 2012; Takahashi et al., 2009; Iida et al., 2015; Zeng et al., 2014; van der Werf et al., 2017]。

トップダウンとボトムアップ・アプローチの地表面フ ラックス推定値は以前には差異が大きかったが, 観 測データの拡充やモデルの高度化に伴い, 近年で は両者の比較解析が可能となってきた[Kondo et al., 2020]。国際的には, 国際協働研究プラットフォーム Future Earth の研究プロジェクトである Global Carbon Project (GCP)が, 全球のトップダウンとボトムアップ の統合解析の結果を取りまとめて毎年論文として出 版している[Friedlingstein et al., 2020]。さらに, GCP のもとで立ち上げられた Regional Carbon Cycle Assessment and Processes (RECCAP)プロジェクト [Canadell et al., 2011]では, 地域別の放出・吸収量の 包括的な解析が試みられており, 現在はその phase-II が開始されている[Ciais et al., 2022]。

GCPのほかにも、ヨーロッパではICOSやCoCO2, 米国ではNACPといった大型の炭素収支研究プロジ ェクトが始動しており、それぞれ独自の研究が進めら れている。特に、2015年のパリ協定以降、1.5°C/2°C 目標に向けてCO2排出削減の機運が高まっており、 これら大型プロジェクトは、排出削減の政策立案に資 する科学的知見の創出を重要な課題として位置づけ ている。先に述べたとおり、我が国の観測ネットワーク は世界に誇る規模であり、また、大気輸送・逆解析モ デルもGCPなどの様々な解析に参加して世界的に 高い認知度を得ている。しかし、上記の欧米のプロジ ェクト群に伍するためには、個々の研究グループから 成る多様性を維持しつつも,我が国全体でより統合 的な解析を行っていく必要があり,大気観測やモデ ル解析,排出インベントリなど様々な研究グループの 研究成果を常に共有・相互評価できる体制を構築し ていくことが肝要である。また,新型コロナウィルス蔓 延による人為排出の減少[Tohjima et al., 2020]や大 規模森林火災[Niwa et al., 2021]などといった突発的 な事象による CO<sub>2</sub> 放出・吸収量の変化は,社会の関 心も高いため,早期に検知,情報発信を行うことので きる体制を整えていくことが望ましい。さらには,都市 域観測のさらなる強化や[寺尾と石戸谷, 2021],起源 別推定に有効な酸素や同位体観測の充実とそれに 対応したモデル開発,大気輸送モデルの高解像度 化が必要となっている。

### 3. メタン(CH<sub>4</sub>)

CH4の大気中の濃度は約2 ppmとCO2の200分の1程度だが,100年間での地球温暖化指数(GWP)は28と評価され,産業革命前(1750年)からの濃度増加による放射強制力はCO2の25%に相当して,これはGHGによる寄与としてCO2に次ぐ大きさである [Forster et al., 2021]。CH4は大気の酸化力を支配する水酸化ラジカル(OH)と反応して大気から除去されるが,OHは大気中の多数の反応性気体の消失源でもあるため,CH4は様々な微量気体の変動にも影響を与える[Lelieveld et al., 2002]。CH4の大気中での寿命は約9年と比較的短く,その排出削減は効率的に気候変動の緩和に貢献すると考えられている。

CH4 の生成は, 嫌気的環境下による微生物活動 (メタン細菌による), 有機物の熱分解, 地殻内部で 無機炭素化合物からの化学反応(非生物生成)によ って起こる。微生物活動による CH4 の発生源として, 湿地や湖沼, 海洋, シロアリ, 反芻動物, 水田, 廃棄 物の埋立地などが挙げられる(図1)。森林火災や薪 燃料などのバイオマス燃焼による CH4 放出は, 有機 物の熱分解に当たる。また, 化石燃料など地殻に含 まれる CH4 は, 微生物活動, 有機物の熱分解, 非生 物生成の全生成過程に起因するものが含まれ, 地殻 から自然に漏洩するとともに, 化石燃料の採掘や輸送などの人間活動によっても大気中へと放出されている。化石燃料の不完全燃焼によっても CH4 は生成される。このように, CH4 の発生源は自然起源から人為起源まで多岐にわたる。産業化前と比べて大気中の CH4濃度は二倍以上に増加したが, エネルギー消費や食糧生産の拡大など, 人間活動による放出の増加が原因と考えられている[Ghosh et al., 2015]。

大気からの CH4の消失の約 90%は OH による酸化 により,大部分が対流圏で生じる。短寿命(秒オーダ ー)であるOH時空間変動が非常に大きく、広域の平 均的な大気中濃度を高精度で観測することは難しい。 そのため,化学気候モデルによる推定[Voulgarakis et al., 2013]または人為放出量が比較的良く分かってい るメチルクロロホルム(CH3CCl3)の濃度観測にもとづ <推定[Montzka et al., 2011; Patra et al., 2020]が一般 的に用いられ, CH4 の消失量はその結果から推定さ れる。その他の CH4 消失は, 土壌中のメタン酸化細 菌による分解や成層圏での化学反応である。成層圏 では O(<sup>1</sup>D)や Cl と反応して消失する。Cl との反応は 海洋上の大気境界層内でも生じている可能性が指 摘されているが、その寄与の大きさはよくわかってい ない[Allan et al., 2007; Hossaini et al., 2016]。大気中 の CH4 濃度のモニタリング観測は海外の研究機関に よって 1980 年前後に開始された[e.g., Fraser et al., 1981]。国内でも,先行していた CO2 濃度の観測を拡 張させて, 1987 年に国立極地研究所や東北大学に よって南極昭和基地での CH4 濃度の観測が開始さ れた[Aoki et al., 1992]。その後も, 南北両極域やアジ ア域,シベリア域,太平洋域など広域をカバーする観 測ネットワークが,地上観測所,航空機,船舶など複 数のプラットフォームを駆使して, 東北大学, 国立極 地研究所,気象庁および気象庁気象研究所,国立 環境研究所などによって拡大された[Matsueda & Inoue, 1996; Tohjima et al., 2002; Machida et al., 2008; Wada et al., 2011; Terao et al., 2011; Niwa et al., 2014; Morimoto et al., 2017; Sasakawa et al., 2017]。CH4 濃 度の観測は水素炎イオン化型検出器を備えたガスク

ロマトグラフ(GC-FID)による測定が用いられてきたが, 近年はキャビティリングダウン分析計(CRDS)も広範 に用いられるようになっている[*Nara et al.*, 2012]。国 際標準スケールが確立する以前から,国内で独立に CH4 濃度の標準スケールが開発・維持されてきたこと も特筆に値する[*Aoki et al.*, 1992; *Terao et al.*, 2011]。

大気中の CH4 濃度の経年的な変動は,この数十 年にわたって長らく議論の的であり,その要因につい ての理解は十分ではない。1980 年代に CH4 濃度は 10 ppb/年を超える増加率を示していたが,1990 年代 に入ると増加率が徐々に減少し,2000 年代には CH4 濃度はほぼ一定となった[e.g., *Dlugokencky et al.*, 2003]。ところが,2007 年から CH4 濃度は再び増加に 転じ[*Rigby et al.*,2008; *Dlugokencky et al.*,2009], 2014 年には1980 年代以来初めて,増加率が10 ppb/ 年を超えた[*Nisbet et al.*,2019]。最近では,このような 過去数十年間の CH4 濃度の長期変動は主に人為放 出源の変動が要因であったと考えられている [*Chandra et al.*,2021; *Jackson et al.*,2020]。

このような全球規模での CH4 濃度の経年変動は, 国内の研究機関による報告にも共通して見られる特 徴である[Tohjima et al., 2002; Terao et al., 2011; Umezawa et al., 2014]。一方, 冬季の中国からの高濃 度気塊の到来[Tohjima et al., 2002, 2014; Wada et al., 2011],夏季の北西太平洋および日本上空への東ア ジア・南アジア起源の気塊の到来[Umezawa et al., 2012a, 2014; Niwa et al., 2014], 東南アジア域での化 石燃料や火災起源の高濃度気塊の検出[Nara et al., 2014, 2017], シベリア上空における鉛直勾配の経年 変化[Sasakawa et al., 2017], 対流圏上部と成層圏下 部における季節変動[Sawa et al., 2015], 成層圏にお ける鉛直分布[Sugawara et al., 1997; Goto et al., 2017b], 北極域における長期観測[Morimoto et al., 2017]など、国内独自の観測プラットフォームで捉えら れた興味深い CH4 濃度変動の報告も多い。このよう に,我が国の観測は海外の研究機関の観測とも補完 的であり、かつ重要な CH4 の放出源に対して感度の 高い観測地点を有していると言える。

全球にわたる CH4 の放出量と消失量の推定は 様々な方法で試みられてきたが,現在では CO2 と同 様に, GCP が全球 CH4 収支の統合解析を定期的に 報告している[Saunois et al., 2020]。トップダウン法は, 大気中のCH4濃度の高精度測定に拘束されるため、 全球収支の均衡の正確さに信頼がおけるが, 放出源 や消失源の内訳についての直接的な情報は得られ ない。ボトムアップ法は、個々の CH4 放出や消失過 程の推定量を提供するが、その総量に拘束はなく、 自然起源の CH4 放出量について過大評価の傾向が ある。実際のトップダウン法の解析では、ボトムアップ 法による複数のCH4の放出や消失の推定データを先 験情報として,大気輸送モデルで計算した大気中濃 度にもとづいて放出量や分布の最適化(逆解析)が 行われている[e.g., Patra et al., 2016; Chandra et al., 2021]。このような統合的な解析を通して、相互にフィ ードバックを繰り返すことが重要である。

個々のCH4の放出や消失過程を反映するトレーサ ーを利用すれば、大気観測にもとづいて CH4 放出源 や消失源の内訳についての情報も得られる。CH4の 放出源がその種類によって特徴的な同位体比を持 っため, CH4の放出源を微生物起源, 化石燃料起源, バイオマス燃焼起源と大別し,地域スケールで複数 の CH4 放出源の起源別割合の推定や[Umezawa et al., 2012b; Fujita et al., 2018], より広域スケールで CH4 放出源の起源別変動を推定する研究が行われ てきた[Morimoto et al., 2017; Fujita et al., 2020]。ま た,成層圏におけるCH4の消失反応の寄与について も同位体測定が効果的に利用された[Sugawara et al., 1997]。一方で、同位体の大気観測データが増えてく るとともに,個々の放出源の同位体比の特徴に地域 的な変動が大きいことや[Sherwood et al., 2017], 消 失過程での同位体分別が限られた実験結果に依存 しているなど,解析の要となる端成分の値の不確実 性が推定精度向上の制約となることも再注目されて いる。また,研究グループ間の同位体測定の系統差 を相互比較から明らかにし、世界のデータを統合し て解析するための取り組みも始まった[Umezawa et al., 2018]。同位体以外にも、不完全燃焼で生じる CO を バイオマス燃焼起源 CH4のトレーサーとして利用する ことや、化石燃料の採掘や輸送にともなって放出され る炭化水素(特にエタン)を化石燃料起源 CH4のトレ ーサーとして利用することにも注目が集まっている [Simpson et al., 2012; Hausmann et al., 2016; Worden et al., 2017]。

以上のように、大気中の CH4 濃度の変動の理解は まだ不十分であり、CH4 の全球収支についても個々 の放出源別に見ると不確実性が大きい。特に、自然 起源のCH4放出量の推定精度の向上が必要であり, 地球温暖化に伴う将来予測の精度向上のためにも, 陸上生態系モデルや地球システムモデルの研究の 重要性は高い。CH4 放出量の起源別推定の高度化 のため,同位体や炭化水素などを同時に扱う大気輸 送モデルの開発も望まれる。CH4の主な消失源であ る OH の変動の不確実性を低減することも、 CH4の全 球収支の高精度化に重要である。大気中の CH4 濃 度や同位体の観測では,国内で蓄積されたノウハウ や地の利を活かした観測が独自に展開されている。 パリ協定のもとで地域別や国別の人為的排出量の検 証が求められており、また、2021年には、新たな国際 枠組みとしてグローバル・メタン・プレッジが発足し、 2030年までに世界のCH4放出量を2020年比で30% を削減することが目標とされた。これまでよりも高頻 度・高解像度の観測データの取得と大気輸送モデル を組み合わせた解析が望まれ,高コストな観測や解 析システムをどのように継続的に維持・発展させてゆ くかが大きな課題である。大気中の CH4 濃度の増加 率は依然として高い値を維持しており,気候変化や 頻発する異常高温によって,北極域の湿地や永久凍 土からの CH4 放出がどのように応答するのかにも注 視が必要である[e.g., Yokohata et al., 2020]。

### 4. 一酸化二窒素(N₂O)

N<sub>2</sub>O は温室効果と成層圏オゾン層破壊の両方に 直接関与する成分の中では最も大気中濃度が高く, 2019 年の全球平均濃度は 332.1ppb で, 0.95ppb/年 で増加している[Canadell et al., 2021]。N<sub>2</sub>Oの濃度増加の原因とそれを支配する地球規模の循環メカニズムの解明および将来予測は、大気観測、発生源観測、プロセス研究、モデル研究によって行われている(図1)。

CO<sub>2</sub> や CH<sub>4</sub> の大気観測と同様に, NOAA (米国海 洋大気庁)や AGAGE(先進的全球大気気体実験) に代表される全球観測ネットワークによって,対流圏 大気中の N<sub>2</sub>O の時空間分布が 1980 年頃から系統 的に調べられている[Prinn et al., 2000]。我が国でも, 東北大学,国立環境研究所,国立極地研究所など によって、国内、北極圏、南極における地上観測、航 空機を用いた広範囲の緯度・高度分布の観測が行 われ,高品質のデータ提供に貢献している[Tohjima et al., 2000; Ishijima et al., 2001]。大気の直接観測が 開始される以前の期間については、極域フィルン(氷 床上部の空隙層)や氷床コアに保存された過去の大 気の分析が約80万年前までさかのぼって行われ、人 為発生源の影響や自然発生源の変動についての知 見が蓄積されつつあり,我が国の研究者が先駆的な 役割を果たしている[Machida et al., 1995; Oyabu et al., 2020]。N<sub>2</sub>O が紫外光や活性酸素原子(O(<sup>1</sup>D))によ り分解される成層圏においても, 航空機や大気球を 用いた緯度・高度分布の観測が行われている。国外 の研究のほとんどは散発的な観測であるのに対し、 約 30 年にわたって継続的な観測を行っている我が 国の研究グループの大気球観測は特筆に値する [Nakazawa et al., 2002].

大気中 N<sub>2</sub>O の安定同位体比は,種々の発生源や 消失過程とその収支を反映する指標であるが,濃度 に比して観測例は少ない。国外ではフィルンやアイス コア,長期保存された大気試料の分析による 80 年前 から現代までの同位体比変動測定が行われた [Prokopiou et al., 2017]。また最近,スイスの研究グル ープがレーザー分光計を用いた高時間分解能の定 点観測を高山で始めている[Yu et al., 2020]。我が国 では,東京工業大学と国立環境研究所,国立極地 研究所が共同で,1990 年代後半から地上大気観測 を複数地点で継続的に行っているほか[Toyoda et al., 2013], フィルン試料の分析[Ishijima et al., 2007], 成 層圏における緯度・高度分布およびその長期変化 [Toyoda et al., 2018]についても独自の研究が行われ ている。

長期にわたって開発されてきた大気中濃度の観測 技術は成熟の域に達しているが,長期間におよぶ変 動の精密な解析を行うための精度および確度の維 持・管理には地道な不断の努力が必要であり,研究 室間の濃度較正の相違の解消,赤外レーザー分光 計を用いた高時間分解能での高精度観測などが今 後の課題として挙げられる。安定同位体比について は特にレーザー分光法の分析精度に改善の余地が 残されているほか, N<sub>2</sub>O 同位体比の国際標準物質の 整備,濃度観測と同様の全球ネットワーク観測が今 後の課題である。

N<sub>2</sub>O の最も大きい発生源は自然起源, 人為起源 いずれについても土壌である。N2O は微生物の窒素 代謝(硝化,脱窒など)で生成するため,自然土壌で は高温多湿の熱帯土壌が, 人為起源では無機・有 機の窒素肥料が投入される農業土壌が主な対象とな り、土壌から大気へのN2O放出速度(フラックス)観測 や土壌ガスの採取観測が行われてきた。我が国では 栽培,施肥,水補給などが詳細に管理された畑や水 田でのフラックス観測や,家畜排泄物の処理(堆肥化) 過程におけるフラックス観測に特色があり、国際的な N<sub>2</sub>O 放出係数(EF)の推定に貢献している[Akiyama et al., 2006]。発生源の安定同位体比観測は全球規 模での収支解析を行う上で欠かせないものであるが, フラックス観測に比べると研究例は少ない。国内外の 研究で,肥料や土壌の種類,土壌水分量によって硝 化と脱窒の寄与率や脱窒による N<sub>2</sub>O 消費の割合が 変化する様子が同位体比観測によって捉えられてい る[Toyoda et al., 2011; Ostrom et al., 2010]。 最近は赤 外レーザー分光計を用いて発生源現場での高時間 分解能の同位体比モニタリングも行われるようになっ てきた[Wolf et al., 2015]。

土壌に次いで重要な発生源として自然起源では

海洋が挙げられる。東部熱帯太平洋やアラビア海な どの湧昇域を除くと、海洋では陸域と比べて弱い発 生源が広く分布しているため、大気へのフラックスを 直接検出するのは難しく、表層海水の飽和度と風速 に依存するガス交換の経験式に基づいた推定が行 われてきた。様々な海域で各国の研究者により行わ れた観測結果のデータベース化も進んでいる[Bange et al., 2009]。安定同位体比は後述する N<sub>2</sub>O の生成 機構の推定に用いられるほか、表層海水中のN<sub>2</sub>Oの 収支解析にも利用することができ、上述した経験式 に頼らない N<sub>2</sub>O フラックス推定も試みられている [Popp et al., 2002]。

農業土壌以外の人為起源は全球収支への寄与が 比較的小さい。その中でも、化石燃料やバイオマス の燃焼過程については、直接的発生源のみならず、 燃焼で生じた NO<sub>x</sub>が硝酸エアロゾルとして地表へ沈 着して陸域・水圏微生物による N<sub>2</sub>O 生成を誘起する という間接的発生源としても注目されている。直接放 出については工場や自動車の排ガス観測が行われ、 EF の推定に利用されている[*De Soete*, 1993]。安定同 位体比の観測は我が国の研究を含む数例に限られ ている[*Toyoda et al.*, 2008 など]。

現在および将来の全球 N<sub>2</sub>O 収支の精細化に資す るため、未知の N<sub>2</sub>O 生成プロセスや、既知のプロセス の地球環境変化に対する応答に関する研究が行わ れている。微生物による N<sub>2</sub>O 生成は、これまで硝化 細菌によるアンモニア酸化過程または脱窒細菌によ る硝酸還元過程によると考えられてきた。しかし、硝 化を行う古細菌(アーキア)、脱窒を行う糸状菌(カビ) による N<sub>2</sub>O 生成、N<sub>2</sub>O 分子内の N が 2 種類の異な る基質に由来するハイブリッド機構による生成が環境 中で起きていることが報告されている[Laughlin & Stevens, 2002; Santoro et al., 2010]。これらの機構の 解明に、生化学的研究に加えて安定同位体比を用 いた研究も貢献している。

モデルによる将来の GHG の消長予測において, 大気中 CO<sub>2</sub> 濃度の増加が直接・間接的に微生物が 関わる N<sub>2</sub>O 発生源にどのような影響を及ぼすかにつ いての研究の必要性が認識されている。陸域の大気 CO2 濃度増加実験では, 農地からの N<sub>2</sub>O 放出が増 加することが示された[Dijkstra et al., 2012]。海洋では CO2 溶解に伴う酸性化を模擬する実験がボトルスケ ールで行われているが, 最近我が国の研究者らが既 往研究とは逆に酸性化で N<sub>2</sub>O 生成が増加することを 報告し[Breider et al., 2019], 今後のさらなる研究が待 たれる。

大気,海洋,陸域のそれぞれについて N<sub>2</sub>O の生 成・消失反応や輸送を定量化した大気輸送モデル や生態系モデルが開発されており,我が国でも先進 的な研究が行われている。成層圏では、比較的定量 化しやすい光化学反応が N2O の分布を支配し, 鉛 直方向の濃度差が大きいことからモデルが観測値を よく再現するのに対し、対流圏では発生源の分布と 強度の不確実性が大きく,時空間変動が小さいため モデルによる再現は難しく, 逆解析による発生源の 推定への期待が高まっている[Saikawa et al., 2014]。 発生源の詳細な識別には安定同位体比の利用も有 効である。 海洋では生物による 窒素代謝を組み込ん だモデルにより N2O の分布がおおよそ再現されてい るが[Martinez-Rey et al., 2015], 前述した微生物過程 の環境変化に対する応答の不確実性が大きいため、 将来予測はいまだ困難となっている。陸域において も生物過程の取り扱いが重要な鍵となっているが、観 測データが限られるため,国際的なモデル間比較に よる検証と改良の努力が続けられている[Tian et al., 2018]。将来は、各領域のモデルが有機的に結合し た地球システムモデルによる全球 N<sub>2</sub>O 循環の解明が 期待される。

### 5. ハロカーボン

ハロカーボンは分子内にハロゲン原子を含む 炭化水素として定義される化合物群で,大気中に は様々な成分が存在する。地球温暖化や成層圏オ ゾン破壊の観点では,大気中寿命が概ね一年以上 の長寿命大気成分が主な対象となる。

長寿命ハロカーボンの大気組成はこの十年で

大きく変動した。ODS としてモントリオール議定 書の規制対象となっている特定フロンの大気中 濃度は引き続き減少し,一方でその代替などとし て使われるハイドロフルオロカーボン (HFC)の 濃度が急激に上昇した。こうした規制対象物質に ついて,「モントリオール議定書が機能している か」を定量的に評価することが,ハロカーボン関 連研究の主なゴールになっている。本章では,こ のゴールに向かって精力的に行われてきた最近 の研究事例と今後の課題を紹介したい。

四塩化炭素(CCl<sub>4</sub>)は特定フロンの原料などと して使われてきたが、ODS として特定フロンとと もにモントリオール議定書によって規制された ことでその消費量は大きく減少した。しかし, 2010年代前半には、消費量の減少ほどには大気中 濃度が低下していないことが全球地上観測ネッ トワークによる大気観測データと大気輸送モデ ルによる解析から明らかになった[World Meteorological Organization (WMO), 2014]。この収 支の不均衡の原因を探るため,発生源と消失源の 両面から研究が行われた。発生源については、工 業的な生産量などの発生源情報が再整理され、塩 化メチル製造時の漏出など,新しい発生源が重要 であることが見いだされた[Sherry et al., 2017]。一 方, 消失源についてはフィールド観測データの再 解析などから土壌と海洋の消失源の両方が以前 は過大評価されていたことが明らかになり、CCl4 の大気寿命は約26年から約35年と再評価された [*Rhew & Happell*, 2016; *Butler et al.*, 2016]。このよ うに、大気観測から大気輸送モデル、発生源、消 失源にまたがる一連の研究の進展によって,放出 源と消失源のギャップが大幅に解消された好例 と言える。

また,トリクロロフルオロメタン(CFC-11)も 近年大きな注目を集めた。CFC-11もモントリオー ル議定書の製造規制により,90年代から大気中濃 度は減少傾向にあった。しかし,大気中濃度の減 少率が2013年頃から予想外に停滞していること

が大気観測から見いだされた[Montzka et al., 2018]。 この変化の原因は、大気への放出量の増加、それ も全廃後の新たな製造に伴って放出量が増加し ている可能性が高く, さらにその発生源の一部が 東アジアのどこかにあると考えられた。東アジア で CFC-11 のモニタリングを実施している日本と 韓国の観測サイトでは、実際に CFC-11 濃度のス パイク状の増加が頻繁に観測されており、こうし た大気観測データに基づく逆解析計算によって, CFC-11 大量放出は中国東部で起こっていたとい う発生源の特定につながっている[Rigby et al., 2019]。これに続く研究では、中国東部からの CFC-11 放出量が 2018 以降, 急激に減少し, 2019 年に は増加前のレベルに戻ったことが明らかとなっ た[Park et al., 2021]。この CFC-11 の事例は、大気 観測が環境問題の発見から解決にまで繋がった 好例であり,日本の貢献も大きい。

地域スケールの放出量やその分布を推定する ための研究は、東アジア以外にもヨーロッパ [Schoenenberger et al., 2018], アフリカ[Kuyper et al., 2019], インド[Say et al., 2019]などを対象として広 く適用され、最近のハロカーボン研究の主流とな っている。このような研究では、発生源の比較的 近傍で高濃度スパイクを ppt レベルで検出するた めの高精度かつ高頻度な測定システム,そして, 高頻度な大気観測データから発生源を推定する ための逆解析手法が不可欠である。ハロカーボン の大気中濃度の測定については、研究レベルで利 用可能な市販の分析装置がないため, AGAGE, NOAA などの全球観測ネットワークや国立環境 研究所において独自の測定装置が開発されて運 用されている。従来、ハロカーボンの低温濃縮に は蒸気圧縮式冷凍機が用いられてきたが、最近は 高効率なスターリング冷凍機を利用した大気濃 縮装置の開発が進められ、長期間にわたってより 安定した大気観測に貢献すると考えられる。一方, 逆解析手法については、この十年で放出量の推定 精度が飛躍的に向上した。初期の逆解析では、人

ロ分布などから推定された発生源分布の先験情報が必要だったが[Stohl et al., 2009],最近では水 平一様な発生源分布からであっても、大気観測デ ータにもとづく発生源分布の推定が可能になっ ている[Rigby et al., 2019]。

ここまで, ODS としてモントリオール議定書の 規制対象となっている成分について述べた。1989 年に発効されたモントリオール議定書は、幾度か の改正を経て段階的に規制が強化されてきたが, 2019 年にはキガリ改正が発効され, HFC が対象 成分に加えられた。HFC は ODS ではないが強力 な GHG であり、モントリオール議定書による ODS の規制の代替成分として開発されたという 経緯もあってモントリオール議定書の対象とな った。また、ジクロロメタンやクロロホルムなど、 人為起源の極短寿命物質については、比較的短寿 命のためモントリオール議定書の規制対象では ないが,近年の放出量の増加によるオゾン層への 影響が懸念されている[Hossaini et al., 2017; Fang et al., 2018]。このような大気成分についても、こ れまで特定フロンなどの研究に利用されてきた 手法を応用できると考えられる。一方、塩化メチ ルやクロロホルム,ブロモホルムなど,自然生態 系が関わる ODS については,発生・消失メカニズ ムに不明な点が多く,フィールド調査等によるプ ロセス研究を進める必要がある。

#### 6. 温室効果気体の衛星観測

人工衛星による GHG の観測は 2000 年代に入っ て飛躍的に拡大した。対流圏の GHG の観測は,太 陽放射の後方散乱光を利用した観測と地表面およ び大気からの赤外放射光を利用した観測に大別され る。衛星による対流圏の CO<sub>2</sub> 濃度の観測は,赤外サ ウンダである TOVS/HIRS の観測スペクトルの気温プ ロファイル導出に利用される 15-µm 帯付近の CO<sub>2</sub>の 吸収線を利用した例[*Chédin et al.*, 2003]が最初で あるが,赤外放射光による観測は地表付近の感度 が相対的に乏しくなるため,主に中部対流圏から 上部対流圏の濃度の観測となる。一方,太陽放射 の後方散乱光を利用した観測は,地表の太陽反射 光を利用するため地表付近における対象気体の濃 度変動にも感度を持つという利点がある。短波長赤 外スペクトロメータである ENVISAT/SCIAMACHY に よる CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>のカラム平均濃度 XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub>の観 測[*Buchwitz et al.*, 2005]以来,太陽放射光を利用し た GHG のカラム濃度観測が主流となっている。

SCIAMACHY は、衛星による対流圏の GHG 観測 の可能性を広げた先駆的なセンサーである。 SCIAMACHY による XCO2の観測によって、植生の 光合成による夏季の濃度減少など,地表付近の CO2 濃度の季節変動が衛星からも詳細に観測できること が示された[e.g., Barkley et al., 2006]。また, SCIAMACHY による XCH<sub>4</sub>の観測によって, 湿地, 稲作,牧畜,石炭採掘などの地表放出源に由来する CH4の高濃度領域[e.g., Frankenberg et al., 2011]や 水田からの放出に由来する地表付近の CH4 の季節 変動[e.g., Hayashida et al., 2013]を衛星で直接捉え られることが示された。一般に,太陽放射の後方散乱 光を利用した観測の場合、光路中に存在する雲・ エアロゾルの存在が気体濃度導出の大きな誤差 要因となり得る。CH4 については「proxy 法」 [Frankenberg et al., 2005]を用いることで、雲・エア ロゾルの影響が大きく通常は観測が難しい領域 においても、XCH4 を比較的精度よく導出するこ とができ、衛星による対流圏 CH4 濃度観測データ の活用の機会が広がった。空間分解能は30km×60 kmと比較的粗いものの, SCIAMACHY による XCO<sub>2</sub>, XCH4の観測研究・データ利用研究が進んだことで、 2009 年に打ち上げられた GOSAT/TANSO-FTS のデ ータ処理・データ利用研究は想定よりも早く進んだと 言える。TANSO-FTS の短波長赤外(SWIR)バンドの XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> プロダクト導出アルゴリズムは国立 環境研究所をはじめ複数の研究機関で研究・開発 されており[Yoshida et al., 2011, 2013; O'Dell et al., 2012; Cogan et al., 2012; Parker et al., 2011; Butz et al., 2011], XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub>観測の高精度化が大きく
進展した。直下視 10.5 km×10.5 km の空間分解能 で観測が可能な TANSO-FTS [Kuze et al., 2009]に続 き, 1.29 km×2.25 km で観測が可能な OCO-2 [Crisp et al., 2017]が 2014 年に打ち上げられ, これらの対流 圏の GHG 観測に特化して設計されたセンサーの 登場により,さらに多くの研究者に衛星観測 GHG データが利用されることになった。高空間分解能化も 進んだことで, OCO-2 では発電所の風下側で高濃度 CO2を捉えられるなど、GHG のポイントソースの検出 ができるまでになった[Nassar et al., 2017]。2016年に は、CO2 観測に特化した中国初の衛星である TanSat が打ち上げられた[Yue et al., 2016]。TanSat には、OCO-2と同様に、回折格子型分光計 ACGS が搭載されており、2km×2kmの高空間分解能で XCO2の観測が可能である[Bao et al., 2020]。2017 年に打ち上げられた Sentinel-5P/TROPOMI はフット プリントサイズ 7 km×7 km, 観測幅 2600 km の高空間 分解能・高頻度で XCH4 を観測することができ, 天然 ガス・石油プラントからの CH4 漏出の検知に成功して いる[Schneising et al., 2020]。OCO-2 と同一の分光 計を搭載する OCO-3[Eldering et al., 2019]は, 2019 年5月に ISS に取り付けられ,8月より定常観測 を開始した[Taylor et al., 2020]。OCO-3 は, ISS に 搭載されていることにより,局所的なホットスポ ットの XCO<sub>2</sub> の二次元イメージ (85 km×85 km) や XCO<sub>2</sub>および SIF の時空間変動を捉えることが可 能である[Taylor et al., 2020]。

衛星観測 GHG データを研究目的で利用するに あたっては,地上観測等の独立したデータとの比 較を通してデータ質を検証する必要がある。衛星 観測 GHG データの検証解析に広く利用されてい る地上観測ネットワークとして,TCCON [*Wunch et al.*, 2011], NDACC [*De Mazière et al.*, 2018]があ る。TCCON による SWIR バンドを利用したカラ ム全量観測 (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, HF, CO, H<sub>2</sub>O, HDO) は 2004 年に開始され, 2021 年現在,全球に 30 サ イトが展開されている。NDACC の歴史は古く, 1991 年から全球の観測基地で様々な微量気体や エアロゾルの濃度,紫外線放射量の観測を行って おり,GHG 濃度の高度分布の観測も含まれる。最 近では,Bruker 社の EM27/SUN フーリエ分光計を 多地点展開して GHG (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O)のカラム 全量観測を行う新たなネットワーク COCCON の プロジェクトも始動している[*Frey et al.*, 2019]。

衛星観測による GHG データについて, CO2 の放 出源・吸収源の逆解析における有用性に関する議論 が始まった当初は、衛星による気体濃度の観測確 度・精度が肝であった。Rayner & O'Brien [2001]は、 CO2 のカラム量に求められる観測精度は全球観測で 2.5 ppm, 海上のみでは 1.5 ppm 以上であると見積も った。Pak & Prather [2001]は、太陽掩蔽法センサ を想定した上部対流圏・低空間分解能のCO2観測で あっても低緯度では3ppmの精度でも有用であるとし た一方, 高緯度では 1 ppm 以下の観測精度が必要 であるとした。2021 年現在, 運用中の TANSO-FTS, OCO-2 は CO<sub>2</sub>の逆解析に十分有意な情報をもたら しうる確度・精度で XCO2 を観測することが可能であ る[e.g., Zhou et al., 2016; O'Dell et al., 2018]。GOSAT の登場以来,衛星観測 GHG データを利用した CO2 のフラックス推定に関する研究は盛んに実施されるよ うになった[e.g., Houweling et al., 2015; Kondo et al., 2016; Deng et al., 2016; Schuh et al., 2019; Chen et al., 2021]。一方, CH4 の収支解析においても, 広域観測 が可能な衛星の XCH4 データを利用することで、CH4 のフラックスの推定誤差が特に地上観測が乏しい領 域で有意に低減することが示されている[e.g., Fraser et al., 2013]。しかし、CH4の大気中の変動には大気 輸送の影響も大きいため, 観測される CH4 の変動が 直下の放出源の変動を直接的に反映するとは限らな いことも指摘されている[Houweling et al., 2017]。2018 年には, GOSAT/TANSO-FTS の後継機である GOSAT-2/TANSO-FTS-2 も打ち上げられ, 膨大な衛 星観測 XCO<sub>2</sub>, XCH<sub>4</sub> データが利用できるようになっ ている。しかしながら,各センサー間の濃度バイアス の扱い,同一センサーのデータに存在する時空間方 向に非一様な濃度バイアスの影響など、衛星観測

データの逆解析への利用には克服すべき課題も 存在する。衛星観測 GHG データはすでに十年以 上の長期間データがあり今後も蓄積されていく が,その大量のデータをフラックス推定研究に有 効に活用する手法について,モデル開発研究,衛 星アルゴリズム研究の両面から検討を進めてい く必要があると考える。

先に述べた通り,赤外放射光による観測は地表 面温度との温度差が小さい地表付近では感度が 相対的に乏しくなるが、大気層の気温の違いを利 用して主に中部対流圏から上部対流圏の気体濃度 の高度分布情報を得ることができる。そのため、CH4 やN2Oなど,化学反応や光解離を伴いながら大気中 を長距離輸送される GHG については,赤外放射光 を利用した鉛直分布観測が果たす役割は大きい。例 えば,モンスーン循環に伴う強い上昇流のため地表 で放出された高濃度 CH4 の空気塊が上空に輸送さ れやすい南アジアにおいては、XCH4の季節変動が 地表フラックスおよび地表付近の CH4 濃度の季節変 動と連動せず,上空の濃度変動を考慮しないと説明 できない領域が存在する[Chandra et al., 2017]。実際, AIRS および TANSO-FTS による中部対流圏から上 部対流圏の観測によって、6月から9月のモンスーン 期に,南アジア上空の 300 hPa 付近で CH4 が高濃度 となる様子が捉えられている[Xiong et al., 2009; Belikov et al., 2021]。また, AIRS, TANSO-FTS, IASI の CH4 データ, TANSO-FTS の N2O データの解析で, アジア起源の高濃度 CH4 および N2O の空気塊がア ジアモンスーン循環によって地中海東岸の上部対流 圏に輸送されることが明らかになっている[Ricaud et al., 2014; Kangah et al., 2017]。濃度の鉛直勾配が相 対的に小さい CO2 についても, 地上観測 CO2 データ に加えて TES の中部対流圏の CO2 データを利用す ることで、CO2のフラックス推定に有意な情報をもたら しうることが示されている[Nassar et al., 2011]。赤外放 射光観測センサーの高波長分解能化が進むこと で濃度の高度情報がより高分解能で得られるよ うになれば、さらに発展的な解析につながると期待

される。また, CO や NH3 など GHG の放出源解析に 援用できる他成分の同時観測が可能であることも赤 外放射光観測の強みとなりうる。

さらに近年,衛星による N2O や CH4の同位体の観 測研究も進みつつある。高波長分解能観測が可能 な衛星搭載のフーリエ分光計である ACE-FTS は、高 度6kmから成層圏でのCH3Dと<sup>13</sup>CH4の観測[Buzan et al., 2016]に, さらに高度 5 km から成層圏での <sup>15</sup>NNO, N<sup>15</sup>NO, NN<sup>18</sup>O の観測[Bernath et al., 2017] に成功している。ACE-FTS は太陽掩蔽法センサーの ため,水平分解能が250km以上と粗く,中部対流圏 より下層の観測はできないが、同位体はGHGの放出 起源の解明や消失・輸送過程の解析に有用なデー タである。CH4とN2Oの同位体は短波長赤外より赤 外放射光の波長帯の方により強い吸収帯を持ってい るが, 地表付近の同位体情報を得るためには短波長 赤外の吸収帯を利用する方が有利であるため, TANSO-FTS および TANSO-FTS-2 を想定した導出 検討も進められている[Malina et al., 2018]。

太陽放射の後方散乱光,赤外放射光によるGHG および関連物質の衛星観測にはそれぞれ利点があ るが,両方の波長の吸収帯を利用してより高精度に 下層の GHG 濃度を導出することが可能となる [Worden et al., 2015; Kuze et al., 2020]。短波長赤外 波長と赤外波長では濃度導出の際の誤差の要因が 異なること、多くは異なる検出器を利用しておりセン サーに起因するスペクトル誤差の特徴が違うなど、克 服しなければならないことも多いが、両者の利点を活 かせる観測研究が進むことを期待したい。

## 7. おわりに

本稿では、重要な GHG と ODS である CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O およびハロカーボンの全球循環の研究 を中心に、国内外の研究の現状と課題を整理した。 その内容を表1にまとめた。これまでの様々なア プローチの研究により、GHG や ODS の研究は大 きく進展してきたが、気候変動への取り組みが社 会的・国際的にますます重要視されるなか、GHG と ODS の放出源や消失・吸収源の定量的な把握 と循環メカニズムの理解は大気化学が担う重要 な責務である。現状では、これらの気体の全球収 支の定量評価には相当の不確実性が残されてお り、理解の不十分な現象も多い。全球・大陸スケ ールから地域・国別・都市スケールへ、また、放 出起源別の収支評価へと、解析の精緻化は着実に 進んではいるものの、個別の研究における課題は まだ多い。多様な測定技術を駆使して観測データ を拡充するとともに、モデル解析の高度化を進め、 増大する多様なプラットフォームからの観測デ ータをさらに有効活用する必要がある。個別の研 究手法の着実な進展とともに,関連研究グループ の連携を強化して統合的解析を進めることも重 要であろう。

# 8. 略語リスト

ACE-FTS: Atmospheric Chemistry Experiment-Fourier Transform Spectrometer AGAGE: Advanced Global Atmospheric Gases Experiment AIRS: Atmospheric Infrared Sounder

ACGS: Atmospheric Carbon-dioxide Grating Spectroradiometer

## 表1 GHGとODSの研究の現状と将来展望のまとめ

究極のゴール は何か。	・GHG や ODS の大気中濃度の変動要因を放出源や消失・吸収源の観点から定量的に理解し、 循環メカニズムの理解にもとづいて正確な将来予測を可能とすること ・パリ協定やモントリオール議定書にもとづく国際社会の取組に対し、対象気体の放出起源や分 布の情報を正確に提供し、実効的な排出削減策の立案に貢献すること
この 10 年での 世界的な動向 や日本での研 究の強み	・継続的に発展してきた大気観測,排出インベントリ,大気輸送モデル,陸域生態系モデルなどを活用し,トップダウン法とボトムアップ法の統合比較解析が可能になり,そのための国際プロジェクトが組織されて日本の研究者も多く参加してきた ・日本の GHG 観測衛星である GOSAT/TANSO-FTS による CO <sub>2</sub> や CH <sub>4</sub> のカラム平均濃度のデータ処理・利用研究が大きく進展し,後続の国内外の衛星観測データも利用可能となって,衛星観測データを利用した地表面フラックスの推定研究も進展した ・パリ協定の発効を受け,GHG の人為排出量を地域・都市域スケールで把握するための観測・ モデル研究が盛んに行われている ・GHG や ODS の放出源としてアジア地域の重要性が高まるなか,アジア地域の放出源変動を 高感度に検出できる日本の観測データの価値は高く,継続的で高品質なデータ提供が求められている ・日本国内の観測では,地上のみならず,大気球,航空機,船舶など,独自の観測プラットフォームが開発・維持されるとともに,GHG の循環解析に有効な関連トレーサーの観測も独自の技術 開発にもとづいた成果が報告されている ・大気輸送モデルや陸域生態系モデルが日本の複数の研究グループで独自に開発され,世界 的にも高い認知度を得ている
現在の重要な ギャップ	・全球スケールでは大陸内陸部や熱帯地域の観測データが依然として不足しており、地域・都市 域スケールではさらに高密度の観測データが期待されているが、高精度観測の維持や解析シス テムの整備、新たな観測の展開などには技術的・コスト的な課題が大きい ・多様なプラットフォームによる観測データが飛躍的に増加しているが、統一的なデータの質の担 保やデータを最大限活用するためのモデルの高度化など、多様なデータを地表面フラックスの 逆解析に十分に活用するための課題がある
それらを踏ま え, 今後 10 年 の研究をドライ ブする key question or 作 業仮説	<ul> <li>・パリ協定やモントリオール議定書が機能しているかをどのように評価するか?どのような時空間 密度・測定精度・観測プラットフォームの観測データが必要なのか?多様な観測データを活用す るためのモデル解析システムをどのように構築すべきか?</li> <li>・気候変動,海洋酸性化,オゾン層破壊・回復などに伴って,海洋と陸域生態系のGHGとODS の放出源・吸収源,大気化学反応はどのように変化するか?特に劇的な変動が起こりうる北極圏 の湿地,永久凍土,森林火災がどのような影響を受けるのか?</li> </ul>
主な連携相手	GCP, RECCAP, NOAA, AGAGE, IGAC

CoCO2: Prototype system for a Copernicus CO<sub>2</sub> service COCCON: Collaborative Carbon Column Observing Network CONTRAIL: Comprehensive Observation Network for TRace gases by AIrLiner GCP: Global Carbon Project GOSAT: Greenhouse gases Observing SATellite GSAM-TM: Global Spectral Atmosphere Model-Transport Model HIRS: High Resolution Infrared Radiation Sounder IASI: Infrared Atmospheric Sounding Interferometer ICOS: Integrated Carbon Observation System MIROC-ACTM: Model for Interdisciplinary Research On Climate Earth System Model-based Atmospheric Chemistry Transport Model NACP: North American Carbon Program NOAA: National Oceanic and Atmospheric Administration NDACC: Network for the Detection of Atmospheric **Composition Change** NICAM-TM: Nonhydrostatic **ICosahedral** Atmospheric Model-based Transport Model NIES-TM: National Institute for Environmental Studies (NIES) three-dimensional chemical Transport Model RECCAP: Regional Carbon Cycle Assessment and Processes SCIAMACHY: SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY SIF: Solar-Induced chlorophyll Fluorescence TANSO-FTS: Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation-Fourier Transform Spectrometer TCCON: Total Carbon Column Observing Network **TES:** Tropospheric Emission Spectromete TOVS: TIROS Operational Vertical Sounder

## 参考文献

- Allan, W., H. Struthers & D. C. Lowe (2007), Methane carbon isotope effects caused by atomic chlorine in the marine boundary layer: Global model results compared with Southern Hemisphere measurements, J. Geophys. Res. Atmos., 112, D04306, doi: 10.1029/2006JD007369.
- Aoki, S., T. Nakazawa, S. Murayama & S. Kawaguchi (1992), Measurements of atmospheric methane at the Japanese Antarctic Station, Syowa, *Tellus*, 44B, 273–281.
- Akiyama, H., Yan, X. & Yagi, K. (2006), Estimations of emission factors for fertilizer-induced direct N<sub>2</sub>O emissions from agricultural soils in Japan: Summary of available data, *Soil Science and Plant Nutrition*, 52, 774–787, doi: 10.1111/j.1747-0765.2006.00097.x
- Baker, D. F., H. Bösch, S. C. Doney, D. O'Brien & D. S. Schimel (2010), Carbon source/sink information provided by column CO<sub>2</sub> measurements from the Orbiting Carbon Observatory, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 4145–4165, doi: 10.5194/acp-10-4145-2010.
- Bange, H. W. et al. (2009), MEMENTO: a proposal to develop a database of marine nitrous oxide and methane measurements, *Environ. Chem.*, 6, 195–197, doi: 10.1071/EN09033.
- Bao, Z. et al. (2020), Retrieval and Validation of XCO2 from TanSat target mode observations in Beijing, *Remote Sens.*, 12, 3063; doi: 10.3390/rs12183063.
- Barkley, M. P., U. Frieß & P. S. Monks (2006), Measuring atmospheric CO<sub>2</sub> from space using Full Spectral Initiation (FSI) WFM-DOAS, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3517–3534.
- Belikov, D. A. et al. (2013), Simulations of column-averaged CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> using the NIES TM with a hybrid sigmaisentropic (s-θ) vertical coordinate, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 1713–1732, doi: 10.5194/acp-13-1713-2013.
- Belikov, D. A., N. Saitoh, P. K. Patra, & N. Chandra, (2021),
  GOSAT CH<sub>4</sub> vertical profiles over the Indian Subcontinent:
  Effect of a priori and averaging kernels for climate applications, *Remote Sens.*, 13, 1677, doi:10.3390/rs1301677.

- Bernath, P. F., M. Yousefi, E. Buzan & C. D. Boone (2017), A near-global atmospheric distribution of N<sub>2</sub>O isotopologues, *Geophys. Res. Lett.*, 44, 10,735–10,743.
- Breider, F. et al. (2019), Response of N<sub>2</sub>O production rate to ocean acidification in the western North Pacific. *Nature Clim. Change*, 9(12), 954–958, doi: 10.1038/s41558-019-0605-7.
- Buchwitz, M. et al. (2005), Atmospheric methane and carbon dioxide from SCIAMACHY satellite data: initial comparison with chemistry and transport models, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 941–962.
- Butler, J. H. et al. (2016), A Comprehensive Estimate for Loss of Atmospheric Carbon Tetrachloride (CCl<sub>4</sub>) to the Ocean, *Atmos. Chem. Phys.*, 16 (17): 10899–910.
- Butz, A. et al. (2011), Toward accurate CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> observations from GOSAT, *Geophys. Res. Lett.*, 38, doi: 10.1029/2011GL047888.
- Buzan, E. M., C. A. Beale, C. D. Boone, & P. F. Bernath (2016), Global stratospheric measurements of the isotopologues of methane from the Atmospheric Chemistry Experiment Fourier transform spectrometer, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 1095–1111.
- Campbell, J. E. et al. (2008), Photosynthetic control of atmospheric carbonyl sulfide during the growing season, *Science*, 322:1085-1088.
- Canadell J. G. et al. (2011), An international effort to quantify regional carbon fluxes, *EOS*, 92: 81-82.
- Canadell, J. G. et al. (2021), Global Carbon and other Biogeochemical Cycles and Feedbacks, In V. Masson-Delmotte, et al. (Eds.), 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, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 673–816, doi:10.1017/9781009157896.007.
- Chandra, N., S. Hayashida, T. Saeki & P. K. Patra (2017), What controls the seasonal cycle of columnar methane observed by GOSAT over different regions in India?, *Atmos. Chem.*

Phys., 17, 12633-12643.

- Chandra, N. et al. (2021), Emissions from the oil and gas sectors, coal mining and ruminant farming drive methane growth over the past three decades, *J. Meteor. Soc. Japan*, 99, 309– 337, doi: 10.2151/jmsj.2021-015.
- Chédin, A., S. Serrar, N. A. Scott, C. Crevoisier & R. Armante (2003), First global measurements of midtropospheric CO2 from NOAA polar satellites: Tropical zone, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 108(D18), 4581, doi: 10.1029/2003JD003439.
- Chen, Z. et al. (2021), Linking global terrestrial CO<sub>2</sub> fluxes and environmental drivers: inferences from the Orbiting Carbon Observatory 2 satellite and terrestrial biospheric models, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 6663–6680.
- Ciais, P. et al. (2022), Definitions and methods to estimate regional land carbon fluxes for the second phase of the REgional Carbon Cycle Assessment and Processes Project (RECCAP-2), *Geosci. Model Dev.*, 15, 1289–1316, doi: 10.5194/gmd-15-1289-2022.
- Cogan, A. J. et al. (2012), Atmospheric carbon dioxide retrieved from the Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT):
  Comparison with ground-based TCCON observations and GEOS-Chem model calculations, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 117, D21301, doi: 10.1029/2012JD018087.
- Crisp D. et al. (2017), The on-orbit performance of the Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) instrument and its radiometrically calibrated products, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 59–81.
- Deng, F., D. B. A. Jones, C. W. O'Dell, R. Nassar & N. C. Parazoo (2016), Combining GOSAT XCO<sub>2</sub> observations over land and ocean to improve regional CO<sub>2</sub> flux estimates, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 1896–1913.
- De Mazière, M. et al. (2018), The Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC): history, status and perspectives, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 4935– 4964, doi: 10.5194/acp-18-4935-2018.
- De Soete, G. (1993), Nitrous oxide from combustion and industry: chemistry, emissions and control, *Revue de l'Institute Francais du Petrole*, 48(4), 413–451.

- Dijkstra, F. A. et al. (2012), Effects of elevated carbon dioxide and increased temperature on methane and nitrous oxide fluxes: Evidence from field experiments, *Front. Ecol. Environ.*, 10, 520–527.
- Dlugokencky, E. J. et al. (2003), Atmospheric methane levels off: Temporary pause or a new steady-state?, *Geophys. Res. Lett.*, 30(19), 1992, doi: 10.1029/2003GL018126, 2003.
- Dlugokencky, E. J. et al. (2009), Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH<sub>4</sub> burden, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L18803, doi: 10.1029/2009GL039780.
- Eldering, A., T. E. Taylor, C. W. O'Dell & R. Pavlick (2019), The OCO-3 mission: measurement objectives and expected performance based on 1 year of simulated data, *Atmos. Meas., Tech.*, 21, 2341–2370, doi: 10.5194/amt-12-2341-2019.
- Enting, I. G. (2002), Inverse Problems in Atmospheric Constituent Trans- port, Cambridge University Press, New York.
- Fang, X. et al. (2018), Rapid Increase in Ozone-Depleting Chloroform Emissions from China, *Nature Geosci.*, 12(2): 89–93.
- Forster, P. 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. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 923–1054, doi:10.1017/9781009157896.009.
- Frankenberg, C., J. F. Meirink, M. van Weele, U. Plat & T. Wagner (2005), Assessing methane emissions from global space-borne observations, *Science*, 306, 1010–1014.
- Frankenberg, C. et al. (2011), Global column-averaged methane mixing ratios from 2003 to 2009 as derived from SCIAMANHY: Trends and variability, J. Geophys. Res. Atmos., 116, doi: 10.1029/2010JD014849.
- Fraser, P. J., M. A. K. Khalil, R. A. Rasmussen & A. J. Crawford (1981), Trends of atmospheric methane in the southern

hemisphere, Geophys. Res. Lett., 8(10), 1063-1066.

- Fraser, A. et al. (2013), Estimating regional methane surface fluxes: the relative importance of surface and GOSAT mole fraction measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5697–5713.
- Frey, M. et al. (2019), Builindg the COllaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): long-term stability and ensemble performance of the EM27/SUN Fourier transform spectrometer, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 1513–1530, doi: 10.5194/amt-12-1513-2019.
- Friedlingstein, P. et al. (2020), Global Carbon Budget 2020, *Earth Syst. Sci. Data*, 12, 3269–3340, doi: 10.5194/essd-12-3269-2020.
- Fujita, R. et al. (2018). Temporal variations of the mole fraction, carbon, and hydrogen isotope ratios of atmospheric methane in the Hudson Bay Lowlands, Canada, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 123, 4695–4711, doi: 10.1002/2017JD027972
- Fujita, R. et al. (2020). Global and regional CH<sub>4</sub> emissions for 1995-2013 derived from atmospheric CH<sub>4</sub>,  $\delta^{13}$ C - CH<sub>4</sub>, and  $\delta$  D - CH<sub>4</sub> observations and a chemical transport model, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 125, e2020JD032903, doi: 10.1029/2020JD032903.
- Ghosh, A. et al. (2015), Variations in global methane sources and sinks during 1910–2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 2595– 2612, doi: 10.5194/acp-15-2595-2015.
- Goto, D., S. Morimoto, S. Aoki, P. K. Patra & T. Nakazawa (2017a), Terrestrial biospheric and oceanic CO<sub>2</sub> uptake estimated from long-term measurements of atmospheric CO<sub>2</sub> mole fraction,  $\delta^{13}$ C and  $\delta$ (O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>) at Ny-Ålesund, Svalbard, *J. Geophys. Res. Atmos.*, doi: 10.1002/2017JG003845.
- Goto, D. et al. (2017b), Vertical profiles and temporal variations of greenhouse gases in the stratosphere over Syowa Station, Antarctica, *SOLA*, 13, 224–229, doi: 10.2151/sola.2017-041.
- Gurney, K. et al. (2002), Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415, 626–630, doi: 10.1038/415626a.

- Hausmann, P., R. Sussmann & D. Smale (2016), Contribution of oil and natural gas production to renewed increase in atmospheric methane (2007–2014): top–down estimate from ethane and methane column observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 3227–3244, doi: 10.5194/acp-16-3227-2016.
- Hayashida, S., A. Ono, S. Yoshizaki, C. Frankenberg, W. Takeuchi & X. Yan (2013), Methane concentrations over Monsoon Asia as observed by SCIAMACHY: Signals of methane emission from rice cultivation, *Remote Sens. Env.*, 139, 246–256.
- Hirota, M., K. Nemoto, A. Murata & K. Fushimi (1991), Observation of Carbon Dioxide Concentrations in Air and Surface Sea Water in the Western North Pacific Ocean, *Oceanogr. Mag.*, 41, 19-28.
- Hossaini, R. et al. (2016), A global model of tropospheric chlorine chemistry: Organic versus inorganic sources and impact on methane oxidation, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121, 14,271–14,297, doi:10.1002/ 2016JD025756.
- Hossaini, R. et al. (2017), The increasing threat to stratospheric ozone from dichloromethane, *Nature Comm.*, 8: 15962.
- Houweling, S. et al. (2015), An intercomparison of inverse models for estimating sources and sinks of CO<sub>2</sub> using GOSAT measurements, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 5253–5266.
- Houweling, S. et al. (2017), Global inverse modeling of CH<sub>4</sub> sources and sinks: an overview of methods, *Amos. Chem. Phys.*, 17, 235–256.
- Iida, Y. et al. (2015), Trends in pCO<sub>2</sub> and sea–air CO<sub>2</sub> flux over the global open oceans for the last two decades. *J Oceanogr*, 71, 637–661, doi: 10.1007/s10872-015-0306-4.
- Ishidoya, et al. (2012), Time and space variations of the  $O_2/N_2$ ratio in the troposphere over Japan and estimation of the global  $CO_2$  budget for the period 2000–2010, *Tellus B*, 64:1, doi: 10.3402/tellusb.v64i0.18964.
- Ishidoya, S., et al. (2020), O<sub>2</sub>:CO<sub>2</sub> exchange ratio for net turbulent flux observed in an urban area of Tokyo, Japan, and its application to an evaluation of anthropogenic CO<sub>2</sub>

emissions, Atmos. Chem. Phys., 20, 5293–5308, doi: 10.5194/acp-20-5293-2020.

- Ito, A. & M. Inatomi (2012), Use of a process-based model for assessing the methane budgets of global terrestrial ecosystems and evaluation of uncertainty, *Biogeosciences*, 9, 759–773, doi: 10.5194/bg-9-759-2012.
- Jackson, R. B. et al. (2020), Increasing anthropogenic methane emissions arise equally from agricultural and fossil fuel sources, *Environ. Res. Lett.*, 15, doi: 10.1088/1748-9326/ab9ed2.
- Kangah, Y. et al. (2017), Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions, J. Geophys. Res. Atmos., 122, 4746–4759.
- Kuyper, B. et al. (2019), Atmospheric HCFC-22, HFC-125, and HFC-152a at Cape Point, South Africa, *Environ. Sci. Tech.*, 53 (15): 8967–75.
- Kondo, M., T. Saeki, H. Takagi, K. Ichii & K. Ishijima (2016), The effect of GOSAT observations on estimates of net CO<sub>2</sub> flux in semi-arid regions of the Southern Hemisphere, *SOLA*, 12, 181–186.
- Kondo, M. et al. (2020), State of the science in reconciling topdown and bottom-up approaches for terrestrial CO<sub>2</sub> budget, *Glob. Change Biol.*, 26: 1068–1084, doi: 10.1111/gcb.14917.
- Kuze, A., H. Suto, M. Nakajima & T. Hamazaki (2009), Thermal and near infrared sensor for carbon observation Fouriertransform spectrometer on the Greenhouse Gases Observing Satellite for greenhouse gases monitoring, *Appl. Optics*, 48, 6716–6733.
- Kuze, A., N. Kikuchi, F. Kataoka, H. Suto, K. Shiomi & Y. Kondo (2020), Detection of methane emission from a local source using GOSAT target observations, *Remote Sens.*, 12, 267, doi: 10.3390/rs12020267.
- Ishijima, K., T. Nakazawa, S. Sugawara, S. Aoki & T. Saeki (2001), Concentration variations of tropospheric nitrous oxide over Japan, *Geophys. Res. Lett.*, 28(1), 171–174, doi: 10.1029/2000gl011465.

Ishijima, K. et al. (2007), Temporal variations of the atmospheric

nitrous oxide concentration and its  $\delta^{15}$ N and  $\delta^{18}$ O for the latter half of the 20th century reconstructed from firn air analyses, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 112, D03305, doi: 10.1029/2006JD007208.

- Ishijima, K. et al. (2022), Understanding Temporal Variations of Atmospheric Radon-222 around Japan using Model Simulations, J. Meteorol. Soc. Japan, 100(2), 343–359, doi: 10.2151/jmsj.2022-017.
- Laughlin, R. J., and R. J. Stevens (2002), Evidence for fungal dominance of denitrification and codenitrification in a grassland soil, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 66, 1540–1548.
- Lelieveld, J., W. Peters, F. J. Dentener & M. C. Krol (2002), Stability of tropospheric hydroxyl chemistry, J. Geophys. Res. Atmos., 107(D23), 4715, doi: 10.1029/2002JD002272.
- Machida, T., T. Nakazawa, Y. Fujii & S. A. O. Watanabe (1995), Increase in the atmospheric nitrous oxide concentration during the last 250 years, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 2921– 2924.
- Machida, T. et al. (2008), Worldwide measurements of atmospheric CO<sub>2</sub> and other trace gas species using commercial airlines, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 25, 1744– 1754, doi: 10.1175/2008JTECHA1082.1.
- Maki, T. et al. (2010), New technique to analyse global distributions of CO<sub>2</sub> concentrations and fluxes from nonprocessed observational data, *Tellus B*, doi: 10.1111/j.1600-0889. 2010.00488.x.
- Maksyutov, S. et al. (2021), Technical note: A high-resolution inverse modelling technique for estimating surface CO<sub>2</sub> fluxes based on the NIES-TM–FLEXPART coupled transport model and its adjoint, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 1245–1266, doi: 10.5194/acp-21-1245-2021.
- Malina, E., Y. Yoshida, T. Matsunaga & J.-P. Muller (2018), Information content analysis: the potential for methane isotopologue retrieval from GOSAT-2, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 1159–1179, doi: 10.5194/amt-11-1159-2018.
- Martinez-Rey, J., L. Bopp, M. Gehlen, A. Tagliabue & N. Gruber (2015), Projections of oceanic N<sub>2</sub>O emissions in the 21st century using the IPSL Earth system model, *Biogeosciences*,

12, 4133-4148. doi:10.5194/bg-12-4133-2015.

- Matsueda, H., H. Y. Inoue (1996), Measurements of atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> using a commercial airliner from 1993 to 1994, *Atmos. Environ.*, 30, 1647–1655.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue & M. Ishii (2002), Aircraft observation of carbon dioxide at 8–13 km altitude over the western Pacific from 1993 to 1999, *Tellus B*, 54:1, 1-21, doi: 10.3402/tellusb.v54i1.16645.
- 持田陸宏,伊藤昭彦,松田和秀,谷晃(2022),陸域生態 系と大気化学,大気化学研究,47(本号),047A05.
- Morimoto, S., T. Nakazawa, K. Higuchi & S. Aoki (2000), Latitudinal distribution of atmospheric CO<sub>2</sub> sources and sinks inferred by  $\delta^{13}$ C measurements from 1985 to 1991, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 105(D19), 24315–24326, doi: 10.1029/2000JD900386.
- Morimoto, S., T. Nakazawa, S. Aoki, G. Hashida & T. Yamanouchi (2003), Concentration variations of atmospheric CO<sub>2</sub> observed at Syowa Station, Antarctica from 1984 to 2000, *Tellus B*, 55, 170-177.
- Morimoto, S., R. Fujita, S. Aoki, D. Goto & T. Nakazawa (2017), Long-term variations of the mole fraction and carbon isotope ratio of atmospheric methane observed at Ny-Ålesund, Svalbard from 1996 to 2013, *Tellus B*, 69:1, 1380497, doi: 10.1080/16000889.2017.1380497.
- Montzka, S. A. et al. (2011), Small Interannual Variability of Global Atmospheric Hydroxyl, *Science*, 331, 67, doi: 10.1126/science.1197640.
- Montzka, S. A. et al. (2018), An Unexpected and Persistent Increase in Global Emissions of Ozone-Depleting CFC-11, *Nature*, 557 (7705): 413–17.
- Nakazawa, T., K. Miyashita, S. Aoki & M. Tanaka (1991), Temporal and spatial variations of upper tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide, *Tellus B*, 43:2, 106-117, doi: 10.3402/tellusb.v43i2.15254.
- Nakazawa, T. et al. (2002), Variations of stratospheric trace gases measured using a balloon-borne cryogenic sampler, *Adv. Space Res.*, 30(5), 1349–1357.
- Nakazawa, T. (2020), Current understanding of the global

cycling of carbon dioxide, methane, and nitrous oxide, *Proc. Jpn. Acad., Ser. B*, 96, 394–419, doi: 10.2183/pjab.96.030.

- Nara, H. et al. (2012), Effect of air composition (N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, Ar, and H<sub>2</sub>O) on CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> measurement by wavelengthscanned cavity ring-down spectroscopy: calibration and measurement strategy, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2689–2701, doi: 10.5194/amt-5-2689-2012.
- Nara, H. et al. (2014), Emissions of methane from offshore oil and gas platforms in Southeast Asia, *Sci. Rep.*, 4:6503, doi: 10.1038/srep06503.
- Nara, H. et al. (2017), Emission factors of CO<sub>2</sub>, CO and CH<sub>4</sub> from Sumatran peatland fires in 2013 based on shipboard measurements, *Tellus B*, 69:1, 1399047, doi: 10.1080/16000889.2017.1399047.
- Nassar, R. et al. (2011), Inverse modelling of CO<sub>2</sub> sources and sinks using satellite observations of CO<sub>2</sub> from TES and surface flask measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6029–6047.
- Nassar, R. et al. (2017), Quantifying CO<sub>2</sub> emissions from individual power plants from space, *Geophys. Res. Lett.*, 44, 10045–10053.
- Nisbet, E. G. et al. (2019). Very strong atmospheric methane growth in the 4 years 2014–2017: Implications for the Paris Agreement, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 33, doi: 10.1029/2018GB006009.
- Nishihashi, M. et al. (2019), Greenhouse gases and air pollutants monitoring project around Jakarta megacity, *IOP Conf. Ser.: Earth Environ. Sci.*, 303, 012038, doi: 10.1088/1755-1315/303/1/012038.
- Niwa, Y., Tomita, H., Satoh, M. & Imasu, R. (2011), A threedimensional icosahedral grid advection scheme preserving monotonicity and consistency with continuity for atmospheric tracer transport, *J. Meteor. Soc. Japan*, 89, 255–268, doi:10.2151/jmsj.2011-306.
- Niwa Y. et al. (2014), Seasonal Variations of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O and CO in the Mid-Troposphere over the Western North Pacific Observed Using a C-130H Cargo Aircraft, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 92(1), 55–70, doi: 10.2151/jmsj.2014-104.

- Niwa, Y. et al. (2017), A 4D-Var inversion system based on the icosahedral grid model (NICAM-TM 4D-Var v1.0) Part
  2: Optimization scheme and identical twin experiment of atmospheric CO<sub>2</sub> inversion, *Geosci. Model Dev.*, 10, 2201–2219, doi: 10.5194/gmd-10-2201-2017.
- Niwa, Y. et al. (2021), Estimation of fire-induced carbon emissions from Equatorial Asia in 2015 using in situ aircraft and ship observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 9455–9473, doi: 10.5194/acp-21-9455-2021.
- Nomura, S., H. Mukai, Y. Terao, T. Machida & Y. Nojiri (2017), Six years of atmospheric CO<sub>2</sub> observations at Mt. Fuji recorded with a battery-powered measurement system, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 667–680, doi: 10.5194/amt-10-667-2017.
- Nomura, S. et al. (2021), Measurement report: Regional characteristics of seasonal and long-term variations in greenhouse gases at Nainital, India and Comilla, Bangladesh, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 16427–16452, doi: acp-21-16427-2021.
- Oda, T. & S. Maksyutov (2011), A very high-resolution (1 km×1 km) global fossil fuel CO<sub>2</sub> emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 543–556, doi: 10.5194/acp-11-543-2011.
- O'Dell, C. W. et al. (2012), The ACOS CO<sub>2</sub> retrieval algorithm
  Part 1: Description and validation against synthetic observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 99–121.
- O'Dell, C. W. et al. (2018), Improved retrievals of carbon dioxide from Orbiting Carbon Observatory-2 with the version 8 ACOS algorithm, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 6539–6576.
- Ostrom, N. E., et al. (2010), Isotopologue data reveal bacterial denitrification as the primary source of N<sub>2</sub>O during a high flux event following cultivation of a native temperate grassland, *Soil Biol. Biochem.*, 42(3), 499–506.
- Pak, B. C. & M. J. Prather (2001), CO<sub>2</sub> source inversions using satellite observations of the upper troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 28(24), 4571–4574.

- Park, S. et al. (2021), A decline in emissions of CFC-11 and related chemicals from eastern China, *Nature*, 590, 433– 437,, doi: 10.1038/s41586-021-03277-w.
- Parker, R. et al. (2011), Methane observations from the Greenhouse Gases Observing SATellite: Comparison to ground-based TCCON data and model calculations, *Geophys. Res. Lett.*, 38, doi: 10.1029/2011GL047871.
- Patra, P. K. et al. (2016), Regional Methane Emission Estimation Based on Observed Atmospheric Concentrations (2002– 2012), *J. Meteorol. Soc. Japan*, 94(1), 91–113, doi: 10.2151/jmsj.2016-006.
- Patra, P. K., et al. (2018), Improved Chemical Tracer Simulation by MIROC4.0-based Atmospheric Chemistry- Transport Model (MIROC4-ACTM), SOLA, 14, 91–96, doi: 10.2151/sola.2018-016.
- Patra, P. K. et al. (2021), Methyl chloroform continues to constrain the hydroxyl (OH) variability in the troposphere.
  J. *Geophys. Res.*. Atmos., 126, e2020JD033862, doi:10.1029/2020JD033862.
- Popp, B. N. et al. (2002), Nitrogen and oxygen isotopomeric constraints on the origins and sea-to-air flux of N<sub>2</sub>O in the oligotrophic subtropical North Pacific gyre, *Global Biogeochem. Cy.*, 16(4), 1064, doi: 10.1029/2001GB001806.
- Prinn, R. G. et al. (2000), A History of Chemically and Radiatively Important Gases in Air deduced from ALE/GAGE/AGAGE, J. Geophys. Res. Atmos., 105, 17751–17717, 792.
- Prokopiou, M. et al. (2017), Constraining N<sub>2</sub>O emissions since 1940 using firn air isotope measurements in both hemispheres, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 4539–4564, doi:10.5194/acp-17-4539-2017.
- Rayner, P. J. & D. M. O'Brien (2001), The utility of remotely sensed CO<sub>2</sub> concentration data in surface source inversions, *Geophys. Res. Lett.*, 28(1), 175–178.
- Rhew, R. C., & J. D. Happell (2016), The atmospheric partial lifetime of carbon tetrachloride with respect to the global soil sink, *Geophys. Res. Lett.*, 43 (6): 2889–95.

- Ricaud, P. et al. (2014), Variability of tropospheric methane above the Mediterranean Basin inferred from satellite and model data, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 11427–11446.
- Rigby, M. et al. (2008), Renewed growth of atmospheric methane, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L22805, doi: 10.1029/2008GL036037.
- Rigby, M. et al. (2019), Increase in CFC-11 emissions from Eastern China based on atmospheric observations, *Nature*, 569 (7757): 546–50.
- Saeki, T. & P.K. Patra (2017), Implications of overestimated anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions on East Asian and global land CO<sub>2</sub> flux inversion, *Geosci. Lett.* 4, 9, doi: 10.1186/s40562-017-0074-7.
- Saikawa, E. et al. (2014), Global and regional emissions estimates for N<sub>2</sub>O, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(9), 4617–4641, doi: 10.5194/acp-14-4617-2014.
- Santoro, A. E., K. L. Casciotti, and C. A. Francis (2010), Activity, abundance and diversity of nitrifying archaea and bacteria in the central California Current, *Environ. Microbiol.*, 12(7), 1989–2006, doi: 10.1111/j.1462-2920.2010.02205.x.
- Sasakawa, M. et al. (2013), Aircraft and tower measurements of CO<sub>2</sub> concentration in the planetary boundary layer and the lower free troposphere over southern taiga in West Siberia: Long-term records from 2002 to 2011, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 9489–9498, doi: 10.1002/jgrd.50755.
- Sasakawa, M. et al. (2017). Temporal characteristics of CH<sub>4</sub> vertical profiles observed in the West Siberian Lowland over Surgut from 1993 to 2015 and Novosibirsk from 1997 to 2015, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 122, 11261–11273, doi: 10.1002/2017JD026836.
- Saunois, M. et al. (2020), The global methane budget 2000–2017, *Earth Syst. Sci. Data*, 12, 1561–1623, doi: 10.5194/essd-12-1561-2020.
- Sawa, Y. et al. (2015), Seasonal changes of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, and SF<sub>6</sub> in the upper troposphere/lower stratosphere over the Eurasian continent observed by commercial airliner, *Geophys. Res. Lett.*, 42, doi: 10.1002/2014GL062734.
- Say, D. et al. (2019), Emissions of halocarbons from India

inferred through atmospheric measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 19 (15): 9865–85.

- Schneising, O. et al. (2020), Remote Sensing of methane leakage from natural gas and petroleum systems revisited, Atmos. Chem. Phys., 20, 9169–9182.
- Schuh, A. E. et al. (2019), Quantifying the impact of Atmospheric Transport Uncertainty on CO<sub>2</sub> surface flux estimates, *Global Biogechem. Cycle*, 33, 484–500.
- Sherwood, O., S. Schwietzke, V. A. Arling & G. Etiope (2017), Global Inventory of Gas Geochemistry Data from Fossil Fuel, Microbial and Burning Sources, version 2017, *Earth Syst. Sci. Data*, 9, 639–656, doi:10.5194/essd-9-639-2017.
- Schoenenberger, F. et al. (2018), Abundance and sources of atmospheric halocarbons in the Eastern Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys.*, 18 (6): 4069–92.
- Sherry, D., A. McCulloch, Q. Liang, S. Reimann & P. A. Newman (2018), Current sources of carbon tetrachloride (CCl<sub>4</sub>) in our atmosphere, *Environ. Res. Lett.*, 13 (2): 024004.
- Simpson, I. et al. (2012), Long-term decline of global atmospheric ethane concentrations and implications for methane, *Nature*, 488, 490–494, doi: 10.1038/nature11342.
- Stohl, A. et al. (2009), An analytical inversion method for determining regional and global emissions of greenhouse gases: Sensitivity studies and application to halocarbons, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1597–1620, doi: 10.5194/acp-9-1597-2009.
- Sugawara, S. et al. (1997), Vertical profile of the carbon isotopic ratio of stratospheric methane over Japan, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 23, 2989–2992.
- Sugawara S., et al. (2018), Age and gravitational separation of the stratospheric air over Indonesia, *Atmos. Chem. Phys.*, doi: 10.5194/acp-18-1819-2018.
- Sugawara, H., et al. (2021), Anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions changes in an urban area of Tokyo, Japan, due to the COVID-19 pandemic: A case study during the state of emergency in April–May 2020, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL092600, doi: 10.1029/2021GL092600.

- Takahashi, T., et al. (2009), Climatological mean and decadal change in surface ocean *p*CO<sub>2</sub>, and net sea–air CO<sub>2</sub> flux over the global oceans, *Deep-Sea Res Pt II*, 56:554–577.
- Tanaka, M., T. Nakazawa & S. Aoki (1983), Concentration of atmospheric carbon dioxide over Japan, J. Geophys. Res. Atmos., 88(C2), 1339–1344, doi: 10.1029/JC088iC02p01339.
- Taylor, T. E. et al. (2020), OCO-3 early mission operations and initial (vEarly) XCO<sub>2</sub> and SIF retrievals, *Remote Sens. Env.*, doi: 10.1016/j.rse.2020.112032.
- Terao, Y. et al. (2011), Interannual variability and trends in atmospheric methane over the western Pacific from 1994 to 2010, J. Geophys. Res. Atmos., 116, D14303, doi: 10.1029/2010JD015467.
- 寺尾有希夫 & 石戸谷重之 (2021), 大都市における温室効 果ガスと関連物質の大気観測, 大気化学研究, 45, 045A01.
- Tian, H. et al. (2018), The Global N<sub>2</sub>O Model Intercomparison Project, Bulletin Am. Meteorol. Soc., 99(6), 1231–1251, doi: 10.1175/bams-d-17-0212.1.
- Tian, H. et al. (2020), A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks, *Nature*, 586, 248–256, doi: 10.1038/s41586-020-2780-0.
- Tohjima, Y. et al. (2000), Variations in atmospheric nitrous oxide observed at Hateruma monitoring station, *Chemosphere Global Change Sci.*, 2(3-4), 435–443.
- Tohjima, Y. et al. (2002), Analysis and presentation of in situ atmospheric methane measurements from Cape Ochi-ishi and Hateruma Island, J. Geophys. Res. Atmos., 107, D12, 4148, doi: 10.1029/2001JD001003.
- Tohjima, Y., H. Mukai, T. Machida, Y. Nojiri & M. Gloor (2005), First measurements of the latitudinal atmospheric O<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> distributions across the western Pacific, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L17805, doi: 10.1029/2005GL023311.
- Tohjima, Y., H. Mukai, S. Hashimoto & P. K. Patra (2010), Increasing synoptic scale variability in atmospheric CO<sub>2</sub> at Hateruma Island associated with increasing East-Asian emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 453–462, doi:

10.5194/acp-10-453-2010.

- Tohjima, Y. et al. (2014), Temporal changes in the emissions of CH<sub>4</sub> and CO from China estimated from CH<sub>4</sub>/CO<sub>2</sub> and CO/CO<sub>2</sub> correlations observed at Hateruma Island, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1663–1677, doi: 10.5194/acp-14-1663-2014.
- Tohjima, Y., H. Mukai, T. Machida, Y. Hoshina & S.-I. Nakaoka (2019), Global carbon budgets estimated from atmospheric O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> observations in the western Pacific region over a 15-year period, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 9269–9285, doi: 10.5194/acp-19-9269-2019.
- Tohjima, Y. et al. (2020), Detection of fossil-fuel CO<sub>2</sub> plummet in China due to COVID-19 by observation at Hateruma, *Sci. Rep.*, 10, 18688, doi: 10.1038/s41598-020-75763-6.
- Toyoda, S. et al. (2008), Isotopomeric characterization of N<sub>2</sub>O produced, consumed, and emitted by automobiles, *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, 22, 603–612. doi: 10.1002/rcm.3400.
- Toyoda, S. et al. (2011), Characterization and production and consumption processes of N<sub>2</sub>O emitted from temperate agricultural soils determined via isotopomer ratio analysis, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 25, GB2008. doi:10.1029/2009GB003769.
- Toyoda, S. et al. (2013), Decadal time series of tropospheric abundance of N<sub>2</sub>O isotopomers and isotopologues in the Northern Hemisphere obtained by the long-term observation at Hateruma Island, Japan, J. Geophys. Res. Atmos., 118, 3369–3381, doi: 10.1002/jgrd.50221.
- Toyoda, S. et al. (2018), Vertical distributions of N<sub>2</sub>O isotopocules in the equatorial stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 833–844, doi: 10.5194/acp-18-833-2018.
- Tsuboi, K. et al. (2013), Evaluation of a new JMA aircraft flask sampling system and laboratory trace gas analysis system, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 1257–1270, doi: 10.5194/amt-6-1257-2013.
- Umezawa, T. et al. (2012a), Carbon and hydrogen isotopic ratios of atmospheric methane in the upper troposphere over the Western Pacific, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 8095–8113, doi:

10.5194/acp-12-8095-2012.

- Umezawa, T., T. Machida, S. Aoki, & T. Nakazawa (2012b), Contributions of natural and anthropogenic sources to atmospheric methane variations over western Siberia estimated from its carbon and hydrogen isotopes, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 26, GB4009, doi: 10.1029/2011GB004232.
- Umezawa, T. et al. (2014), Variations of tropospheric methane over Japan during 1988–2010, *Tellus B*, 66, 23837, doi: 10.3402/tellusb.v66.23837.
- Umezawa, T. et al. (2018), Interlaboratory comparison of  $\delta^{13}$ C and  $\delta$ D measurements of atmospheric CH<sub>4</sub> for combined use of data sets from different laboratories, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 1207–1231, doi: 10.5194/amt-11-1207-2018.
- van der Werf, G. R. et al. (2017), Global fire emissions estimates during 1997–2016, *Earth Syst. Sci. Data*, 9, 697–720, doi: 10.5194/essd-9-697-2017.
- Voulgarakis, A. et al. (2013), Analysis of present day and future OH and methane lifetime in the ACCMIP simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2563–2587, doi: 10.5194/acp-13-2563-2013.
- Yokohata, T. et al. (2020), Future projection of greenhouse gas emissions due to permafrost degradation using a simple numerical scheme with a global land surface model, *Prog. Earth Planet. Sci.*, 7:56, doi: 10.1186/s40645-020-00366-8.
- Wada, A., H. Matsueda, Y. Sawa, K. Tsuboi & S. Okubo (2011),
  Seasonal variation of enhancement ratios of trace gases observed over 10 years in the western North Pacific, *Atmos. Environ.*, 45, 2129–2137, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.01.043.
- Watanabe, F. et al. (2000), Interannual variation of growth rate of atmospheric carbon dioxide concentration observed at the JMA's three monitoring stations: Large increase in concentration of atmospheric carbon dioxide in 1998, J. Meteorol. Soc. Japan, 78, 673-682.
- Worden, J. R. et al. (2015), Quantifying lower tropospheric methane concentrations using GOSAT near-IR and TES thermal IR measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 8,

3433-3445.

- Worden, J. R. et al. (2017), Reduced biomass burning emissions reconcile conflicting estimates of the post-2006 atmospheric methane budget, *Nature Comm.*, 8:2227, doi: 10.1038/s41467-017-02246-0.
- World Meteorological Organization (WMO), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, World Meteorological Organization, Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 55, 416 pp., Geneva, Switzerland, 2014.
- Wolf, B. et al. (2015), First on-line isotopic characterization of N<sub>2</sub>O above intensively managed grassland, *Biogeosciences*, 12, 2517–2531, doi: 10.5194/bg-12-2517-2015.
- Wunch, D. et al. (2011), The Total Carbon Column Observing Network, *Phil. Trans. R. Soc.*, 369, 2087–2112.
- Xiong, X. et al. (2009), Methane plume over south Asia during the monsoon season: satellite observation and model simulation, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 783–794.
- Yoshida, Y. et al. (2011), Retrieval algorithm for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> column abundances from short-wavelength infrared spectral observations by the Greenhouse gases observing satellite, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 717–734.
- Yoshida, Y. et al. (2013), Improvement of the retrieval algorithm for GOSAT SWIR XCO<sub>2</sub> and XCH<sub>4</sub> and their validation using TCCON data, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 1533–1547.
- Yu, L. et al. (2020). The isotopic composition of atmospheric nitrous oxide observed at the high-altitude research station Jungfraujoch, Switzerland, Atmos. Chem. Phys., 20(11), 6495–6519, doi: 10.5194/acp-20-6495-2020.
- Yue, T., L. Zhang, M. Zhao, Y. Wang & J. Wilson (2016), Spaceand ground-based CO<sub>2</sub> measurements: A review, *Sci China Earth Sci.*, 59, 2089–2097.
- Zeng, J., Y. Nojiri, P. Landschützer, M. Telszewski & S. Nakaoka (2014), A Global Surface Ocean fCO<sub>2</sub> Climatology Based on a Feed-Forward Neural Network, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 31, 1838–1849, doi: 10.1175/JTECH-D-13-00137.1.
- Zhou, M. et al. (2016), Validation of TANSO-FTS/GOSAT

XCO<sub>2</sub> and XCH<sub>4</sub> glint mode retrievals using TCCON data from near-ocean sites, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 1415–1430.

原稿受領日: 2022 年 4 月 28 日 掲載受理日: 2022 年 6 月 13 日

## 著者所属:

- 1. 国立環境研究所 地球システム領域
- 2. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
- 3. 東京工業大学 物質理工学院 応用化学系

#### \* 責任著者

Taku Umezawa <umezawa.taku@nies.go.jp>

3

反応性気体

# 大気汚染物質群の新たな科学: 化学理論の更新と排出-気候変動・健康問題の解決へ向けて

New science of air pollutants: Toward complete chemical theory and science-based solutions of the emission-driven climate change and health issues

金谷有剛,須藤健悟, Prabir Patra,坂本陽介,関谷高志,藤縄環,谷本浩志, 江口菜穂,齋藤尚子,笠井康子,出牛真,佐藤知紘

# 大気汚染物質群の新たな科学:化学理論の更新と 排出-気候変動・健康問題の解決へ向けて

# New science of air pollutants: Toward complete chemical theory and science-

based solutions of the emission-driven climate change and health issues

金谷有剛<sup>1</sup>\*, 須藤健悟<sup>2,1</sup>, Prabir Patra<sup>1</sup>, 坂本陽介<sup>3</sup>, 関谷高志<sup>1</sup>, 藤縄環<sup>4</sup>, 谷本浩志<sup>4</sup>, 江口菜穂<sup>5</sup>, 齋藤尚子<sup>6</sup>, 笠井康子<sup>7</sup>, 出牛真<sup>8</sup>, 佐藤知紘<sup>7</sup>

対流圏の大気化学反応を支配するのは「OH ラジカル」を中心とした反応系である。OH はメタンの大 気中滞在時間やオゾン・PM2.5 の生成など、多くの大気汚染物質の濃度や分布動態を決定づける。多 くの大気汚染物質は短寿命気候強制因子 SLCFs として直接・間接的に気候変動に影響するほか、健 康影響を引き起こす。しかしながら OH の収支や濃度分布・変動は未だ十分に把握できておらず、戦 略的なプロセス研究が必要である。これらの物質の濃度変化を根源的な変動要因である「人間活動に よる排出増加」と定量的に結び付けることは、これらの温暖化・健康影響を和らげる方策を練るうえで 重要である。しかしながら、非線形性や自然プロセスの寄与分離などの重要課題が残されている。気 候変動のフィードバックも含め、これらの課題を取り上げ、現場観測、数値モデル解析に新たな衛星 観測を統合した具体的な戦略や、長寿命温室効果ガスと複合した解析について議論する。

# 1. はじめに

人間活動や自然界から大気へ排出(または放出) される気体のほとんどは、「大気の掃除屋」とも呼ば れる「OH ラジカル」による酸化反応をきっかけとして 大気中から除去される[例えば、秋元、2014]。例えば メタンは、OH との反応速度により大気中の滞在時間 が約10年に規定される[e.g., Patra, 2017]。窒素酸化 物(NOx)や非メタン炭化水素類(NMHCs)も同様に OH により数時間程で除去されるが、OH 濃度がその 決定因子となる。またその際の光化学反応によって、 オゾン(O<sub>3</sub>)や PM<sub>2.5</sub> が二次的に生成するため、その 定量評価のためにもOHの反応系に関する完全な理 解が必要である(図 1)。これらの大気汚染物質やメタ ンは、短寿命気候強制因子(SLCFs, Short-lived Climate Forcers)として直接・間接的に気候変動にも 影響する。SLCFs には,温暖化に寄与するメタン



◎究極目標: 境界条件から過程モデルにより将来を予測できる 大気濃度から排出量の推移や分布を正しく推計できる

図 1. 人間活動や自然界との物質交換フラックスを境界条件 とし、OHラジカルの反応系を中心とする大気化学の概観図。 (CH<sub>4</sub>)・対流圏オゾン・ブラックカーボン(BC)等だけ でなく、逆に直接効果や雲過程を通じて冷却効果を もたらす無機エアロゾルや有機エアロゾル等の粒子、 さらにはそれらの原料となる前駆物質(二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>), NOx, 一酸化炭素(CO), アンモニア(NH<sub>3</sub>), 非メタン揮発性有機化合物(NMVOCs)等)も含まれ る。排出増加・削減が正負の放射強制力を通じて速 やかに気候に影響する特徴をもつ(図 2)。

OHの反応性は非常に高く大気中の寿命は1秒の 桁かそれ以下となる。そのため、OH 濃度は生成項 (オゾンの光分解など)と消失項(一酸化炭素、メタン、 NOx 等との反応)のバランスで決まる「定常濃度」とな る。またその濃度は一般に1ppt以下と超微量である。 生成・消失項は対流圏の多様な環境下で大きく変動 するため、大気化学輸送モデルや化学気候モデル においては、この生成・消失項を正確に表現し、OH 濃度の再現性を高めることが基本的で本質的な優先 課題となる。OH 濃度を再現して初めて、OH の反応 で支配される、対流圏オゾン生成やメタン消失などが 精確に表現できるようになるためである。つまり、オゾ ンやメタンの放射強制力・気候影響および健康影響、 それらの将来予測についての正確な評価は、OH 反 応の理解度とそのモデル表現に強く依存している。

しかしながら OH の生成・消失項の表現は十分に 正確なレベルに達していない。例えば,近年実現し た OH の直接測定は,モデルでの定常濃度の評価,

つまり生成・消失項のバランスの評価に用いられるよ うになった。その評価の結果,実測値とモデル値は 相関し約2倍の範囲内では一致がみられ、モデルの 大きな方向性はほぼ間違いないことが確認されたが, 同時に, 生成・消失項に関わる化学種の濃度を実態 に合わせて評価してもなお数十%に上る不一致がみ られる場合もあり,化学過程の理解が不足しているこ とが示されている[例えば, 金谷, 2020]。また, 排出 量が既知のトレーサー(メチルクロロホルム(CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>) など)の濃度と消失項の解析から推定される OH 全球 平均濃度は、化学反応収支で算出した値(約1×10<sup>6</sup> molecules cm<sup>-3</sup> または体積混合比では 0.04 pptv)と比 較的よく一致する[e.g., Prinn et al., 1992]。しかしなが ら,トレーサー法では,半球間の OH 濃度比や最近 30年間の濃度トレンドなど、化学輸送モデルと整合し ない点も見出され [e.g., Patra et al., 2014], メタンの 排出量を地域や排出部門(化石燃料採掘・農畜産業 など)のレベルで評価する際の大きな壁となっている。 こうした課題を乗り越えるため、一つには、モデル表 現を改善すべく, OH 収支にまつわる亜硝酸(HONO) や、ガスと大気中で共存するエアロゾル粒子上で起 こる不均一反応の役割 [Ha et al., 2021]など, ギャッ プを埋めうる未解明プロセスを戦略的に検討し,モデ ルへ実装することが大事である。また, OHラジカルの 「消失項(反応性)」を実測から評価することで,化学 過程の未知量を明らかにすることが有効である[e.g.,



図 2. 1750 年から 2019 年にかけての排出物質ごと(左縦軸)の有効放射強制力(左)と世界平均気温上昇への寄与(右)。 CO<sub>2</sub>と CFC, N<sub>2</sub>O 以外は SLCFs である。棒の色は温暖化・寒冷化を発現させる大気中の成分を表す。(IPCC, 2021; TS Fig. TS15, Fig 6.12 より)

Sadanaga et al., 2005]。国内でも先駆的な評価が進められた結果,未知の OH 反応性が有意に見出されてきた。しかしながらギャップを説明するプロセスが特定されない場合も見出され,理解の不完全性が指摘されている[例えば,梶井, 2021]。さらには,このような反応性(消失項)の評価を,濃度の評価と同時に行うことで,生成項についても一意に決定し,劣決定問題(underdetermined problem)を克服することも重要である。これらの点について,まず第2節で述べる。

化学反応系がある程度明らかになったうえで大き な課題となるのは、各種 SLCFs の濃度変動を「排出 量」と結び付けることである。SO2, NOx, CO, NH3, 炭 化水素等(メタン含む), BC の全てについて排出量 を明らかにすることが必要であり、その効率的な達成 も含め、大きな課題である。例えば上述したメタンで は,濃度上昇と温暖化への寄与を,地域・部門別と いった,経済活動ごとの排出量変化に結び付けるこ とによって,はじめて合理的な排出削減対策が可能 となる。同様に、オゾンの生成がどのような前駆物質 (NOx,炭化水素などの原料物質)の排出に起因し ているか, 定量的に解明することは大気汚染対策に 直結する。濃度から排出を逆推定する手法としては, アンサンブルカルマンフィルター法によるデータ同化 モデルなども進歩し、国内でも世界をリードする成果 を上げてきた[e.g., Miyazaki et al., 2017]。しかしなが ら,都市圏のオゾン化学で出現する「数キロメートル スケールの非線形性」が数値モデルでは十分に解像 されていない場合も多い。この非線形性は、オゾン生 成連鎖反応の効率が低 NOx 濃度領域では NOx 濃 度の増大により増進する一方, 高 NOx 濃度領域では 低下することに由来すると考えられているが, 理解は 完全ではない(図 3)。こうした排出量の解析では、近 年発展著しい衛星観測データも活用される。技術進 歩の結果,衛星観測の方がむしろ水平解像度の面 で数値モデルを上回る場合さえも見られるようになっ た。今後,キロメートル級解像度をもつ多成分衛星観 測や静止衛星による日内変動計測などにより,非線

形性を加味しながら排出量や分布を評価できる,新 たな時代を迎える。第3節ではこのような新たな排出 推計に結び付く取り組みについて述べたい。

オゾンは SLCF として温暖化に寄与するほか、光 化学スモッグのガス状主要物質でもあり,健康を害す る大気汚染物質である。オゾン(光化学オキシダント) の我が国の環境基準(1時間値で60 ppb)は、ほぼ全 国で全く達成されてない状況が過去 40 年続いてい る[環境省,2021]。国内問題に加えて、中国での濃度 増加傾向の継続と越境大気汚染の問題も加わって, PM2.5以上に健康問題に影を落としている。世界的に は、オゾンと PM2.5 の大気汚染は年間数百万人の余 命を奪っているともいわれる。そのような背景下,衛 星観測を踏まえた排出量評価や大気濃度分布の現 況分析,数日後までの化学天気予報,突発的な森 林火災なども加味した評価,地球温暖化による大気 汚染への影響評価などは社会的に有用である。化学 物質の解析から気象予報を高度化する試みなどもあ る。オゾンのプロセス面については第2節の最後に 述べるが,第4節ではこうした社会実装についても議 論する。



図 3. オゾン濃度は前駆物質である NOx, VOCs(揮発性有機 化合物)濃度に非線形的に応答する。半球~都市内部まで, その非線形性とオゾン生成制限因子(NOx, VOC 制限レジー ム)を明らかにする。[井上ら, 2010; *Itahashi et al.*, 2020]

# 2. OH と化学プロセスの完全理解へ向けて

# 2.1. 未知化学反応のモデル評価

上述の通り,対流圏の OH 濃度は化学反応を介し て、メタン、O3、およびエアロゾル(硫酸塩,硝酸塩、 二次有機エアロゾルなど)等の SLCFs・大気汚染物 質の分布に直接的・間接的に影響を及ぼす(図 1)。 このため, OH の全球分布やその経年変動は, IPCC/CMIP 等の気候変動関連のモデル間相互比較 プロジェクト(ACCMIP, CCMI, AerChemMIP など)に おいても重要なターゲットの一つとなっており,化学 輸送モデルや化学気候モデルを用いた推定結果の 議論が続いている[Naik et al., 2013; Voulgarakis et al., 2013; Evring et al., 2016; Nicely et al., 2018; Stevenson et al., 2020; IPCC, 2021]。全球 3 次元 OH 分布の推 定研究は, Spivakovsky et al. [1990, 2000]が, 化学輸 送モデルとメチルクロロホルム(CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>)を含む各種 観測データを組み合わせて行ったモデル推定に端 を発している。このようなOH 推定の取り組みは、現在 では,観測情報に人工衛星データを利用し,さらに モデル手法としてデータ同化手法を導入するなど (2.2, 3.1 節参照),より精緻化した研究に発展してき てはいるが, 推定例ごとのバラつきは依然として大き く,顕著な不確定性が残存した状況が続いている。 大気酸化能力の指標である全球平均の OH 濃度に ついては、当初の3次元モデルによる推定値~1.1 ×10<sup>6</sup> molecules cm<sup>-3</sup> [Spivakovsky et al., 1990] から それほど大きな更新はない [e.g., Rigby et al., 2017] (不確定性の高い OH であるが,全球平均濃度の推 定値については、30年もの間、多くの知見が加わり ながらも変化していない点については、先駆者の慧 眼というべきであろう)。しかしながら、観測データに 基づく束縛条件を課さない場合,一般的には化学輸 送モデルが全球平均 OH を過大評価する傾向にある ことや, 北半球の OH 濃度を南半球に比べて過大評 価している可能性 [Patra et al., 2014] 等が指摘され, メタン収支の理解を妨げる因子となっている(2.2節を 参照)。このことから最新の化学輸送モデルにおいて



図 4. 全球 OH 分布とその変動(CCM による推定例)。(a) CHASER(MIROC)で計算された地表 OH 濃度分布(2019 年 4 月),および (b) 東西平均 OH 分布。(c) CMIP6/AerChemMIP 実験で推定された全球平均 OH 濃度 の時間発展(1850-2014 年)[*Stevenson et al.*, 2020]。値は、 1998-2007 年の平均濃度に対する変動分(アノマリ)を%で 示す。黒実線がモデルアンサンブル平均。

も,化学プロセスの改善の必要性が高いことが示唆さ れる。

化学気候モデル(CCMI)によるOH分布のシミュレ ーション例を図 4a,b に示す。HOx(OH とその貯留物 質 HO2の総称)の基本的な生成が水蒸気と紫外光に 規定されることから,OH 濃度は低緯度で大きい傾向 にあるが,NOx 濃度が高い領域(船舶航路を含む) では高濃度,また,イソプレン等の植物起源揮発性 有機化合物(BVOCs)の放出が大きいアマゾンやア フリカなどでは低濃度となるなど,空間不均一性が高 い。

OHによる気候影響を検討するうえでは、全球分布 に加えて、その経年変動が重要である。上述のモデ ル間相互比較プロジェクトにおいても、過去の OH 変 動の再現や将来予測が継続的に行われてきている。 図 4c は最新のモデル間相互比較実験 AerChemMIP による OH 変動シミュレーション例 [Stevenson et al., 2020]を示す。ここに見られる OH の経年変動につい ては、第一に NOx 等の前駆気体排出量の変動と、こ れにともなう対流圏オゾン変動の寄与が重要である。 図1が示す通り, NOx (NO)の存在はこれ自体がHO<sub>2</sub> を OH に変換させることで, OH 増加を引き起こすとと もに, NOx によるスモッグ反応で生成されるO<sub>3</sub>も重要 な OH 生成源である。この NOx を中心とする効果と 同時に, メタン, CO, NMVOCs の増加が及ぼす OH への影響も重要であり, 特に 1850 年以降に観測され ているメタン濃度の継続的な増加は, R1 の反応によ り, 当該期間における OH 濃度の傾向に負の影響を 及ぼしていると考えられる:

$$CH_4 + OH (+ O_2) \rightarrow CH_3O_2 + H_2O$$
 (R1)

このようなメタン増加による負の OH 効果は、上述の NOx による正の効果と相殺し、 20 世紀終盤に入るま で、 OH 濃度の変動がそれほど大きくないことが図 4c からわかる[*Naik et al.*, 2013]。ただし、メタンと OH の 変動を同時に議論する際には、メタンと OH との間の 相互作用[*Prather*, 1996] にも注意が必要である。た とえば、 R1 の反応を考えると、 OH 減少によるメタンの 増加は、 OH 消費の増大を起こすことで、さらなる OH 減となり、メタン濃度には正のフィードバックが加わる ことになる。このような効果をあらわす指標として、 OH-CH4 相互作用に関するフィードバック・ファクター (f)が用いられる。このファクターを用いると、 OH 変化 によるメタン寿命変化に付随するメタン濃度変化を、 以下のようにあらわすことができる。

$$\frac{m}{m_0} = \left(\frac{\tau}{\tau_0}\right)^f \tag{1}$$

ここで,  $m_0, m, \tau_0, \tau$ はそれぞれ, 変化前後における全 球平均メタン濃度および OH に関するメタン寿命であ る。上述のような相互作用が働くため, フィードバック ファクター(f)は 1 以上の値となり, 近年のメタン濃度 域に対しては,  $f \approx 1.1 \sim 1.5$ と見積もられている[Fiore et al., 2009; Holmes et al., 2013; Stevenson et al., 2013; Voulgarakis et al., 2013; Prather et al., 2001]。ただし, この広い推定幅が示す通り, 使用モデルによって大 きなバラつきがみられ, R1 および関連化学反応過程 の不確定性が顕在している。

図 4c では、1980 年代以降に顕著な OH 増加が卓 越しているが、これについては気候変動(温暖化)に よる気象場変化が大きく影響していると考えられる。 Wild et al. [2020] や Nicely et al. [2020] は、水蒸気 などの気象変数も含め、OH の経年変動とそのモデ ル間でのバラつきについて、機械学習的方法で解明 を試みているが、OH 変動の支配要因はモデルごと に大きく異なっており、OH 変動メカニズムの統一的 理解として、定量的な解決には未だ到達していない のが実情である。

上で概説した通り,全球OH分布とその経年変動に ついて,化学輸送モデル等を用いた継続的な議論 が展開されているところであるが,そもそも各モデル で考慮されている化学反応過程・メカニズムに精緻 化・改良の余地がないか否か,という視点も重要であ る。OH に関連する対流圏化学反応として,理解が不 十分・不完全であるとみられるプロセスとしては,不均 一反応が挙げられる。対流圏オゾンを主眼とする化 学モデルでは,通常以下のような NO<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> に関す るエアロゾルや雲粒子表面での不均一反応 [Dentener and Crutzen, 1993] が必ず導入される(ダ

表 1. 各種不均一反応が及ぼすメタン寿命(年), NOx, オ ゾン対流圏存在量への影響。化学気候モデル CHASER に よる推定例 [*Ha et al.*, 2021]

	メタンの大気	対流圏における存在量	
	中寿命 (年)	$NO_x(TgN)$	$O_3(TgO_3)$
標準実験	9.44	0.115	402.29
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 不均一反応の影響	+4.48%	-5.51%	-2.12%
雲粒上	+0.30%	-0.43%	-0.13%
エアロゾル粒子上	+3.87%	-4.56%	-1.83%
HO2不均一反応の影響	+1.51%	+3.26%	+0.05%
雲粒上	+1.00%	+1.87%	+0.01%
エアロゾル粒子上	+0.41%	+1.11%	+0.03%
RO2不均一反応の影響	+0.15%	+0.52%	-0.93%
雲粒上	+0.23%	+0.39%	-0.41%
エアロゾル粒子上	-0.12%	+0.09%	-0.43%
全不均一反応の影響	+5.91%	-2.19%	-2.96%
雲粒上	+1.34%	+1.71%	-0.56%
エアロゾル粒子上	+4.15%	-3.44%	-2.21%

\*STD はすべての不均一反応が考慮された標準実験を表す。 \*メタン寿命は、OH 反応による寄与のみを示す。 ストや硫黄酸化物(SOx)・二次有機エアロゾル・ハロ ゲン関連の反応を含むモデルもある):

$$N_2O_5 (+H_2O) \to 2HNO_3$$
 (R2)

最近では、これに加えて、過酸化ラジカル(HO<sub>2</sub>, RO<sub>2</sub>) の不均一反応(粒子相への取り込み):

$$\mathrm{HO}_2 \to 0.5 \mathrm{\,H_2O_2} \tag{R3}$$

$$RO_2 \rightarrow products$$
 (R4)

も実験的・観測的手法により確認されており[e.g., Cooper and Abbatt, 1996; Geyer et al., 2003; Kanaya et al., 2007; Taketani et al., 2012, 2013], 化学輸送モ デルへの実装も試行されつつある[e.g., Macintyre and Evans, 2011; Ha et al., 2021]。化学気候モデル CHASER を用いた最新の感度実験[Ha et al., 2021] では, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, HO<sub>2</sub>, および RO<sub>2</sub> の各不均一反応の対 流圏化学における役割の定量化が行われている(表 1)。これによると, メタン寿命や対流圏オゾン量への 影響は, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> の不均一反応によるものが最も大きい が, HO<sub>2</sub>, RO<sub>2</sub> の反応による寄与も無視できないことが 分かる。領域規模でみた場合, HO<sub>2</sub>, RO<sub>2</sub> の不均一反 応の寄与は, 夏季・北半球での OH への影響が大き く, 特に RO<sub>2</sub> については, PAN(ペロキシアセチルナ



図 5. O<sub>3</sub>-NOx 化学における HONO の役割。化学反応(R5-10)については本文中を参照のこと。R8,9,10 はエアロゾル 表面での不均一反応である。

イトレート)の生成抑制を介して高緯度の地表NOx濃度を増加させる可能性も示唆されている。しかしながら、このようなモデル研究では、取込係数(γ; 2.3節参照)の値に、概して暫定的な一定値が使用されており、 粒子組成・状態や湿度などの情報を加味した実験的・観測的研究[e.g., *Taketani et al.*, 2012]との有機的な連携が今後の課題である。

対流圏オゾン化学における不確定性の大きい過程 として、上述の不均一反応に加え、亜硝酸(HONO) に関する化学反応がある(図 5)。都市域では、ppbv のオーダーの高濃度の HONO が観測されることも多 く[e.g., Acker et al., 2006; Villena et al., 2011], 郊外に おいても ~100 pptv の濃度レベルになることがしばし ば観測される。高濃度の HONO の光解離(R5)は、 OH のソースとして重要視されている。

$$HONO + h\nu \rightarrow OH + NO$$
 (R5)

HONO のオゾン化学における重要性はモデルシミュ ーレーション[e.g., Jacob, 2000; Li et al., 2011]でも指 摘されているが, HONO の生成・消滅を支配する化 学反応には未解明の部分が大きく, モデルでの表現 が不十分である。大気中の HONO の生成源としては, 自動車等のディーゼルエンジンによる人為起源 [Kurtenbach et al., 2001]や土壌からの直接放出 [Porada et al., 2019]に加え,以下のような化学反応を 介した寄与も重要である(図 5)。

$$NO + OH + M \rightarrow HONO + M$$
 (R6)

 $HONO + OH \rightarrow NO_2 + H_2O$  (R7)

 $NO_2 + H_2O(surface) \rightarrow 0.5 \text{ HONO} + 0.5 \text{ HNO}_3 (R8)$ 

$$HONO + (surface) \rightarrow NO + OH$$
 (R9)

$$HNO_3 + h\nu + (surface) \rightarrow HONO + NO_2$$
 (R10)

この中で,特に,粒子表面の不均一反応(R8,10)は 日中の HONO の生成源として重要視されている [Ye et al., 2018]。前述の化学気候モデル CHASER によ るシミュレーションでは,これらの HONO 化学反応過 程の導入により, NOx および O3の対流圏存在量が,



図 6. 対流圏における主な OH 生成・消滅反応(*Wennberg et al.* [2006] を一部改変)。HOx 収支については, 化学気候モ デル CHASER 計算 [*Sekiya et al.*, 2020 など]による。

それぞれ最大で 21%, 5%減少し, メタン寿命として 15%増加に匹敵する顕著な OH 減少が確認されてい る。しかしながら,ここでも不均一反応(R8~10)の取 込係数(γ)の与え方に大きな不確定性があり,各種 野外観測や実験と突き合せた詳細な検証が必要で ある。

以上のように、OH に関連する化学過程には、未だ に大きな不確定性が残存しており、観測・モデルによ るさらなる定量化への挑戦を継続すべきである。現状 で検討されている温暖化緩和策では、メタンや代替 フロン等に着目することも多くなってきており [*IPCC*, 2021; *Nakajima et al.*, 2020], これらの大気中寿命を 支配する OH 濃度の分布・変動の理解が急務となっ ている。

# 2.2. トレーサーモデルとの OH 知見整合化:メタン等 収支の詳細理解

本小項目では、トレーサー(ここではメチルク ロロホルム)の収支を利用し、OH に関する重要 指標を評価するアプローチについて述べる。メタ ン、代替フロン類(HCFCs, HFCs)や大気汚染物 質(CO, NMVOCs など)の除去は、OH との反応 に支配される。OH の大気中寿命は約1秒と非常 に短いため、OH 濃度は非常に不均一な時空間分 布をもつ。OH の短い寿命は,大気汚染物質等と の高い反応性に由来する(図 6)。オゾン,過酸化 ラジカル (HO<sub>2</sub>, RO<sub>2</sub>), NOx および SOx などは, 主に OH との反応によって生成または変換される。 OH の現場大気の測定は実現したが,チャンバー 内・野外での相互比較から見積もられた不確かさ は 13%, 69%と高く[*Schlosser et al., 2009; Kanaya et al., 2012*],広域の OH 濃度を計測から評価する手 法も確立されていない。

化学気候モデル (CCM) によって推定された全 球平均 OH 濃度は, (7.4-13.3)×10<sup>5</sup> molecules cm<sup>-3</sup>の 範囲で大きな変動を示し, このような OH 推定 のバラつきは,最大で 16% (モデルアンサンブル の 1- $\sigma$ 標準偏差) の CH<sub>4</sub>寿命の不確実性につなが ることが報告されている [*Naik et al.*, 2013]。

一方で、OH の全球平均濃度は、主に OH との



図 7. (a) AGAGE の4地点について, 観測およびシミュレーションによる CH<sub>3</sub>CCI<sub>3</sub> 濃度変動の比較。小パネルは MHD (Mace Head)と Cape Grim(CGO)の2点間の濃度差を示す。(b) 3手法による OH 変動の推定。1:CCM シミュレーション[*Stevenson et al.*, 2020], 2:経験的(機械学習的)手法 [*Nicely et al.*, 2018], 3: CH<sub>3</sub>CCI<sub>3</sub> からの推定 [*Patra et al.*, 2021]。

反応によって消滅し、かつ、その全球排出量が正確にわかっているトレーサー化学種の濃度をモデル化することによっても推定可能である。本節では、CCMで計算されたOH濃度の検証方法として、このようなトレーサーとして、メチルクロロホルム(CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>)の測定とシミュレーションを利用した手法について概説する。CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>の光化学的消失は、化学輸送モデルMIROC4-ACTMで次のようにモデル化されている(詳細は Patra et al. [2014, 2021]を参照)。

CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> + OH → products: ~90%, 対流圏 (R11) CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> + hv → products: ~10%, 成層圏 (R12)

CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>の放出は、100%人為起源であり、半導体 製造における溶媒としての使用によるものである。そ の 2000 年までの生産量・消費量については、正確な データがある[*McCulloch and Midgley*, 2001]。 2000 年以降について、*Patra et al.* [2014]では、CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 排出量が、5 年を時定数として指数減衰していくシナ リオを想定している。さらに、1990 年代初頭につい ては、大気・海の交換による最大 5%の海洋シンクも 考慮されている [*Patra et al.*, 2021]。CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 濃度 については、AGAGE; the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment [*Prinn et al.*, 2005]や、 NOAA; 米国海洋大気庁 [*Montzka et al.*, 2011]、お よび HIPPO; HIAPER Pole-to-Pole Observations [*Wofsy et al.*, 2011]の観測値が利用可能である。

図 7a は、1985 年から 2019 年の期間の CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 濃度変動について、AGAGE による観測と MIROC4-ACTM によるシミュレーションを比較 したものである。シミュレーションでは、経年変 化なしの気候値的な月平均 OH を使用しているが、 1990 年代初頭までの増加や、その後のモントリオ ール議定書(1987)に従った排出削減による指数 関数的な減衰トレンドなど、CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 濃度の主要 な経年変化を正確に再現できていることがわか る。ただし、年によっては、シミュレーション濃 度と観測濃度の間にやや差異(通常は 10%未満) がみられることがある。このようなモデルバイア スを利用して,OH による消失の経年変化の導出 が可能である[Patra et al., 2021]。この方法によっ て推定されたOH 変動を,別手法による推定例と ともに図7bに示す。ここで,OH 変動はその推定 手法によって大きく異なっており,対流圏OH 変 動の大きさ,またその要因について,統一的な理 解には至っていないといえる。なお,CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>か ら推定されたOH 変動は,エルニーニョ南方振動 (ENSO)と統計的に有意な相関を示しているこ

(ENSO) と紀計的に有意な相関を示しているこ とがわかったが, CCM シミュレーション [Stevenson et al., 2020]や機械学習的方法 [Nicely et al., 2018] では明瞭なシグナルは見えていない。

化学気候モデル (CCM) でシミュレートされた OH 濃度の評価指標として, OH の平均存在量の南



図 8. CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 観測濃度の南北勾配から、モデルを併用して 推定した対流圏 OH 濃度の NH/SH 比。CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> の南北勾 配(水平点線)は、複数の観測データセット(黒:AGAGE, 赤:AGAGE Medusa, 青:NOAA フラスコ:緑:HIPPO 航空機 観測, 30 N~30 S, 高度 1-4km)によるもの。ACTM 大気輸 送モデルからは、標準の CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 全球排出量および全球平 均 OH 濃度を基本としつつ、 OH に様々な NH/SH 比を想定 した感度シミュレーション (2004~2011 年)を行い、フラスコ 観測および HIPPO で期待される CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 南北勾配を算定 し、直線近似した。観測における CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 南北勾配量(水 平点線)と直線との交点(塗りつぶし記号)の x 座標が、OH 濃度の NH/SH 比の推定値となる。*Patra et al.*[2014]より。

北半球間差も有用である。OH の半球間濃度差は、 北半球の大気汚染や陸域環境と南半球の自然・海 洋環境における大気化学の理解に資する指標で ある。最近 20 年間に着目した場合, CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>の 排出量は対流圏での OH による消失に比べて有意 に小さい状態にあり、南北半球間の CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 勾配 は、OH 濃度の半球間差を大きく反映していると 考えられる。このような視点で半球間の CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub> 勾配に着目すると,以下のようなことがわかる。 CCM で計算されている OH 濃度場では、北半球 OHの南半球に対する比(NH/SH比)が通常1よ り大きいが、このような OH 分布は、NH/SH 比が ~1 (南北半球でほぼ同一 OH 濃度)の OH 分布に 比べて、CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>排出源の北半球への偏りを打ち 消す効果が強すぎ、CH3CCl3 勾配を有意に過小評 価する点である(図 7a, 挿入図)。AGAGE と NOAA の長期観測と、HIPPO による広域航空機観測を使 用したさらなる解析では、NH / SH OH 比の最適 値は 0.97±0.12 であり、CCM シミュレーション 1.28±0.10より有意に低い(図8)。このギャップ を説明しうるプロセスで、CCM で適切に取り入れ られていないものを戦略的に精査・特定し、ギャ ップを埋めることが重要である。例えば、雲の効 果で光解離速度定数(J値)にバイアスがある可 能性や、北半球で OH を主に消費している一酸化 炭素 (CO) の排出量過小評価の可能性などについ て、CCM での感度実験などから有力な仮説を抽出 し、観測知見も合わせて評価することが望ましい。 HFC などの代替フロン類なども, 排出量が十分な 精度で抑えられれば、濃度変動観測データから OH に関する情報を導き出すことができるトレー サーとして機能する。短寿命物質では、例えば CO の濃度鉛直勾配なども OH の影響を受けており、 OH の情報を紐解く情報源となりうる。今後の CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>の濃度変化からも引き続き OH に関する 情報を得ることができる。これらを総合して、化 学過程に基づく CCM モデルにおける OH の時空

間分布と、トレーサー収支に基づく大気輸送モデ ルでの OH の評価との整合を目指して、不確定性 の低減に繋げていくことが重要である。

# 2.3. OH 反応性・過酸化ラジカル反応性のフィールド 観測による検証

OH および過酸化ラジカルの「消失項(反応性)」 を実測から評価することで,化学過程の未知量を明 らかにすることも有効な手段である。本節では,OH および過酸化ラジカルの消失項について現在指摘さ れている未知量:未知 OH 反応性および過酸化ラジ カルの不均一消失過程について紹介する(図 9)。



図 9. 大気 HO<sub>x</sub> ラジカル反応サイクルにおける未知量。

大気中において OH と反応するすべての化学種と の反応速度を足し合わせたものは総 OH 反応性と呼 ばれる。

$$\frac{\mathrm{d}[\mathrm{OH}]}{\mathrm{d}t} = k'_{\mathrm{total}}[\mathrm{OH}] = \left(\sum_{i} k_{i}[C]_{i}\right)[\mathrm{OH}] \qquad (2)$$

ここで *k*'<sub>total</sub> は総 OH 反応性, *k*<sub>i</sub> は化学種 *i* と OH の 二次反応速度定数, [*C*]<sub>i</sub> は化学種 *i* の濃度を表す。

総 OH 反応性の決定方法について, 各個別の化 学種の濃度を決定し積み上げるボトムアップ型と, 大 気中での OH の減衰速度を測定することで総 OH 反 応性を直接測定するトップダウン型のふたつの方法 がある [*Yang et al.*, 2016]。ボトムアップ型の測定の場 合, CO, NOx, SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> などの無機ガス測定に加え, ガスクロマトグラフィーや陽子衝突型質量分析法による VOCs の測定が行われる。トップダウン型の直接測定では、人工的に生成させた OH の減衰速度を直接測定する絶対反応性測定法[Sadanaga et al., 2005] や、大気中物質に対し OH と競争的に反応する参照物質を添加し、人工的な OH 暴露によるその減少量を測定することで総 OH 反応性を見積もる反応性比較法 (CRM)がある。ボトムアップ型、トップダウン型それぞれに更にバリエーションがあるがここでは割愛する。

積み上げ法と直接測定法による総 OH 反応性測定 の比較は 20 年以上様々な場所で行われてきた。そ の結果ほぼすべての場所で,直接測定された総 OH 反応性は個別の化学種の反応性を積み上げたもの では再現できないことが報告されてきた。この起源が 未把握の OH 反応性が未知 OH 反応性(unknown OH reactivity)と呼ばれている。都市や都市郊外では 未知 OH 反応性の占める割合は 30%以下から 50% 以上までさまざまで,時刻,季節や場所により大きく 変動する。森林域,大規模松造林,タイガ,熱帯雨 林および海洋上においても 40%以上の未知 OH 反 応性の存在が報告されている[Nakashima et al., 2014; Yang et al., 2016]。もし、この数十%にもおよぶ 未知 OH 反応性をまったく考慮しない場合,オゾン生 成は 30-80%の過小評価になると報告されている[Li et al., 2020; Sadanaga et al., 2005; Yoshino et al., 2012].

未知 OH 反応性の起源として,(1) 一次放出され る未知物質およびその光酸化生成物,もしくは(2)既 知物質の光酸化で生成する検出が難しい生成物が 考えられている。いくつかの集中観測において,観測 された未知 OH 反応性と対流圏化学反応メカニズム (RACM)もしくは詳細化学モデル(MCM)に基づく 0 次元ボックスモデル計算により予想される既知成分 の光酸化生成物由来の OH 反応性の比較が行われ た[Lew et al., 2020; Lou et al., 2010; Whalley et al., 2021; Whalley et al., 2016]。中国珠江デルタ,北京, ロンドンの都市部,米国インディアナ州の落葉樹林に おける観測いずれにおいても、モデルで未知 OH 反応性を説明できる場合と共に説明できない場合両方が示され、未知物質の一次放出源の存在が示唆されている。したがって、未知 OH 反応性の一部である、 (2)既知物質の光酸化で生成する検出が難しい生成物の OH 反応性については化学モデル計算で評価が可能であることが判明する一方で、(1)一次放出される未知物質およびその光酸化生成物の寄与分については、今後の課題として残っており、大気化学モデル計算を用いたオゾン生成評価における本質的なバイアス要因となりうる。

一次排出源からの未知物質の放出について,す でにいくつかの調査が進められている。Kovacs et al. [2003]はトンネル内の空気を測定し、自動車排ガスの 由来と考えられる10%前後の未知OH反応性を報告 した。また, Nakashima et al. [2010]はシャーシダイナ モ上でテスト運転させた乗用車からの排気ガス中に 約 10%程度の未知成分の放出があることを報告した。 山崎ら[2012]および井田ら[2016]は、幼齢のカナダト ウヒおよび杉から放出される成分の未知 OH 反応性 が40%以上に及びうること、また温度環境に依存する ことを報告した。Nölscher et al. [2013]はオウシュウトウ ヒの成木から放出される成分の未知 OH 反応性が季 節変化することを示し、晩夏~秋にかけて 80%近い 未知 OH 反応性が存在すること, 気温や強風などの 外部ストレスが未知成分放出に関連することを報告し た。一方で, Kim et al. [2011]はテフロンバッグ内のレ ッドオーク,シロマツ,ブナ,アメリカハナノキの枝より 放出される成分には有意な未知 OH 反応性は存在し ないことを報告した。上述したように特に植物から一 次放出される成分について未把握の部分が多く残さ れており,また,生物由来のため樹種や外部条件に より未把握成分の放出量が影響されると考えられるた め,より詳細な放出実態の調査が今後進められること が期待される。また,一次放出された未把握の成分 が光酸化を経てどのように変化するか知見は無く,今 後に解明すべき課題である。

既知物質の光酸化由来の未知 OH 反応性につい ては化学モデル計算で評価が可能であるが,当然そ れはモデルの正確さに依存する。Sato et al. [2017]は, 国立環境研究所のスモッグチャンバー(物理化学編 を参照)を用い,主要な芳香族 VOCs の光酸化で生 成する成分について, MCM に基づく0次元ボックス モデルによる未知 OH 反応性の再現性を調査した。 モデル計算は未知 OH 反応性を説明できたが, 過大 評価を含んだ。これはモデル計算が準揮発性有機 化合物(SVOCs)による二次有機粒子の生成や壁面 への沈着を考慮していないためである。チャンバー 実験ではこれらの影響は実際の大気条件より大きく なるが、大気への応用においても潜在的な誤差とな りうる。そのため、より正確なモデルでの記述を目指し、 粒子生成や沈着による VOCs の消失を正確に記述 するモデルの開発が進められている。

以上のように、大気 OH 反応性の全容把握に向け 新たな取組が期待される。一方で、これまでに見出さ れた反応性のギャップが、どのように全球大気化学 へ伝播するか、についても把握しておくことが望まし い。例えば現在の誤差要因を組み込んだ大気化学 モデルが提案されることを期待したい。

一方, OH のリザーバーである過酸化ラジカル (HO<sub>2</sub>, RO<sub>2</sub>)についても未知反応性を評価・同定し, モデル へ組み込んでゆくことが重要である。 雲やエアロゾル 表面での不均一消失過程は, HO<sub>2</sub> や RO<sub>2</sub> の大気化 学において重要な消失過程であり, 場合によっては オゾン濃度を数十%減少させるなど, 大きな影響を 及ぼすことが示唆されてきた[2.1 節, Ha et al., 2021; Jacob, 2000]が, 理解が不十分である。不均一消失 過程による過酸化ラジカル, XO<sub>2</sub> (HO<sub>2</sub> or RO<sub>2</sub>)の消失速度は衝突頻度と取り込み係数yで記述される。

$$-\frac{\mathrm{d}[\mathrm{XO}_2]}{\mathrm{d}t} = \gamma \frac{1}{4} \omega S[\mathrm{XO}_2] \tag{3}$$

ここで、 $\omega$ および *S* は XO<sub>2</sub>の熱平均速度 (cm s<sup>-1</sup>)およ び単位気体体積当たりに含まれるエアロゾル等の不 均一反応場表面積濃度 (cm<sup>2</sup> cm<sup>-3</sup>)である。モデル計 算では、多くの場合  $\gamma_{HO2} = 0.2$  および  $\gamma_{RO2} = 0.1$  (ここ での R はヒドロキシ基を含むものに限る)が用いられ る[*Ha et al.*, 2021; *Jacob*, 2000]。

HO2の不均一消失については、多くの室内実験に よる取り込み係数が報告されている[Cooper and Abbatt, 1996; George et al., 2013; Taketani et al., 2013; Thornton and Abbatt, 2005]。大気化学モデル計算で は近似的に固定値が使われているが,取り込み係数 は不均一反応場の組成や状態に依存するため,室 内実験では 0~1 の範囲で値が報告されている。特 に、銅や鉄などの金属イオンが存在すると取り込み 係数を増加させることが報告されている[Jacob, 2000]。 実大気エアロゾルは組成・状態が場所・時間で変化 するため、取り込み係数も一定値ではないと予想され る。 実際に, Taketani et al. [2012] は中国の山間部で 採取したエアロゾルを再噴霧し疑似生成させた大気 エアロゾルの取り込み係数が 0.09-0.40 の範囲で変 動することを報告している。したがって,一定値を用 いる現在の大気化学モデル計算は潜在的な誤差を 含むと考えられる。しかしながら、実大気エアロゾルを 対象とした報告が限られているため、一定値の取り込 み定数を近似した計算の潜在的な誤差については、 検証できていないのが現状である。

RO2の不均一消失に関しては,室内実験の報告も限られている状態である。Gershenzon et al. [1995]は塩化ナトリウムを塗布した壁面へのCH<sub>3</sub>O2の取り込み係数を測定し3×10<sup>-3</sup>と報告した。Villalta et al. [1996]はPAN 由来のCH<sub>3</sub>C(O)O2の純水表面への取り込み係数を4.3×10<sup>-3</sup>と報告した。両者ともに取り込み係数としては小さい値であるため,飽和炭化水素やPAN由来のRO2への不均一消失過程の寄与は小さいと考えられている。一方で,例えばイソプレンやプロペン等の不飽和炭化水素由来のヒドロキシ基を含むRO2は水への親和力が高いと予想されるため,取り

込み係数としては HO<sub>2</sub> に近い 0.1 が推奨値とされて いる。しかしながら,実際の大気条件に近い室内実 験はいずれの場合も行われておらず,以上の推奨値 がどれだけ信頼できるのかは不明である。また, RO<sub>2</sub> は取り込み過程について提案されているものの, HO<sub>2</sub> の場合と同様に実大気では一定値でないと予想され る。したがって,一定値として取り扱う近似が持つ潜 在的な誤差もモデル計算には含まれると予想される。 以上より, RO<sub>2</sub> の取り込み係数についての推奨値は HO<sub>2</sub> に比べさらに大きな潜在的な誤差が含まれてい るのが現状であると考えられる。

上述したように過酸化ラジカルの不均一消失過程 の評価には潜在的な誤差要因が含まれている。しか し、その誤差要因を除くための新たな試みも進められ ている。例として、これまで難しかった大気中のエアロ ゾル粒子への過酸化ラジカルの取り込み速度の直接 リアルタイム測定について国内で近年大きな発展が みられている。Zhou et al. [2020]は、レーザー誘起蛍 光法を用いたエアロゾル粒子への過酸化ラジカルの 取り込み速度測定法とエアロゾル濃縮法(VACES)を 組み合わせ,実大気エアロゾルを直接利用した HO2 の取り込み速度測定を世界で初めて行った。測定さ れた取り込み係数は平均値で 0.24 と現在の推奨値 (0.2)とほぼ一致したが、一方で 0.08(25 パーセンタ イル, P25%)から 0.36(P75%)の変動を示した。現時点 では変動要因の特定はなされていないものの, 今後 の外気観測を通じたエアロゾル成分や外部環境との 比較により, HO2 の取り込み係数の変動要因の解明 が今後進められることが期待される。また, Kohno et al. [2020]は、レーザー誘起蛍光法を用いた実大気 条件下での高時間分解能 RO2 気相反応速度測定法 を開発した。この手法はエアロゾル取り込み速度測 定に応用可能なため, RO2 の取り込み係数を実験的 に測定するブレークスルーとして今後の展開が期待 される。最終的には、変動要因と連動させた取り込み 係数を大気化学モデルに導入することが必要であり、 今後取り組んでいかなければならない。不均一反応

のほか, RO<sub>2</sub> + NO 反応による有機硝酸の生成経路 も HOx サイクルに影響を及ぼすため, 理解度の向上 が望まれる。

以上, 2.1~2.3 節では日中の大気酸化能を支配する OH ラジカルと過酸化ラジカルの研究必要性について述べてきた。一方で、夜間に濃度が上昇する NO<sub>3</sub> ラジカルによる酸化も、一部の炭化水素類等にとっては重要であり、NO<sub>3</sub> 自身の収支・動態や、N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> および CINO<sub>2</sub> への変化、さらには翌朝に光分解で生成する Cl 原子を介した反応についても今後の研究が必要である[Brown and Stutz, 2012]。

#### 2.4. 対流圏オゾンの化学プロセス理解の強化

上記のような対流圏の光化学プロセスは,前駆物 質である NOx や炭化水素類の排出と合わせて,全 球規模の対流圏オゾンの分布や変動を決定づける 支配要因となる。本節では対流圏オゾン収支や関連 するプロセス面での課題について,全球・アジア・都 市の3つの視点から順に述べる(地球システム科学, 健康面については第4節も参照のこと)。

図2に示したように、対流圏オゾンはCO2、メタンに 次ぐ第3の温室効果気体(全球平均での大気中滞在 時間は 25.5 日, Griffith et al. [2021]) であり, 同時に 光化学オキシダントの主要成分として健康や植生へ の被害を生む。対流圏オゾンの全球存在量は数値 モデルや観測を含み, 2010 年で 347±28 Tg [IPCC, 2021]とされ、漸増傾向が続いているが、減少がみら れる地域も大きく空間的不均一さは大きい。全球的 な衛星観測でも漸増傾向がみられるが, 手法等によ りバイアスが大きく[Gaudel et al., 2018], IGAC のアク ティビティ TOAR-II(対流圏オゾンアセスメント第二期, 2020-24 年)で詳細評価予定である。プロセス別では HO<sub>2</sub>(または RO<sub>2</sub>) + NO 反応による光化学的オゾン 生成項や,光分解などのオゾン消失項には2倍程度, 成層圏からの流入や地表面沈着のフラックスには3 倍程度の不確かさがあり[Young et al., 2018], 理解の 向上が必要である。産業革命前やその頃のオゾン量

についても知見が増えたが[Yeung et al., 2019; Tarasik et al., 2019], 不確かさが大きい。温暖化に伴い, 光化学的オゾン生成速度の増大や, Brewer-Dobson 循環の強化による成層圏-対流圏交換量の 増加[Sudo et al., 2003], 気温上昇とともに放出量が 増大する植物由来揮発性有機化合物を前駆物質と したオゾン生成などによる濃度増大(気候のペナルティー)があるが, 水蒸気増加によるオゾン消失項の増 加が上回り, 全体では負のフィードバックが働くとされ ている[IPCC, 2021]。植生被害は CO2 吸収低下につ ながるため, オゾンは「間接的な温室効果」を持つと されるが未解明である(大気陸域統合編を参照)。

これらの未解明問題や濃度トレンドを高精度に評価 するため、また新たな衛星観測(静止衛星など)の評 価のために、地上測定局・船上観測等の現場観測や、 地表から対流圏界面を超えて高度分布を計測する オゾンゾンデ気球観測や航空機観測が果たす役割 は大きい。対流圏オゾンアセスメントレポート(TOAR) では、全球規模で 9000 を超える地上サイトのオゾン 濃度データを収集し、分布や長期トレンド、気候・生 態系・健康へのインパクトを議論したが、アジアや南 半球などに大きなデータ空白域が広がっていた。前 述の TOAR-II ではその空白域の解消を一つの目標 としている。

海洋上のオゾンデータ不足・プロセス理解の遅れも 今後の課題である。ハロゲン(Cl, Br, I)に関する化学 反応が成層圏オゾン層破壊を引き起こすことは知ら れるようになったが、同様に対流圏オゾンに対しても 大きく影響する可能性があり、最近の化学輸送モデ ルではこうした過程が導入されつつある [e.g., Sherwen et al., 2016; Sekiya et al., 2020]。しかしなが ら、現状では未解明な部分が大きく [Abbatt et al., 2012; Simpson et al., 2015], 化学気候モデルでは表 現されていない。臭素やヨウ素(X; X = Br, I)は以下 の触媒反応によりオゾン破壊を起こす:

$$0_3 + X \to X0 + 0_2 \tag{R13}$$

$$HO_2 + XO \rightarrow HOX + O_2$$
 (R14)

$$HOX + h\nu \rightarrow OH + X$$
 (R15)

net: 
$$HO_2 + O_3 \rightarrow 2O_2 + OH$$
 (R16)

X, XO の供給源は, 海面から放出される CH<sub>3</sub>X, CH<sub>2</sub>X<sub>2</sub>, CHX<sub>3</sub>, HOX, X<sub>2</sub> などの光解離や不均一反 応である。化学輸送モデル GEOS-Chem によるシミュ レーション例 [Sherwen et al., 2016]では, ハロゲン化 学の導入により, 対流圏オゾン総量が 19%減少し, 全球平均 OH 濃度も 8%程度の減少につながると示 唆している。ただし, 実際には上述のハロゲン供給源 の強度や化学反応過程の推定には大きな不確かさ があり, データ同化など, 観測と密に連携した研究 [Sekiya et al., 2020] による精緻化が期待される。

主要なオゾン減少要因と考えられるヨウ素の供給源 として、海洋表面での大気オゾンとヨウ化物イオンの 不均一反応の重要性が指摘された[Sakamoto et al., 2009; Carpenter et al., 2013]。海洋表面温度が高い 西部太平洋低緯度域などではヨウ化物イオン濃度が 高いとされ[Chance et al., 2019], この過程が重要であ るとの指摘があるが未解明である。MAX-DOAS(複 数軸太陽散乱光測定・差分吸収法解析)による IO (一酸化ヨウ素)ラジカル測定[Takashima et al., 2022] などは有効な手段であり、船舶・離島などでの大気・ 海洋総合調査による過程解明が望まれる。船舶によ る洋上広域のオゾン観測 [Kanaya et al., 2019]等を 世界各国での観測と統合してデータベース化し、数 値モデルと合わせてハロゲン化学の役割を解明する Oceans WG を TOAR-II にて立ち上げたところである。

次に、アジア地域スケールでの対流圏オゾンプロセ ス理解の進展と今後の課題について述べる。オゾン は PM2.5 のように、東アジア地域規模の大気汚染とし て大規模に発生し、偏西風により我が国へと越境流 入する。そうした寄与が東アジアの経済発展とともに 2000 年代から増し、社会的にも話題となった。国内 汚染の寄与分や、欧州・米国も含む半球規模大気汚 染の寄与分との分離評価が重要となり、アジア地域 スケールの気象・化学輸送モデル(WRF/CMAQなど) が観測との整合性などから最適化され評価に用いら れてきた[e.g., Yamaji et al., 2006]。地域別に排出量を 仮想的に変化させる感度実験や,発生源地域や化 学的生成地域にタグをつけるタグ付きトレーサーモ デル実験などにより,我が国上空の春季オゾンに対 する中国起源分の寄与率やその変化などが見積もら れてきた[e.g., Nagashima et al., 2017]。

第1節で述べたように,我が国のオゾン(光化学オ キシダント)の環境基準達成率は全国的にほぼ0%で あり、あらゆる角度からの評価が求められている。科 学的に堅牢な評価とするために、MICS-Asia シリー ズにみられるように国際的なモデル相互比較実験も 行われ,日本からも複数の研究グループが参加して きた。近年その第三期(MICS-Asia III)の成果がとり まとめられ, Atmos. Chem. Phys.誌の特集号に 20 報 を超える論文が掲載されている[e.g., J. Li et al., 2019]。 数値モデルへ入力する排出量の共通化などにより, オゾン濃度の特徴的な季節性などはよく再現され, モデル間の相関も比較的良好であったが,モデル間 の大きなばらつきや日本上空オゾン濃度が過大傾向 となる点などは依然として大きな課題である。数値モ デルでの海表面での乾性沈着速度が過小である点 や,反応性が低い窒素酸化物から NOx が再生して いる可能性など、プロセスに関する新たな指摘がなさ れ, 今後の解明が必要となっている[e.g., Akimoto et al., 2019, 2020]。アジア地域の大気化学輸送モデリ ング・観測再現性については、欧州のモデルなどと 比べて一日の長がある。たとえばドイツの専用航空機 HALO が 2018 年春季に台湾をベースに、都市ごと から広がる汚染大気の特徴づけを行った EMeRGe-Asia 航空機観測データのプロセス解析では日本の 研究者のアジア地域スケールモデルの有用性が明ら かとなっており、オゾン生成やエアロゾル輸送メカニ ズムに関する共同解析を実施する計画である。また、 前述の TOAR-II でも東アジア WG や都市オゾン WG などが立ち上がっており、日本からも主要なデータや 解析情報を提供してゆく。こうしたモデル解析の評価 軸を提供するうえで,地上観測等の維持は重要であ

る。EANET(国内の利尻~小笠原などや北東・東南 アジア), WMO/GAW(綾里・与那国・南鳥島), 研究 コミュニティや研究所・大学のスーパーサイト等(落石 岬・波照間・沖縄辺戸岬・福江島・能登など), つくば のオゾンゾンデデータなどは国内研究や IPCC 報告 書にも活用されてきたが、今後さらに発信して海外研 究者に広く活用されるべきである。OMI 衛星などによ る地表付近オゾン量のアジア規模解析[Hayashida et al., 2018]などの実績も活かし、上述した各種衛星観 測についても、アジア規模のモデルシミュレーション と統合的な解析に活用される包括的な研究体制が 望まれる。PM2.5の減少を裏返したようなオゾン濃度 の増加が 2013 年以降中国上空で見られている[e.g., K. Li et al., 2019]が, 原因について理解が定まってお らず, 化学・物理を包括したプロセス研究が必要であ る。また、今後一層の排出増が見込まれる南アジア・ 東南アジア地域への解析の適用も望まれる。地表・ 大気境界層・自由対流圏を対比した形での, HONO を含む窒素酸化物全種を網羅したオゾンと前駆物質 総合観測と解析も、オゾン化学の本質に迫るものとな る。オゾンの生成・消失に関連づけながら、前節まで に述べた HOx ラジカル濃度やエアロゾル粒子・雲粒 上の不均一反応の実大気中評価を行うことも重要で ある。必要なセンサ・計測技術開発も望まれる。

都市・局所発生源付近のスケールでは,第3節に 述べる排出量と濃度を結びつけること,そのために水 平解像度の高い衛星観測を利用することの重要度が 増してくるが,排出量と濃度を結びつける化学プロセ スの非線形性を分子反応レベルで明らかにすること も大きな課題である。第1節の図3で示したように, オゾン濃度等値線ダイヤグラムには,前駆物質であ るNOx 濃度に強く依存するNOx 制限領域と, VOC 濃度に強く依存しNOx 濃度には逆相関するVOC制 限領域とがあると考えられているが,詳細は十分明ら かではない。地球温暖化・健康影響の軽減を目指し て,オゾン濃度を低減させるためには,その制限因 子の理解度を高める必要があり,行政や政策対応の ための科学的知見の充実化が不可欠である。特に 都市~郊外の間に存在するはずのレジーム境界を, その季節的・長期的変化を含めて,非線形化学と排 出の統合的理解に基づいて明らかにし,専門外の関 係者も含めて共有することが鍵となる。オゾン低減戦 略は,その瞬間の制限因子の理解だけに基づいて 近視眼的に策定すべきものではなく、ダイヤグラム上 の長期的なゴールを設定し、業界別に異なる排出特 性や規制の推移などを俯瞰的に捉えて,削減の道筋 を検討すべきものであるが,科学的エビデンスに基 づき,排出削減効果を確かめながら進めて行くべきも のである。

オゾンや関連物質のプロセスごとの寄与の解明に は、同位体情報を用いることも有効である。オゾンの 生成反応では質量非依存の大きな同位体分別が見 られるため、対流圏や成層圏のオゾンは、特異的に 大きい三酸素同位体異常(Δ<sup>17</sup>O~25‰,δ<sup>17</sup>O-0.52× δ<sup>18</sup>O)を持つ。そのため Δ<sup>17</sup>O 値は, 大気中の光化学 反応過程におけるオゾンの関与度を評価したり,光 化学反応経路を特定するトレーサーとなる。南極東 部で Δ<sup>17</sup>O(SO4<sup>2-</sup>)は氷期に低いことが, O3 より OH に よる酸化が支配的だったためである可能性 [Alexander et al., 2002]や, 南極西部で $\Delta^{17}O(NO_3^-)$ は 徐々に減少しており,過去 150 年分については,南 半球中高緯度で HO2 の増加が O3 の増加を上回り, NOをNO2へと酸化させる際にHO2の相対的重要性 が増した可能性[Sofen et al., 2014]が指摘されてきた。 国内では利尻での降水中の硝酸イオンの Δ<sup>17</sup>O 値の 季節変化から大気中の HNO3 生成反応に占める NO2 + OH 反応の寄与率の季節変化が、定量的に 評価された[Tsunogai et al., 2010]。さらにこのように湿 性沈着する硝酸イオンのΔ<sup>17</sup>O値と,乾性沈着する硝 酸イオンのΔ<sup>17</sup>O値の比較から、札幌などの都市域で は、NO + RO2 反応で生成した NO2 が HNO3 生成に より大きく寄与していることを見出した[Nelson et al., 2018]。 南極での硫酸・硝酸イオンの Δ<sup>17</sup>O 値の季節 性から春季にはオゾンよりOHによる酸化経路が重要

となる可能性やハロゲン酸化物が硫酸の生成に寄与 する可能性が指摘されたほか,南極の沿岸部と内陸 でプロセスが異なる可能性が示唆された[Ishino et al., 2017, 2021]。また,グリーンランドのアイスコアでの ム<sup>17</sup>O(SO4<sup>2</sup>)値が増加傾向にあり,1960年代以降に 雲内での液相オゾン酸化が pH に依存して寄与増大 したためとされた[Hattori et al., 2021]。今後,OH の 長期変動などに関する情報を取得することへの期待 がある。また,これまで難しかったオゾンの同位体組 成の定量が近年容易になり[e.g., Vicars et al., 2012; Xu et al., 2021],観測ベースで成層圏オゾン流入が 対流圏オゾンへ与える影響を定量化する際の有用な ツールとなる。

# 3. 排出量と濃度のリンク

# 3.1. トップダウン排出量推計

排出量推定は,従来,様々な排出源の活動量と排 出係数を掛け合わせ,それらを積み上げる、「ボトム アップ法」により実施されてきた。こうしたボトムアップ 推定は様々な工夫・改良により高度化されてきたが、 各種データの不確実性を積み重ねた際の大きな推 定誤差の問題は依然として残っている。また,利用す る各種統計データの公開までにある程度の時間を要 するため、準リアルタイム更新は難しい。こうした問題 を補うため、数値モデルで求めた排出量変化に対す る濃度変化の感度を介して,濃度の観測データから 排出量を最適化する、「トップダウン法」を用いた排出 量推定が行われている。例えば、トップダウン推定に よるアメリカの排出量の減少率が米国環境保護庁 EPA によるボトムアップ推計と比較して著しく低いこと が明らかになり、排出規制の評価の見直しを迫ったと いった事例もある [Jiang et al., 2018]。このように、トッ プダウン推定はボトムアップ推定を補足する情報を 提供することができる。

トップダウン推定は,解析的な逆解析手法 [Heald et al., 2004]や排出量とカラム量の間の線形関係を仮定した手法 [Martin et al., 2006] のような比較的簡



図 10. 2008 年夏季における北米の対流圏 NO2 カラム量分 布(上)。OMI 対流圏 NO2 カラム量を用いた、メガシティとその 周辺域のコントラストを解像可能なモデル水平解像度(左下)と解像不可能なモデル水平解像度(右下)における、ロサ ンゼルス周辺(上図の黒枠)のトップダウン NOx 排出量推定 結果の比較。"平均値"は黒枠内の排出量の平均値。 Sekiya et al. [2021] から改変。

便な手法から開発が進んだ。近年では, 高品質な衛 星観測データの蓄積が進んだこともあり、4 次元変分 法(4D-Var)やアンサンブル・カルマンフィルタ(EnKF) といった先進的データ同化手法の大気化学への応 用も盛んに行われるようになっている。先進的データ 同化手法は観測とは異なる時刻・場所の異なる物理 量の推定が可能という特徴を活かし, 大気化学分野 のデータ同化はトップダウン排出量推定にも応用さ れている。こうした手法は多大な計算コストが要求さ れるが,異なる特性を持つ複数の衛星測器からの多 成分観測データを大気輸送・化学反応過程に整合 するように統合できるという利点もある。こうした利点 を活用し、多成分観測の統合により大気化学システ ム全体を最適化することで、数値モデルで求めた排 出量変化に対する濃度変化の感度(例えばOH濃度 など)の改善を介して,排出量推定の改善も期待でき る [*Miyazaki et al.*, 2017]。

上に述べたような手法を用いて、様々な SLCFs 各 成分についてのトップダウン法による排出量推定が

行われてきた。国内でも、オゾン, NO2, CO, SO2など の衛星観測データを統合した全球対流圏化学再解 析データ(TCR) [Miyazaki et al., 2020b] を構築し, オゾンや無機エアロゾルの前駆物質のうち NOx, CO, SO2 排出量の季節変化や経年変化,新型コロナウィ ルス蔓延に伴う経済活動低下による世界的な排出量 減少を明らかにしてきた [e.g., Miyazaki et al., 2021]。 また,オゾンや二次生成有機エアロゾルの重要な前 駆物質でもある非メタン炭化水素類(NMHCs)につ いては、ホルムアルデヒド(HCHO)やグリオキサール (CHOCHO)といった NMHCs の酸化反応から生成さ れる二次物質の衛星観測から推定されてきた [e.g., Millet et al., 2008, Stavrakou et al., 2009]. HCHO, CHOCHO が NMHCs の各化学種に対して異なる収 率を持つことを利用して, HCHO, CHOCHO の衛星 観測を組み合わせて、人為・自然起源の NMHCs 排 出量を推定するといった試みも行われている [e.g., Cao et al., 2018]。さらに, CrIS からは, NMHCs の主 要成分のひとつであり,陸上植生からの放出量が多 いことで知られるイソプレン(C5H8)の直接リトリーバル も試みられており [Fu et al., 2019], こうしたデータを 利用することで今後トップダウン推定精度のさらなる 向上が期待できる。無機エアロゾルの前駆物質のひ とつである NH<sub>3</sub> については, 近年, GOSAT などの赤 外分光観測からの長期間の衛星リトリーバル・データ が利用可能となってきている[e.g., Someya et al., 2020]。こうした衛星観測データは、トップダウン排出 量推定にも利用されるようになりつつあり,北米にお ける農業起源の NH3 排出量の過小評価などが示唆 されている [Cao et al., 2020]。

こうした SLCFs 各成分のトップダウン排出量推定は ボトムアップ推計の不確実性を低減する可能性は秘 めている一方,利用する数値モデルや衛星観測に関 わる不確定性も大きいのが現状である。複数のボトム アップ,トップダウン推計の相互比較から,個々のトッ プダウン推計の間のバラつきがボトムアップ推計と同 程度であることが明らかになっている [Elguindi et al., 2020]。こうしたバラつきの一因は、トップダウン推計 に用いる数値モデルにおける大気輸送・化学反応過 程の表現に関連した排出量-濃度間の感度の不確実 性である。例えば、1節でも述べたようなオゾン化学 の非線型性の解像の空間スケールを数百キロから数 十キロへと改善することによって, OH 濃度を介して, メガシティにおける NOx 排出量推定に大きく影響す ることがわかっている (図 10) [Sekiya et al., 2021]。今 後,領域モデルを利用し,数キロスケールのオゾン化 学非線型性の解像した上でのトップダウン排出量推 定へと改善することも必要であろう。また, HCHO, CHOCHO 濃度とNMHCs 排出量の間の感度につい ては,計算資源の制約から簡略化されたモデル内の 有機化学反応メカニズムを見直すべきか否か検証が 必要だろう。さらに, 推定に用いた観測データ, トップ ダウン手法の違いも, 排出量推定の不確実性要因で ある。IGAC の対流圏オゾン評価レポート(TOAR-II) では大気化学再解析ワーキング・グループ

( https://igacproject.org/chemical-reanalysis-focusworking-group)が立ち上げられ,対流圏オゾン前駆 物質のトップダウン排出量推定を含めた世界各国の 研究機関が構築した再解析データの相互比較が計 画されている。こうした活動からも,数値モデル性能, 同化する観測データ,データ同化手法の違いによる トップダウン排出量推計への影響が明らかになって いくことが期待される。

今後の課題としては、第一に新しい衛星観測の活 用が挙げられる。これまで数多くのトップダウン排出 量推定に活用されてきた NO<sub>2</sub>, CO, SO<sub>2</sub>, HCHO に 加え, CHOCHO, C<sub>5</sub>H<sub>8</sub>, NH<sub>3</sub> といった成分の衛星観 測データを統合することにより、全球規模の大気化学 システムを包括的に最適化することが可能になる。例 えば、様々な SLCFs の主要消失源となっている OH 濃度は化学反応過程を介して NOx, CO, NMHCs 等 の排出量にも影響される(図 1)。多成分の排出量を 同時に最適化することにより、単一成分の排出量の 最適化を行う場合に比べて、排出量に起因する OH 濃度の不確定性をより大きく低減することが期待され る。さらに、OH 濃度の改善等による排出量一濃度間 の感度の改善を通じて、さらなる排出量推定精度の 改善も期待でき、広域的なオゾンや二次生成エアロ ゾルの生成過程についての理解の前進にも貢献す る。物質の大気中輸送に関する共通性についても評 価で加味することができる。また、GEMSのような静止 軌道衛星による1時間間隔のオゾン、NO2、CO とい った主要成分の観測をデータ同化することで、ラッシ ュアワーなどに伴う排出量・オゾン化学過程の日変化 や短期変動の要因について、これまでの低軌道衛星 の1日1回のデータ同化から得られる知見を超えて 解明できると期待される。

第二の課題としては、数値モデルなどに起因するト ップダウン排出量推定の不確実性の低減が挙げられ る。特に、モデルで求められる排出量-濃度間の感度 の不確実性を低減するためには、地道なモデル素過 程の改善が求められる。2.1節で述べたように、これま でモデルで考慮されてこなかったが重要な化学反応 過程の考慮することや、科学的に理解はされていて も計算資源上の制約から簡単化されていた過程の表 現方法の見直しの努力を継続することが必要と考え られる。また、*Miyazaki et al.* [2020a] で行われたよう な複数モデルと多成分観測によるデータ同化も、今 後、排出量-濃度間の感度の不確実性低減を実現す る有効なアプローチとなりうるだろう。

# 3.2. SLCFs インベントリのトップダウン評価と GHG との統合解析

前節で述べたような排出量の「トップダウン」推計 手法は、全球スケールだけでなく、アジアなどの地域 スケールや国内などにも適用できる。たとえば今後ま すます人口が集中する「都市圏」からの排出や大気 環境の管理のために、都市域や、個別の発電所等 の大規模固定排出源などの排出量評価を客観的な 濃度観測から実施し、対策の進展と歩調を合わせて 評価を進めることは意義深い。その際には、前述のよ うに、オゾン化学で見られる非線形性[e.g., Inoue et al., 2019]を解像して排出量を評価することが重要である。また、排出量の評価に用いることができる都市 圏での観測データについては、日本の関東圏のよう に、環境省の常時監視データが密に入手できる場合 もあるが、新興国などではその限りではない。比較的 密な場合であっても測定局は離散的に配置され、ま た必ずしも測定局が周囲を代表した濃度を計測でき ているとも限らないため、排出の評価には限界があっ た。

近年,人工衛星による二酸化窒素(NO2)の計測が 画期的に進歩を遂げ、2017年に打ち上げられた欧 州宇宙機関の TROPOMI 衛星[Veefkind et al., 2012] では3.5×5.5km<sup>2</sup>の空間解像度で,かつ離散的では なく「面的に連続」な計測が実現された。TROPOMI によるNO2計測は、新型コロナウィルスの世界的蔓延 に伴う経済活動(エネルギー燃焼)の低下を都市ごと のレベルで、日毎に描き出したことで大きくメディアに 取り上げられ,迅速に社会ニーズにこたえたことは記 憶に新しい。面的に連続した情報からは,任意の閉 曲面からの湧きだし(divergence)を基にした排出の 評価[e.g., Beirle et al., 2020]も可能となる。一方で, 国内研究者[e.g., Irie et al., 2021]も参加した TROPOMI による対流圏 NO2 標準プロダクトの公式 検証では 25-50%もの過小評価がみられる[Verhoelst et al., 2021]などの基礎的課題もあり, 検証と原因解 明, アルゴリズムの向上が求められる。また, OH によ る NOx 除去の効果を加味して NOx 排出を精確に導 出することも課題となる。OH の挙動を逆にこうした衛 星データから導出する可能性も含め、今後の工夫が 必要とされる部分である。衛星データによる排出の精 確な評価を踏まえた、オゾンなどの二次生成物に関 する排出源別寄与解明なども重要な課題となる。全 球の場合と同様に、局所・都市・地域スケールでも排 出評価は NOx だけでなく、CO、SO2、NH3などの一次 物質にも適用可能である。さらに,二次物質 HCHO や CHOCHO の衛星観測に基づき, それらの前駆物

質である非メタン炭化水素類の排出量推計にも適用 可能である(3.1節参照)。

社会経済情報による各排出部門の活動量や排出 係数などを基に,ボトムアップ法で構築される排出イ ンベントリ[e.g., Kurokawa and Ohara, 2020]と並立さ せ,それぞれの視点での不確実性評価を重ね合わ せ,排出量の適正な範囲を絞り込んでゆくことが重要 である。

これらのトップダウン排出量推計手法は CH4, CO2 の計測にも適用可能である。我が国の温室効果ガス 観測技術衛星 GOSAT シリーズの 3 号機, GOSAT-GW ミッション(2023 年度打上予定)では, TANSO-3 センサにより、全球を10km、都市域を1-3km(検討中) の水平解像度で, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub>の面的に連続な分 布を同一視野で計測する計画であり、CO2, CH4 と合 わせた NOx の排出評価を目指す(3.3 節)。SLCFs と 温室効果気体 GHG をともに扱うことの利点は以下の 2 点である。第1に, SLCFs のうち NO2 の場合はとく に, エネルギー高温燃焼のマーカーとなり, CO2 とも 共通な化石燃料燃焼の良いトレーサーとなる。NO2 計測では差分吸収法による感度が高いことが特長で, プルームの流れをよく捕捉でき, プルーム内に NOx と共存する CO2 排出量のトップダウン推計精度を高 めることができる。排出比が既知であれば、NOx 排出 量から CO2 排出量を推計することも可能であり、ボト ムアップインベントリとの協業範囲も広がる。第2に, メタンやオゾンは CO2とともに温暖化に影響を与える 物質であり、オゾンはメタン酸化で二次生成すること もあり、これらの排出の一元管理が有効となる点であ る。地表面気温の上昇を1.5度以内に収める地球温 暖化対策目標が世界で共有される中, CO2 を 2055 年排出ゼロにすると、およそこの目標が達成されるが、 SLCFs の放射強制力が減少しない場合はその達成 可能性が下がる,とされており[IPCC, 2018],総合的 な取り組みが必要となっている。AR6 でもメタン削減 によるオゾン減少が今後の温暖化制御を検討するう えで重要なプロセスとされ[IPCC, 2021], 今後 10 年ス

ケールでの政策の急加速とその検証が求められるようになった。また,脱温暖化・脱大気汚染を同時に目 指す GHG/AQ(大気質)統合解析で,気候変動・健 康両面でのコベネフィットを創出することは,新興国 にとっては比較的目指しやすい目標ともなる。

2019 年 IPCC 第 49 回会合では, 第 7 次評価サイ クルでこれまで GHGs を扱ってきた国別排出インベン トリ報告で SLCFs を新たに対象としてゆくために方法 論を構築することが決まった (https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2019/05/IPC C-49 decisions adopted.pdf#page=10)。GHGs に関 しては, 2023年に始まり5年に一度繰り返されるグロ ーバルストックテイクにて,排出削減取り組みの進捗 を客観的に評価して報告してゆくことになるが、 SLCFs についても的確な評価の向上が必要となって ゆく。SLCFs の方法論でも主体となるのはボトムアッ プ推計であるが,トップダウンとの統合的評価につい ても取り入れて行くべきである。GHGs においては、 Global Carbon Project (GCP) にて定期的にこれらを 総合診断し論文化することが近年定着してきた (https://www.globalcarbonproject.org/)。これらの知 見集約は、IPCCの報告書などでも引用されやすいも のとなっている。SLCFs についても GCP の SLCFs 版 としての知見集約を適切なタイミングを狙って目指す べきであろう。対流圏オゾンについては, IGAC の activity TOAR-II (Tropospheric Ozone Assessment Report Phase II, 2020-2024, https://igacproject.org/activities/TOAR/TOAR-II) が 類似の活動であるともみなしうるが、他の SLCFs にお いても追随すべきである。日本大気化学会は GHGs と SLCFs を扱う研究者が所属する、世界的にもユニ ークな学会であり、その特長を生かすことができる点 でもあろう[e.g., Takegawa et al., 2004]。また, キロメー トル級の超高解像度を備えた大気輸送モデルにつ いても開発や評価が進んでおり[e.g., Sekiyama and Kajino, 2020; Takigawa et al., 2020], 化学と排出の要 因分離や定量化などのために知見を結集することが 重要である。

エアロゾルの個別成分については、固体の硝酸ア ンモニウム粒子[*Höpfner et al.*, 2019]などを除いては 衛星からの直接観測を適用するのは難しい。そこで、 例えばブラックカーボン(BC)の現場観測から中国の 排出量と推移をトップダウン式で評価し、ボトムアップ 値を検証する [*Kanaya et al.*, 2020]取組もなされてき



図 11. キロメートル級での大気組成濃度観測(左上)から,ポイントソース級の排出インベントリを導出し(右上),またオゾン・ PM25 濃度や健康影響への結びつきを明らかにする。削減政策に対し,科学知見を提供し,政策を合理化,改善する。その改善
善効果をさらに衛星観測で明らかにする,といった好循環サイクルを生み出す。

た。BC の濃度変動には, 排出量の変動に加え, 湿 性除去の効果も含まれるため複雑だが, 風上での積 算降水量[e.g., Oshima et al., 2012]を指標とし, また 同時に排出され湿性除去の影響を受けない一酸化 炭素(CO)との濃度比を評価に用いるなどの工夫で, 排出項と消失項を分離した評価が可能であることが 示されている。

以上をまとめると、衛星観測も活用した、排出量の 適正かつ迅速な評価を通じて、図 11 に示す時計回 りの循環の一部を担い、社会科学や行政とも連携し、 喫緊の課題である地球温暖化や大気汚染問題の解 決を導くことを目指す。つまり、大気濃度を衛星観測 から押さえ、化学を考慮したモデル解析で排出量と 原因を明らかにし、排出削減政策を合理化して、対 策効果による濃度低下を客観的に再度衛星で評価 する、という好循環サイクルを回してゆく。2030 年の 新たな温室効果ガス削減目標(2013 年比 46%削減)、 2050 年のカーボンニュートラルへ向けた取り組みを 評価し政策を最適化するためには、GHGs を中心に、 SLCFs も合わせて、このサイクルを従来よりも速く、少 なくとも2-3 年に一度回して行く必要がある。そのため にも、社会経済統計のリリースを待つ必要があるボト



図 12. 航空機で観測された火力発電所由来の NO<sub>2</sub>(左) と CO<sub>2</sub>(右)のメッシュプロット。白菱形の点が 2 つの煙突 の位置を示し、白矢印は気象値における風向、黒矢印は NO<sub>2</sub> のプルーム形状を基に調節した風向を示す。白破線 は、2 つの煙突の中間地点から調節した風向に 400 m 離 れた地点を中心とした、800 m × 2000 m の領域を示す。 Fujinawa et al. [2021] から改変。

ムアップ型インベントリより先行してトップダウン推計 を行い,評価を牽引してゆくことが重要である。

#### 3.3 GOSAT-GW 衛星検証・地上観測との融合

前述したように, TANSO-3/GOSAT-GW 衛星観測 では, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub> を全球から都市などの大規模 排出源まで,10 km~数 km の空間分解能で観測す ることを目指している。こうした衛星観測の空間分解 能は, 数百 km~数 kmオーダーまで, 10年で約10 倍向上のペースで改良されてきており、NO2のような 短寿命微量気体の水平方向の不均一性を衛星観測 からも捉えられるようになってきた[e.g., Griffin et al., 2019]。衛星観測の高空間分解能化により、都市内 部に点在する燃焼起源のプルームの形状とその広 がりを精度よく捉えることができるため、衛星データを 使用したトップダウン排出量推計の高精度化が期待 される[e.g., Lorente et al., 2019]。CO2 については, 欧 州の OCO (Orbiting Carbon Observatory)-2 衛星に よる発電所からの排出量推計が行われており[Nassar et al., 2021], EPA (米国環境保護庁)の提供する各 事業所の排出量日報との比較では、平均で15%程 度の誤差範囲内で排出量推計が可能であることが示 されている。また、ドイツ・ブレーメン大学の研究グル ープでは、CO2とNO2それぞれ別の衛星観測データ を用いた複合解析により、都市域における CO2 排出 量の推計が行われた。この研究では, NO2 のプルー ムの情報から風向などを調整してその形状を最適化 することで、都市域における CO2 プルームを同定し、 その排出量を 23%~72%の精度で推計している [Reuter et al., 2019]。これにより GHG/AQ 統合解析の 重要性と今後の課題が明確化された。

GOSAT-GW に関連する国内研究チームでは、世界初となる、同一の航空機プラットフォームからの CO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub> 同時リモート計測を成し遂げ、衛星観測の 意義を実証するとともに解析を例証した[Fujinawa et al., 2021](図 12)。その中で、数 km スケールにおけ る燃焼由来のプルーム内の NOx が光化学平衡値か ら大きく乖離していることが示唆され、プルーム内に おける光化学プロセス解明のために、排出源近傍の 酸化気体(O<sub>3</sub>や HOx など)を含めた包括的な観測の 必要性が示唆されるなど、さらなる課題が浮き彫りと なった。GOSAT-GW のような太陽同期軌道をもつ衛 星観測では、現地時間における同時刻の観測を一 日一度しか行われないため、GHGs/SLCFsの日内変 化を捉えることはできない点にも留意が必要である。 これらのことから、衛星観測の技術的発展は著しいも のの、その時空間的な精度や、排出量推計精度には 衛星固有の課題があり、その空間代表性の補完や日 内変化の評価には、地上観測や航空機・船舶観測と の複合的な解析・検証が必要不可欠であるといえる。

TANSO-3/GOSAT-GW をはじめとする衛星を利用 した GHG/AQ の高空間分解能観測の検証には,全 球~都市内を幅広く網羅した地上観測ネットワーク, およびそれらに加えて航空機や船舶, 可搬型の地上 測器を利用した包括的な観測キャンペーンが有効で ある。高解像度の数値モデルも合わせ,排出源等の 解析を強化できる。地上 CO2 観測網については TCCON (Total Carbon Column Observing Network: https://tccon-wiki.caltech.edu ) 🕅 COCCON (Collaborative Carbon Column Observing Network: https://www.imk-asf.kit.edu/english/COCCON.php ) があり、NO2 観測網については PGN (Pandonia Global Network: https://www.pandonia-globalnetwork.org)が最近立ち上がったが、これらを複合的 に利用して衛星データの評価・検証体制を充実させ る。キャンペーン観測では, TANSO-3/GOSAT-GW で対象とする CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>と NO<sub>2</sub>に加えて, O<sub>3</sub>や VOC, OH, PM2.5 などの関連物質や雲の観測もその対象と することが望ましい。このことにより, 先述のように km スケールのプルーム内における NO2 をはじめとした SLCFs の空間的な分布・化学・排出を総合的に把握 することが可能となる。例えば、2016年に行われた KORUS-AQ (Korea-United States Air Quality) [Crawford et al., 2021]では、韓国/オリンピックパーク などの地上計測点や,複数の専用航空機など様々 なプラットフォーム・測器を用いて,国際チームにより O<sub>3</sub>, NOx, SOx, VOC,エアロゾルに加えて気象デー タや紫外放射強度などが総合的に観測された。この ような観測キャンペーンを我が国がイニシアチブを発 揮して推進し,GHG/AQ統合解析の点で世界を牽引 するような検証基盤を構築する必要がある。観測キャ ンペーンには,環境省の常時監視データも含めて, 地上・航空機・気球観測等を用いて検証を行うことで, TANSO-3/GOSAT-GWをはじめとするGHG/AQ統合 解析衛星データの高精度化を目指す。

#### 3.4. 日変化・高度分布など次世代衛星ミッション目標

3.2 節で述べたサイクルに貢献できる, 脱温暖化・ 脱大気汚染を牽引する大気組成衛星観測を, 21 世 紀のSDGs達成に必要な社会的なコモン(共有財産) として提案してゆく。その先駆けとなる, 直近の TANSO-3/GOSAT-GW 計画についてはすでに述べ たが, 本項ではその先の衛星観測計画を論ずる。

まず,時間軸について観測頻度を向上できる「静 止衛星」の利用を実現したい。人間活動からの排出 日変動(ラッシュアワーなど),光化学過程の評価,生 態系の光合成による炭素吸収変化をとらえることが最 終目的である。

2006 年頃,大気化学研究会(日本大気化学会の 前身)・大気環境衛星検討委員会では,静止衛星か らの観測の重要性をいち早く認識し,紫外可視・赤 外等の波長域をカバーする,アジア静止軌道からの オゾンおよび前駆気体計測プロジェクト GMAP-Asia を構想し,2009 年には「静止大気・気象観測ミッショ ン」として JAXA のミッション定義審査を通過したが予 算等の諸事情により残念ながらプロジェクト化される ことはなかった。同時期に韓国が紫外可視センサに 絞った形での提案を進め,2020 年 2 月 GEMS の打 上に成功,アジア上空からの大気組成静止観測の 「第一幕」が開いた。我が国の研究者もGEMS サイエ ンスチームに入り,検証やデータ利用などで地域協 力を進め成果を上げる見込みである。

その後の我が国独自の大気汚染計測計画はいったん,静止観測ではなく,国際宇宙ステーション(ISS)からの計測計画などに姿を変えたが,それでも実現は遠かった。その曲折ののちに辿り着いたのがTANSO-3/GOSAT-GWで,大気汚染物質では可視バンドのNO2のみの形となったが,CO2,メタン計測と合流する形で,10年来の悲願は一部が実る形となった。

一方,静止衛星観測構想は継続している。GEMS と相補的な形で、アジアの大気微量成分を計測する ことが重要と考えられる。まずは, GMAP-Asia で十分 に検討したオゾン、CO 計測を、気象衛星「ひまわり」 10·11 号(2028 年)で気温·水蒸気の高度分布計測 の目的で搭載が有力視されているハイパースペクト ル赤外サウンダで実現してゆくことである。欧州では Sentinel 4 と相乗りとなる IRS にて静止軌道からオゾ ンと CO を赤外 9.6, 4.7µm 帯で計測する計画で [Holmlund et al., 2021], そのアジア版を目指すもの である。すでに低軌道周回衛星では,赤外 IASI と紫 外 GOME2 のオゾン計測複合によって, 高度 0-3km の対流圏オゾン量の日々の変化が捉えられ,地上観 測と同様の傾向が得られることが確かめられ,オゾン の越境大気汚染も可視化されつつある[e.g., Cuesta et al., 2018]。これを静止軌道から1時間ごとに追い かけ, 排出源や光化学と結び付けて行く構想である。



図 13. 周回低軌道(左)と静止軌道(右)から, CO<sub>2</sub>カラム 平均濃度(XCO<sub>2</sub>, Patra et al. (2017)より)を計測する際 に, どの程度, 雲の存在(灰色)で観測が限定されるかを 表した概念図。雲マスクデータにはひまわり8号の TAOT データを利用。[宇宙航空研究開発機構(JAXA)の分野 横断型プロダクト提供サービス(P-Tree)より]

第2にCO2, CH4の日変化を静止衛星軌道からと

らえること、つまり米国 GeoCarb 計画のアジア版を狙 う。GeoCarbではすでにフィージビリティ検討が進み、 近赤外・短波長赤外での CO2 計測については,8km 四方程度の水平分解能で SNR 500 程度を達成し <0.3%,1 ppmの精度要求を達成しうると考えられてい る[Polonsky et al., 2014]。科学的には地表面計測の カバレッジを上げることが最大のメリットである。周回 軌道上の OCO-2 による CO2 観測では,1 度のスキャ ンでカバーできるのは非常に限られた空間範囲で、1 年間データを重ね合わせても排出箇所を特定するの は容易ではない。最新の低軌道衛星, TROPOMIの メタン, GOSAT-GW 計画での CO2 では, 面的に連続 な計測が 1~3 日に1度可能となるが,雲で計測でき ない領域も多く, CO2 高濃度域は隠されてしまう場合 も多い。それに対し、静止軌道から1時間ごとの計測 を一日10回行えば、雲に覆われ1日に一度も観測 できない領域は約半分に減り,東アジアの計測ドメイ ン平均で2倍の情報が得られ、高濃度域も検出しや すくなる(図 13)。関東冬季のような晴天域では観測 頻度が 9 倍にも達する地点もあり、日変化観測が可 能となる。生態系の光合成や呼吸のサイクル、ラッシ ュアワーなどの人間活動のサイクルをとらえ,それら の寄与分離を目指す。

3 点目として,現在 GEMS が約 7km 四方での計測 を実現させている NO<sub>2</sub> 計測を 1km 格子まで水平解 像度を高め,静止衛星からの排出量変化監視能を 大幅に向上させることも有意義である。実際,積分時 間を増すなどによりこの高解像度化は可能と考えら れる。NOx, オゾン, CO などの主要な濃度計測値を 数値モデルへデータ同化することにより,周回衛星 で一日 1 度のデータを基にしたこれまでの場合と比 較して,化学過程や排出量の解析を飛躍的に向上 することができ,さらには両者の結び付きを,非線形 性の壁を乗り越えた形で解明することができる。

メタン観測については世界的に進展が著しいため 参考として本段落に特記する。カナダの GHGSat シリ ーズ [Varon et al., 2018, 2019]や米国の COOL
[CEOS AC-VC, 2018]など, 民間企業の商用衛星によ るCH4のポイントソース観測も行われるようになってい る。これらの超小型衛星によるポイントソース観測は、 従来の低軌道衛星によるモニタリング重視の観測や 新たに目指す静止衛星による定点観測に変わるもの ではないが,大規模発生源や複数の発生源が混在 する領域での大気 CH4 濃度の高精度観測では大い に活用できるであろう。また, 2027年に打ち上げが計 画されている MERLIN は、衛星搭載差分吸収ライダ ーであるため季節・緯度帯・昼夜を問わず地表付近 の CH4 を高精度に観測することができると期待され、 さらに観測地方太陽時6時と18時の太陽同期軌道 が検討されていることから、従来の 10 時, 13 時の受 動型衛星センサのデータとも組み合わせて, CH4の 日内濃度変動という新たな情報が得られる可能性が ある[Ehret et al., 2017]。

こうした極軌道衛星,静止衛星,そして ISS といっ た低軌道プラットフォームや,近年,商業ベースでの 打ち上げも見られる小型衛星といった観測プラットフ ォームをいかに最大限活用し,科学的に有意義な大 気組成衛星観測とし,脱温暖化・脱大気汚染といっ た大気化学の二大チャレンジの達成に結びつけるか は,大気化学コミュニティが挑戦すべき課題といえる。

しかしながら、大気組成観測を含む地球観測衛星 は、多くの場合、多額の費用や多くの人的資源を必 要とする巨大国家プロジェクトであり、それゆえ、いか に地球規模の環境問題解決がミッションに掲げられ ているといえども、常に科学的側面が優先されるわけ ではなく、納税者への還元といった国家としての都合 も時として優先される。例えば、先述の GEMS はアジ アの上空を観測する静止衛星であり、東アジアから 南アジアまでが観測範囲に入っているものの、残念 ながら、観測範囲の東端に位置する日本は午前 11 時頃までの観測データ、西端に位置するインドは午 後から日没までの観測データが公開されているのみ である。これは、技術的な制約もあるが、韓国の大気 汚染を監視するという目的に沿う運用がなされている ためである。こうしたギャップが生じることを防ぎ、地 球規模課題の解決に向けて,衛星観測が貢献する 科学的成果を最大限出せるよう,国際的な連携を常 にとりつつ衛星観測事業を推進することは重要であり、 科学者が果たしうる役割の一つである。CEOS AC-VC(地球観測衛星委員会 大気組成バーチャルコン ステレーション, https://ceos.org/ourwork/virtualconstellations/acc/)はそうした国際連携を深めるため に良い場であり, 温室効果ガス・大気質・対流圏オゾ ン・エアロゾルといった個別要素について科学者の 連携が進められ、ホワイトペーパー等の文書としても 公開されている。また、衛星観測から得られる科学的 成果を,いかに国際的な脱温暖化・脱大気汚染の政 策に活かすか,といった点でも科学者の国際連携と それを基にした多方面へのアウトリーチは欠かせな いといえる。

#### 3.5. 他の衛星ミッション検討と方向性

次に静止衛星以外による大気微量成分(長・短寿 命種両方)の衛星観測について,既存の衛星観測と 今後の計画,展望について記述する。まず,高層の 微量気体成分観測の歴史を簡潔に記述する(成層 圏・中間圏編も参照のこと)。1980年代,南極のオゾ ンホールの発見と同時期に高層大気のオゾンを中心 とした微量気体観測が盛んとなる (LIMS や SAGE-I, SAGE-II)。1991 年にアメリカの UARS 衛星の HALOE, MLS により高層大気の多成分微量気体の 鉛直分布の limb 観測が開始,物質輸送の特に鉛直 輸送の議論が可能となった。これにより大気化学だけ でなく力学過程の定性的な描像を描くことが可能とな った。中でも成層圏の南北(Brewer-Dobson)循環場 の可視化(Tape recorder signal [Mote et al., 1996] と しての)が世界を驚かせた。続いて 2000 年代半ばに NASA の A-Train シリーズの Aura 衛星 と Aqua 衛 星の搭載測器 AIRS, MLS, OMI, HIRDLS 等によっ て,大気微量成分の中部対流圏から中間圏までの 鉛直分布観測が可能となった。日本でも ADEOS 衛 星(1996 年)と ADEOS-II 衛星(2003 年)の ILAS, IMG や ILAS-II による高緯度極域の大気微量成分 の観測がなされた。また 2002 年にスウェーデンの Odin/SMR 衛星, 日本の ISS 搭載の JEM/SMILES (2009 年)では, これまで主流であった可視紫外, 赤 外, マイクロ波の観測波長域から, サブミリ波, テラへ ルツ帯の観測域に進展し, 得られる微量成分と高度 域が増えた。その背景で技術的進歩もうかがえる。 SMILES は太陽非同期のためオゾン化学過程の日 変化の特徴を捉えることに成功している[Sakazaki et al., 2013]。さらに カナダの SCISAT-1 衛星の ACE-FTS による FTS 測器を用いた太陽掩蔽観測による高 鉛直分解能, 高精度観測も実施されている。

現在,高層大気の微量気体成分観測は Aura MLS, ACE-FTS のみが継続しているだけである。 ESA による Sentinel シリーズから Sentinel-5, 5p が打 ち上げ,計画されているが,主に対流圏の微量成分 観測である。Aura 衛星は 2004 年打ち上げから間も なく20年が経つ。これらの衛星測器の後継機がいま だ計画されておらず,これまでの高層大気の微量成 分観測の継続性や今後の気候変動のモニタリングと いう観点から高層大気の微量気体成分観測を主目 的とした衛星計画が喫緊の課題といえる。その一方 で,時代は,気候変動,大気汚染問題等,より人間 社会・生活に直結する課題を解決するための衛星観 測が求められ,対流圏下層の大気汚染関連物質の 衛星観測計画はにぎわっている。しかし最近,中間 圏を含めた超高層大気の観測データの蓄積から対 流圏や成層圏と超高層大気の現象を関連付ける研 究も注目を集めており、大気の上下結合を意識した 統一的な観測,および数値実験が今後活発になるこ とが予想される。

主に軌道衛星は静止衛星に比べ,時間分解能が 悪く,短寿命物質の監視には不適切である。その一 方で対象物質の高度分布を詳細に得ることができる というメリットがある。今後,相補的に互いの長所を有 機的に観測する仕組みも必要と考えられる。Aura 衛 星のような Limb, Nadir 観測が同時に行える大型衛 星計画も考えうる解かもしれない。

日本国内では,2012 年頃より将来の地球観測衛 星計画に関する研究者レベルの議論が継続的に行 われてきた(例として,2013 年に設立された25 の関 連学会が参加する宇宙関連タスクフォース会議リモ ートセンシング分科会;TF)。その中で,特に人工衛 星による地球観測の現状,科学コミュニティの構築や 衛星データの利活用等が,日本学術会議の地球惑 星科学委員会地球・惑星圏分科会において,2017 年「我が国の地球衛星観測のあり方について」

http://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-23-( t247-3.pdf)という提言がまとめられている。このような 背景から, 2018年よりTF 分科会において, 将来の衛 星ミッションを公募し、今後の衛星計画を提案してい く方針である。これまで 20 数件の衛星計画が提案さ れている(2021年8月時点で第2回公募の審査中)。 この中で,高層大気をlimbで観測する衛星として「全 大気圏衛星観測-超電導サブミリ波リム放射サウンダ (SMILES-2)」と「高層大気の化学・力学場の動態把 握のためのFTS衛星ミッション」がある。SMILE-2は JEM/SMILE の後継機であるが,対流圏界面高度か ら下部熱圏(20~150 km)の温度,風,大気成分(オ ゾン,水蒸気,微量成分)を同時に高鉛直分解能 (2.5 km;観測対象による)で観測し, 成層圏内のオゾ ン化学の定量的理解に加え,中層大気と宇宙領域 の遷移領域である超高層大気内の電磁気的エネル ギーの役割を明らかにすることを目的としている。一 方,後者の高層大気の FTS 観測は, ACE-FTS の後 継機に近く、太陽掩蔽法で高鉛直分解能は、1.5~4 km で対流圏中層から下部熱圏(8~100 km)の多種 類の大気微量成分の観測をする。特に GHGsやオゾ ン化学に関連する成分(CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub>, CFC-11, CFC-12, CH<sub>3</sub>Cl 等)をモニタリングする。この ことで,成層圏化学のより詳細な理解に加え,オゾン 層を介した成層圏から対流圏への気候変動の影響 の評価が可能となる。また中層大気内の CO2 濃度の

把握により,成層圏への定量的な流入量が明らかとなり,CO2のミッシングシンクを減らし,より正確な炭素 収支を求めることが可能となる。さらに水蒸気同位体を使用した天気予報の精度の評価を推進し,極端なイベントの予測精度が向上することが期待される [Toride et al., 2021]。

先にも記述したが、今後、観測技術および数値モ デルの開発の進展により,対流圏から低軌道衛星高 度(~数100 km)までを統一的に扱う研究が増えると 見込まれる。その際に、同一精度で広高度範囲を高 鉛直分解能で観測できる衛星データによる実証,検 証作業が不可欠と考えられる。これまでは圏を跨ぐ研 究(特に対流圏/成層圏/中間圏(中層大気)と熱圏/ 電離圏/磁気圏(超高層大気))はあまりなされてこな かったし、数値モデルもそれに耐えうる仕様となって いない。特に圏を跨ぐ際に、物理的な圏間の性質の 違いや力学場を駆動している要因の違い, 圏を跨ぐ 物質量の定量的評価等を考慮した数値モデルの改 良とその検証が急がれる。今後,計算機技術および 数値モデルの発展により,これら圏を跨ぐ実験が可 能となり、相互作用が気候変動へ与える影響の理解 が進化すると期待される。

さらに衛星観測と数値モデルの融合として、データ 同化技術が増々重要となってくる。データ同化技術 は現在の気象・気候研究には必要不可欠なツール であり、今後もより依存関係は増していくだろう。デー タ同化の発展には、数値モデルの改良と同時に、衛 星データの高品質、高時間空間分解能が求められる ため、相互の長所短所を補うべく、相補的に進展が 期待される。

ここまでは、官主導の大型衛星観測を紹介してき たが、近年では、民間による宇宙ビジネスが活発化し ており、その利用可能性の検討は重要である。2020 年現在、宇宙の軌道上にある地球観測衛星は906 機程度であり、そのうち、地球科学を目的とした政府 系衛星は20-50 機程度とされている。商用小型衛星 の利用により、打上げの機会は拡大する。現在の商 用小型衛星の主流は、光学や能動電波を用いた地 球画像観測であり、「見えない物質」である大気物質 の観測はこれからの分野である。しかし、例えばメタ ン観測などはエネルギー関連ビジネスに直結するた めに注目を浴びており、民間企業にとって独創的な 観測はその企業の強みとなるため、産業として成り立 つ観測に大気化学が積極的に関与してゆくことも一 つの方向性である。日本では、Axelspace や Synspectiveなどのベンチャー企業が衛星の製造から 打上げ、データ処理や配布まで一貫した取組を行っ ており、今後の連携が期待される。

# 4. 地球システム科学・行政・社会貢献

第3節までに化学過程・排出量に関する新たな大 気化学的な知見を専門的な大気化学輸送モデルに 組み込み,化学・輸送・気象等を複合したオゾン等の 大気汚染プロセス診断を進め理解を高めることの重 要性を述べた。また,オゾン生成制限因子の特定と 地球温暖化緩和について,政策決定者を支える科 学的知見提供と社会貢献の重要性についても述べ てきた。本節ではさらに,専門毎や科学と社会の垣 根を越えて,地球システムモデルや天気・天候予測 を行う数値予報モデルへ大気化学的知見を実装・応 用し,また健康影響を可視化して,関連分野や社会 での実用を目指すことの重要性について述べたい。

# 4.1. 現業数値予報モデル・地球システムモデルの向 上

地球システムモデル (ESM) は、大気・海洋・陸域に おける物理現象を中心に取り扱う気候モデルを核と して、さらに大気化学/エアロゾル/炭素循環過程等を 組み込んだ数値モデルであり、SLCFs と気候の間の 多様な相互作用についても包括的に取り扱っている。 それ故 ESM は、SLCFs の温暖化への寄与や、温暖 化が大気汚染物質へ及ぼす影響などについて統合 的に理解し、且つ定量的評価を行う上で必須な技術 基盤となっている。 なお、温暖化が大気汚染物質へ及ぼす影響につい ては 2.4 節で一部触れたが、汚染地域においては温 暖化による気温上昇の効果のみでも反応速度が増し て夏季地上オゾンが増加する、いわゆる「気候のペ ナルティー」が生じることが示唆されている[*IPCC*, 2013, 2021]。陸・海を介した気候フィードバックとして は、温暖化とともに上昇すると考えられる陸域植生か らの炭化水素放出を通じたオゾン生成、海洋からの 硫化ジメチル (DMS) 放出変化、森林火災による大 気汚染物質等の放出 [*Tanimoto et al.*, 2015; *Patra et al.*, 2017]の加速、永久凍土の融解からのメタン等



図 14. メタン以外の SLCFs エミッション削減による気候と 大気質への影響。Allen et al. [2020] から引用。棒グラフ は、5つの ESMs の CMIP6 将来予測実験結果に基づく 2015-2055 年の各トレンドを示している。(a)地上気温 [K/decade], (b)日最高気温 [K/decade], (c)降水量 [mm/day/decade] , (d) 日 最 大 降 水 量 [mm/day/decade], (e)日降水量が 1mm より小さい日の 継続日数 [days/year/decade], (f)有効放射強制力 [W/m<sup>2</sup>/decade], (g)地上 PM<sub>25</sub> 濃度 [µg/m<sup>3</sup>/decade], (h)地上オゾン濃度 [ppb/decade]。赤(青)色が弱い(強 い)大気汚染物質排出の規制を行なう将来シナリオ SSP3-7.0 (SSP3-7,0-lowNTCF) に基づく結果で,黒色は その実験間の差。棒の中心はマルチモデル平均値で、 棒の長さは 95%信頼区間を表す。棒グラフには、図中の 地図で色分けされた 12 の領域平均のトレンドと共に,陸 域全体("L"), 北極("A"; 60-90N), 北半球中緯度("N"; 30-60N), 熱帯("T"; 30S-30N), 南半球中緯度("S"; 60-30S), 全球("G")で平均したトレンドも示す。

放出増加の可能性を通じたフィードバックなどがあり, それらの効果を正しく評価することも重要である。

最新の結合モデル相互比較プロジェクト CMIP6 [e.g., Eyring et al., 2016] においても,長寿命温室効 果ガスだけでなく SLCFs エミッション削減による効果 を定量的に評価するための実験 [Collins et al., 2017] が世界の ESM によって実施されている。Allen et al. [2020, 2021] では,大気汚染物質排出規制に ついて異なる将来予測シナリオに基づいて行った実 験から,メタンを除いた SLCFs の排出削減では想定 どおり大気質は改善する一方,正味で冷却効果を持 つエアロゾルの減少によって温暖化を加速させてし まうことを示した(図 14)。しかし,これに加えメタンの 排出も同時に削減すると,この温暖化の加速を相殺 することが出来,且つ大気質の更なる改善(地上オゾ ンの減少)につながることを示した。

こうした世界の ESM による CMIIP6 実験の結果は IPCC 第 6 次評価報告書においても多数引用され重 要な科学的知見を与えている [*IPCC*, 2021]。気候変 動予測の基盤となる ESM の高度化(不確実性の低 減)とその不確実性の評価は, 今後も重要な課題とな る。

気候変動予測よりも時間スケールが短い気象/季 節(数日から数ヶ月程度)予測においても、大気化 学・エアロゾル過程の持つ重要性を理解・評価し、こ れらの過程を適切に予測技術に取り入れることで、 数日先までの化学天気予報の向上を図ることは、社 会への知見還元となる。気象庁では、地球システム モデルを黄砂や紫外線予測に活用している。また、 物質濃度そのものの分布の予測だけでなく、気象・ 放射場の精度向上を図る取り組みが、世界の気象予 報センターや研究機関等で行われている。例えば Benedetti and Vitart [2018]では、エアロゾル分布を気 象場と共に予報しその放射効果を考慮することで、 特に北半球の春/夏季における季節予測精度が向上 する可能性を、ヨーロッパ中期予報センター (ECMWF)の予測システムを用いて示している。アメ リカ海洋大気庁(NOAA), ECMWF, 気象庁等の現 業予測システムでは、データ同化手法を用いて求め たオゾン解析値を,気象予測に重要な初期値の精度 向上等のために活用している [e.g., Dragani et al, 2018]。また Coopmann et al. [2020] は, Metop 衛星 搭載のハイパースペクトル赤外サウンダ IASI のオゾ ンチャンネルによる計測と他の赤外チャンネルによる 計測を個別に同化するのではなく、まとめて同化する ことにより、オゾンに加えて気温や比湿の初期値の精 度がより向上することを示すなど(大気環境予測と気 象予測のシナジー),近年では化学物質の衛星観測 情報を効果的に活用した予測技術の開発が盛んに なっている。このように、大気化学・エアロゾル過程の 適切な取り扱いや,化学物質の観測情報の効果的 な活用は気象/季節予測精度向上の鍵の一つとして 認識され, 重要な研究・開発課題となっている [e.g., Dragani et al, 2018].

#### 4.2. 健康影響と社会情報発信

本節では、SLCFs がもたらす健康被害と、それに 対する一般市民の認知度向上について取り上げる。 PM<sub>2.5</sub> や対流圏オゾン、およびそれらの前駆物質は、 人間や農作物等の生物に直接的に被害を与えること が長年の疫学研究等を通して知られている [e.g., Ueda et al., 2010]。2019年の大気汚染による世界の 早期死亡者数は約 667万人(屋外大気汚染によるも のは445万人,室内大気汚染は222万人)である。こ れは同年の交通事故による死亡者数の約5倍に相 当し、高血圧、タバコ、不健康な食習慣に次いで4番 目に高い死亡リスクに挙げられている[HEI, 2020]。 また2016年のOECDの報告書によれば、ほとんどの OECD 加盟国は2060年に向けて大気汚染による死 亡者数が減少されると予測される中で、日本は約1.5 倍に増加すると予測されている [OECD, 2016]。

この危機的状況に対して、大気汚染に対する社会の認知度は国や地域によって大きく異なり、日本も決して進んでいるとはいえない。その原因の一つとして、

大気汚染による健康被害は、喘息のようにすぐに発症するものだけではなく、長期的な暴露により肺がんや COPD 等を引き起こし重症化する例もあり、自覚しにくいということが考えられる。

大気汚染の社会認知度について、すでに認知度 が高い地球温暖化による気候変動を例に考察する。 2020年8月に旭硝子財団が実施した日本人の環境 危 機 意 識 調 査 ( https://www.afinfo.or.jp/ed\_clock/jpsense\_result.html)において、気 候変動は日本国内における環境問題として危機的な 状態にあると考える項目として 41%と最も多かった。 この理由として、「温度」という非常に身近な判断基準 となる物理量が存在すること、また、集中豪雨等の災 害が起こることで気候変動が実生活に直接的に影響 していることを自覚しやすいこと等が挙げられる。つま り、温暖化による変化がはっきりと見える化されている ことが、高い認知度に繋がると考えられる。

大気汚染による健康被害の認知度を向上させ,適 切な情報発信を促していくためには,地球温暖化の 「温度」に相当する判断基準となる物理量の確立が 必要である。理想的には,温度計と同等なレベルの 頻度と密度による大気汚染物質の観測と将来予測が 望ましい。この実現のためには,3章で紹介したような 地上観測と衛星観測を統合した観測ネットワークと, それら観測データを取り入れたモデル同化による高 精度なシミュレーション予測が必要である。また,温 度計のように簡便かつ身近に大気汚染物質を測定 できる小型センサの普及も,観測ネットワークの充実 だけでなく社会への認知度の向上という意味でも有 効である。

また,大気汚染は温度と異なり,PM<sub>2.5</sub> やオゾン, NO<sub>2</sub> 等の複数の効果が異なる大気汚染物質が存在 する。大気汚染では個別の物質ごとの大気中濃度が 最も正確な指標となるが,一般市民には多くの物質 の違いを理解すること自体に大きな障壁がある。大 気汚染による健康被害を定量化する方法として,世

Index	Formula	Country / City	Reference		
AQI Air Quality Index	$AQI = Max{IAQI_i}$	US	US EPA, Air Quality Index, (2014).		
	$\begin{split} \text{IAQI}_{i} = \frac{I_{\text{Hi}} - I_{\text{Lo}}}{BP_{\text{Hi}} - BP_{\text{Lo}}}(C_{i} - BP_{\text{Lo}}) + I_{\text{Lo}} \end{split}$ (Scale: 0 – 300)	China	Hu et al., Environmental International, 84, 17-25 (2015).		
		Taiwan	Cheng et al., Atmospheric Environment, 38, 383- 391 (2004).		
		Europe	Kyrkilis et al., Environmental International, 33, 670-676 (2007).		
AQHI Air Quality Health Index	$AQHI = \frac{10}{c} \sum_{i=1}^{N} [e^{\beta[i]x[i]} - 1]$ (Scale: 0 - 10)	Canada	Stieb et al., Journal of Air & Waste Management Association, 58(3), 435-450 (2008).		
		Hong Kong	Wang et al., Atmospheric Environment, 76, 52-58, (2013).		
CII Clean alr Index	$CII = 1 - \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{x[i]}{s[i]}$	Japan (Proposed by NICT)	Sato et al., Geoscience Communications, 3, 233-247, (2020).		
	(Scale: 1 – 0)				

表 2. 世界で使用されている大気質指数の例

界の様々な国や地域によって独自に定義された指数(一般に大気質指数と呼ばれる)が使用されているが、世界標準となる指数は存在しない。後述する大気質指数は、各国や地域の風土や特徴の上に最適化されているため、世界共通の指数として使用してよいかは議論が必要である。世界保健機関(WHO)は、大気汚染物質毎に環境基準 [WHO, 2005] を定めているが、大気質指数のような指数化は行っていない。

表2に代表的な大気質指数を挙げる。世界で初め て提唱され,現在も最も普及している指数が,アメリカ の Air Quality Index (AQI)である[US EPA, 2014]。 AQI は 0 から 300 までのスケーリングであり, AQI が 0 の場合が大気汚染によるリスクが 0 の状態, 300 以 上になるとリスクが危険なレベルに達していることを意 味する。AQI の定義式の特徴としては,考慮される各 大気汚染物質の濃度に対して設けられた閾値に従 って,濃度に対する健康リスクを数値化 (Individual AQI, IAQI)する。最終的な AQI の値は,全ての大気 汚染物質に対する IAQI の値の中で最大の値を採用 する。中国や台湾,ヨーロッパでは,この AQI の閾値 や大気汚染物質の種類を最適化して定義したものを 使用している [Hu et al., 2015; Cheng et al., 2004; Kyrkilis et al., 2007]。カナダや香港では,日々の大 気汚染物質の観測データと死亡者数や救急搬送者 数等の疫学データを時系列解析し、大気汚染による 健康リスクを0から10までのスケーリングで定量化さ れた Air Quality Health Index (AQHI)が使用されて いる。AQHIの算出では、ある確率に対する事象の発 生数に用いられるポアソン分布が仮定され、各大気 汚染物質濃度に対する回帰係数から相対リスク値を 計算している。

2020年に日本の大気汚染物質の観測データを用 いた検証とともに提案された Clean alr Index (CII)は, AQI や AQHI とは異なり,各大気汚染物質濃度を環 境基準値で規格化した上で平均し,値が高い方が良 いという直感に沿うために,その平均値を1から引くと いう非常にシンプルな定義式である [Sato et al., 2020]。CII は国民が,小学生でも,「直感」で分かる 指標ということが最大の特徴である。また,CII は,使 用する環境基準によって,例えば,日本の場合は環 境省が定める大気汚染に関する環境基準 (https://www.env.go.jp/kijun/taiki.html),グローバル に用いる場合はWHO が定める閾値 [WHO, 2005; 2021]を用いることで,原理上,対象地域を最適化す ることが可能である。

世界標準となる大気質指数を確立するためには, それらの定義式を比較することは必須である。しかし, 大気汚染による健康被害の定量化における Groundtruth の設定が困難であることから,大気質指数の定 義式を定量的に比較した研究例は少ない。Sato et al. [2020]は観測値とモデル値から導出された指数を比 較するという方法で CII と AQI を比較し,モデル値に 適用する場合の CII の有用性を示した。これは,モデ ルがある物質を過大評価した場合に, AQI では考慮 される全ての IAQI の最大値を取るためにそのバイア スが強く出てしまうが, CII の場合は全ての大気汚染 物質の影響を平均により包括的に評価するため,部 分的に相殺され,観測とモデルの差を用いた大気 質指数の定義式の比較方法は,指数に対する大き な社会ニーズである大気汚染予報への適用という意味でも非常に有効な手段である。

大気汚染による健康被害の認知度を向上するた めには、大気汚染物質の時空間的に稠密な観測ネ ットワークと高精度なシミュレーション予測がまず必要 であり、さらにそのデータを地球温暖化の「温度」に 相当する誰にでも理解できる基準を用いて適切に情 報発信することが必要である。世界共通の大気質指 数の確立のためには、大気質指数の定義式やその 比較方法等、依然として様々な課題がある。WHOの ような国際組織がトップダウンで定義するのが最も早 道かもしれないが、まずは、世界各国の現場の研究 者や民間事業者によるボトムアップによる議論を進め、

究極のゴール は何か。	<ul> <li>・光化学反応・大気輸送・沈着等の諸プロセスを方程式で表現でき、排出量や境界条件が与えられれば、大気微量ガス成分群の濃度時間発展や収支を将来予測できること。各プロセスの役割を定量的に理解できること。</li> <li>・濃度変動の原因を排出量変化に結び付けて把握でき、フィードバックを含め各成分による短寿命気候強制因子(SLCFs)としての気候変動への寄与や健康影響を定量化でき、緩和策を提案できること。</li> <li>・物理および化学等の法則に基づき、精度のよい化学天気予報を社会に発信できること。</li> </ul>
この 10 年での 世界的な動向 や日本での研 究の強み	・世界的に,衛星観測や高精度現場観測・標準化が進展し,大気成分濃度情報の時空間的な カバレッジが大幅に向上し,観測と数値モデルの統合化が進んだ。 ・日本の強みとしては,東アジア広域オゾン・PM2.5大気汚染の原因把握,OHラジカル反応性 や不均一反応取り込み係数の評価,同位体などからのプロセス知見,複数の地球システムモ デル開発,大気化学輸送モデルとデータ同化の進展,GOSAT等で培った衛星観測解析技 術,排出インベントリの高度化がある。
現在の重要な ギャップ	<ul> <li>・大気化学の心臓部となる OH ラジカル反応系の理解不足</li> <li>・オゾン化学の非線形性と生成速度制限因子の空間分布の理解不足</li> <li>・大気組成変化と排出との因果関係定量化,排出インベントリ/削減施策の迅速評価が不十分</li> <li>・向上した衛星観測でも高度分布情報(成層圏含む),日変化情報が得られない</li> <li>・突発事象予測のための早期検出観測情報の不足</li> </ul>
それらを踏ま え, 今後 10 年 の研究をドライ ブする key question or 作 業仮説	・OH 反応系の理解不足は亜硝酸, ハロゲン類, 不均一反応, 揮発性有機化合物などで解消 し, 全球 OH 量推定における方法間のギャップ(半球間勾配, トレンド)は埋まるか? ・キロメートル級の水平分解能を備え, 連続的な面分布を計測できる衛星観測システムや温室 効果気体(GHG)-大気質(AQ)の統合解析は, オゾン化学の非線形性・生成制限因子の把握 や, 重要な排出源の評価を格段に進展させるか? ・地球温暖化による各物質へのフィードバック等の理解も向上させて, 脱温暖化などの意思決 定に科学エビデンスを与えられるか? ・数値モデルへのデータ同化の対象に, アンモニア, VOC などを NOx 等に加え総合化する と, オゾン, PM <sub>2.5</sub> 予測等が向上するか(気候変動・健康問題に加えて食糧問題へも知見を提 供してゆけるか)? ・大気化学と気象・地球システムとの相互作用の理解向上や, 鍵となる観測情報の取り込みに より, 化学天気予報・地球システム将来予測だけでなく, 気象の現業数値予報モデルが向上で き, 社会に有益な情報を与えられるか?
主な連携相手	IGAC, iCACGP, COSPAR, CEOS, SPARC

表 3. 本稿で述べた短寿命気候強制因子(SLCFs)の排出・化学過程・濃度・影響のリンクに関するサマリー。

世界にもっとも広く浸透しうる指標を作ってゆくことも 有意義である。

#### 5. おわりに

本稿で記述した具体的な内容をまとめると表3のようになる。新たな衛星観測などを核にし,現場観測・数値モデル解析・実験・開発などを有機的に連携して進める必要があり,研究者同士の連携度の向上も重要な課題である。基礎科学の構築にも引き続き重点を置くほか,社会への情報発信も重要である。脱温暖化・カーボンニュートラルの目標は間近に迫っており,社会が必要とする科学エビデンスをタイムリーに提供できる仕組みづくりも重要である。

# 参考文献

- Abbatt, J. P. D., A. K. Y. Lee & J. A. Thornton (2012), Quantifying trace gas uptake to tropospheric aerosol: recent advances and remaining challenges, *Chem. Soc. Rev.*, 41, 6555–6581, doi:10.1039/c2cs35052a.
- Acker, K. et al. (2006), Strong daytime production of OH from HNO<sub>2</sub> at a rural mountain site, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L02809, doi:10.1029/2005gl024643.
- 秋元 肇 (2014), 大気反応化学, 朝倉書店, 432pp.
- Akimoto, H. et al. (2019), Comparison of surface ozone simulation among selected regional models in MICS-Asia III – effects of chemistry and vertical transport for the causes of difference, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 603–615.
- Akimoto, H. et al. (2020), Discrepancies between MICS-Asia III simulation and observation for surface ozone in the marine atmosphere over the northwestern Pacific Asian Rim region, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 15003–15014.
- Alexander, B., J. Savarino, N. I. Barkov, R. J. Delmas & M. H. Thiemens (2002), Climate driven changes in the oxidation pathways of atmospheric sulfur, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1685.
- Allen, R. J. et al. (2020), Climate and air quality impacts due to

mitigation of non-methane near-term climate forcers, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 9641–9663, doi:10.5194/acp-20-9641-2020.

- Allen, R. J. et al. (2021), Significant climate benefits from nearterm climate forcer mitigation in spite of aerosol reductions. *Environ. Res. Lett.*, 16(3), doi:10.1088/1748-9326/abe06b.
- Beirle, S. et al. (2019), Pinpointing nitrogen oxide emissions from space, *Sci. Adv.*, 5, eaax9800.
- Benedetti, A. & F. Vitart (2018), Can the direct effect of aerosols improve subseasonal predictability?, *Mon. Weather Rev.*, 146, 3481–3498, doi:10.1175/MWR-D-17-0282.1.
- Brown, S. S. & J. Stutz (2012), Nighttime radical observations and chemistry, *Chem. Soc. Rev.*, 41, 6405-6447, doi: 10.1039/C2CS35181A.
- Cao, H. et al. (2018), Adjoint inversion of Chinese non-methane volatile organic compound emissions using space-based observations of formaldehyde and glyoxal, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 15017–15046.
- Cao, H. et al. (2020), Inverse modeling of NH<sub>3</sub> sources using CrIS remote sensing measurements, *Environ. Res. Lett.*, 15, 104082.
- Carpenter, L. J. et al. (2013), Atmospheric iodine levels influenced by sea surface emissions of inorganic iodine, *Nat Geosci*, 6, 108-111.
- CEOS AC-VC (2018), A constellation architecture for monitoring carbon dioxide and methane from space, version 1.2, 11 Nov.
- Chance, R. J. et al. (2019), Global sea-surface iodide observations, 1967-2018, *Sci Data*, 6, 286.
- Cheng, W. L. et al. (2004), Revised air quality index derived from an entropy function, *Atmos. Environ.*, 38, 383-391.
- Collins, W. J. et al. (2017), AerChemMIP: quantifying the effects of chemistry and aerosols in CMIP6, *Geosci. Model Dev.*, 10, 585–607, doi:10.5194/gmd-10-585-2017.
- Cooper, P. L. & J. P. D. Abbatt (1996), Heterogeneous interactions of OH and HO<sub>2</sub> radicals with surfaces characteristic of atmospheric particulate matter, *J. Phys.*

Chem. 100, 2249-2254.

- Coopmann, O., V. Guidard, N. Fourrié, B. Josse, & V. Marécal (2020), Update of Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) channel selection with correlated observation errors for numerical weather prediction (NWP), *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 2659–2680, doi:10.5194/amt-13-2659-2020.
- Crawford, J. H. et al. (2021), The Korea–United States Air Quality (KORUS-AQ) field study, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 9(1), doi:10.1525/elementa.2020.00163.
- Cuesta, J. et al. (2018), Transboundary ozone pollution across East Asia: daily evolution and photochemical production analysed by IASI+GOME2 multispectral satellite observations and models, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9499– 9525, doi:10.5194/acp-18-9499-2018.
- Dentener, F. J. & P. J. Crutzen, (1993), Reaction of N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> on tropospheric aerosols: Impact on the global distributions of NOx, O<sub>3</sub>, and OH, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 98, 7149–7163.
- Dragani, R. et al. (2018), Atmospheric composition priority developments for numerical weather prediction, ECMWF Technical memorandum, 833, doi:10.21957/5e0whui2y.
- Ehret et al. (2017), MERLIN: A French-German space lidar mission dedicated to atmospheric methane, *Remote Sens.*, 9, 1052, doi:10.3390/rs9101052.
- Elguindi, N. et al. (2020), Intercomparison of magnitudes and trends in anthropogenic surface emissions from bottom-up inventories, top-down estimates, and emission scenarios, *Earth's Future*, 8, e2020EF001520.
- 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.
- Fiore, A. M. et al. (2009), Multi-model estimates of intercontinental source receptor relationships for ozone pollution, J. Geophys. Res., 114, D04301, doi:10.1029/2008JD010816.
- Fu, D. et al. (2019), Direct retrieval of isoprene from satellite-

based infrared measurements, Nat. Commun., 10, 3811.

- Fujinawa, T. et al. (2021). First concurrent observations of NO<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> from power plant plumes by airborne remote sensing, *Geophysical Research Letters*, 48, e2021GL092685, doi:10.1029/2021GL092685.
- Gaudel, A. et al. (2018), Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 6, 39, doi:10.1525/elementa.291.
- George, I. J. et al. (2013), Measurements of uptake coefficients for heterogeneous loss of HO<sub>2</sub> onto submicron inorganic salt aerosols, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15, 12829-12845, doi:10.1039/C3CP51831K.
- Gershenzon, Y. M., V. M. Grigorieva, A. V. Ivanov & R. G. Remorov (1995), O<sub>3</sub> and OH sensitivity to heterogeneous sinks of HOx and CH<sub>3</sub>O<sub>2</sub> on aerosol particles, *Faraday Disuss.*, 100, 83-100.
- Geyer, A. et al. (2003), Nighttime formation of peroxy and hydroxyl radicals during the BERLIOZ campaign: Observations and modeling studies, J. Geophys. Res.-Atmos., 108, 1–16.
- Griffin, D. et al. (2019), High-resolution mapping of nitrogen dioxide with TROPOMI: First results and validation over the Canadian oil sands, *Geophysical Research Letters*, 46, 1049–1060, doi:10.1029/2018GL081095.
- Griffiths, P. T. et al. (2021), Tropospheric ozone in CMIP6 Simulations, Atmos. Chem. Phys., 21, 4187-4218, doi:10.5194/acp-21-4187-2021.
- Ha, P. T. M., R. Matsuda, Y. Kanaya, F. Taketani & K. Sudo (2021), Effects of heterogeneous reactions on tropospheric chemistry: a global simulation with the chemistry–climate model CHASER V4.0, *Geosci. Model Dev.*, 14, 3813–3841.
- Hattori, S. et al. (2021), Isotopic evidence for acidity-driven enhancement of sulfate formation after SO<sub>2</sub> emission control, *Sci. Adv.*, 7(19), eabd4610.
- Hayashida, S., M. Kajino, M. Deushi, T. T. Sekiyama & X. Liu

(2018), Seasonality of the lower tropospheric ozone over China observed by the Ozone Monitoring Instrument, *Atmos. Environ.*, 184, 244-253.

- Heald, C. L. et al. (2004), Comparative inverse analysis of satellite (MOPITT) and aircraft (TRACE-P) observations to estimate Asian sources of carbon monoxide, *J. Geophys. Res.*, 109, D23306.
- Health Effects Institute (HEI) State of Global Air (2020), Available online: https://fundacionio.com/wpcontent/uploads/2020/10/soga-2020-report.pdf (accessed on 6 August 2021).
- Holmes, C. D., M. J. Prather, O. A. Søvde & G. Myhre (2013), Future methane, hydroxyl, and their uncertainties: key climate and emission parameters for future predictions, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 285–302, doi:10.5194/acp-13-285-2013.
- Holmlund, K. et al. (2021), Meteosat Third Generation (MTG):
  Continuation and innovation of observations from geostationary orbit, *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, E990-E1015, https://doi.org/10.1175/BAMS-D-19-0304.1.
- Höpfner, M. et al. (2019), Ammonium nitrate particles formed in upper troposphere from ground ammonia sources during Asian monsoon, *Nat. Geosci.*, 12, 608–612, doi:10.1038/s41561-019-0385-8.
- Hu, J., Q. Ying, Y. Wang & H. Zhang (2015), Characterizing multi-pollutant air pollution in China: Comparison of three air quality indices, *Environment International*, 84, 17-25.
- 井田明ほか (2016), スギから放出される揮発性有機化合 物のOH反応性測定および化学分析, 大気環境学会誌, 51,132-143.
- 井上和也, 安田龍介, 吉門洋, 東野晴行 (2010), 関東地方 における夏季地表オゾン濃度の NOx, VOC 排出量に対 する感度の地理分布 第 I 報 大小 2 種類の植物起源 VOC 排出量推定値を入力した場合の数値シミュレーショ ンによる推定, 大気環境学会誌, 45(5), 183-194.
- Inoue, K., K. Tonokura, K. & H. Yamada (2019), Modeling study

on the spatial variation of the sensitivity of photochemical ozone concentrations and population exposure to VOC emission reductions in Japan, *Air Qual. Atmos. Health*, 12, 1035-1047.

- IPCC (2013), Climate Change 2013: The Physical Science Basis.
  Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment
  Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change
  [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen,
  J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley
  (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United
  Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp.
- IPCC (2018), Summary for Policymakers. In: Global Warming of 1.5°C. An IPCC Special Report on the impacts of global warming of 1.5°C above pre-industrial levels and related global greenhouse gas emission pathways, in the context of strengthening the global response to the threat of climate change, sustainable development, and efforts to eradicate poverty, 32pp.
- 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
  [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S. L. Connors, C.
  Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M. I.
  Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J. B. R.
  Matthews, T. K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu
  and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press. In Press.
- Irie, H. et al. (2021), Continuous multi-component MAX-DOAS observations for the planetary boundary layer ozone variation analysis at Chiba and Tsukuba, Japan, from 2013 to 2019, *Progress in Earth and Planetary Science*, 8, 31.
- Ishino, S. et al. (2017), Seasonal variations of triple oxygen isotopic compositions of atmospheric sulfate, nitrate, and ozone at Dumont d'Urville, coastal Antarctica. *Atmos. Chem. Phys.*, 17(5), 3713–3727.
- Ishino, S. et al. (2021), Regional Characteristics of Atmospheric Sulfate Formation in East Antarctica Imprinted on <sup>17</sup>O-Excess Signature, J. Geophys. Res. Atmospheres, 126,

e2020JD033583.

- Itahashi, S., R. Mathur, C. Hogrefe, S. L. Napelenok & Y. Zhang (2020), Modeling stratospheric intrusion and trans-Pacific transport on tropospheric ozone using hemispheric CMAQ during April 2010 – Part 2: Examination of emission impacts based on the higher-order decoupled direct method, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 3397–3413.
- Jacob, D. J. (2000), Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone, *Atmos. Environ.*, 34, 2131-2159.
- Jiang, Z. et al. (2018), Unexpected slowdown of US pollutant emission reduction in the past decade, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 115 (20) 5099-5104.
- 梶井克純 (2021), OH 反応性計測によるオゾン生成機構の解 明, *大気環境学会誌*, 56(1), 18-24.
- Kanaya, Y. et al. (2007), Chemistry of OH and HO<sub>2</sub> radicals observed at Rishiri Island, Japan, in September 2003: Missing daytime sink of HO<sub>2</sub> and positive nighttime correlations with monoterpenes, *J. Geophys. Res.*, 112, D11308, doi: 10.1029/2006JD007987.
- Kanaya, Y. et al. (2012), Comparisons of observed and modeled OH and HO<sub>2</sub> concentrations during the ambient measurement period of the HOxComp field campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2567–2585.
- Kanaya, Y. et al. (2019), Ozone and carbon monoxide observations over open oceans on R/V *Mirai* from 67° S to 75° N during 2012 to 2017: testing global chemical reanalysis in terms of Arctic processes, low ozone levels at low latitudes, and pollution transport, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 7233–7254
- 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.
- 金谷有剛 (2020), 分光学的手法を用いた観測によるアジア 大気汚染の統合的理解の推進 -2019 年度堀内賞受賞 記念講演-, 天気, 67, 520-529.
- 環境省 (2021), 令和3年版環境白書·循環型社会白書·生物

# 多様性白書, 368pp.

https://www.env.go.jp/policy/hakusyo/r03/pdf/full.pdf

- Kim, S., A. Guenther, T. Karl & J. Greenberg, Contributions of primary and secondary biogenic VOC tototal OH reactivity during the CABINEX (Community Atmosphere-Biosphere INteractions Experiments)-09 field campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 8613–8623, doi: 10.5194/acp-11-8613-2011, 2011.
- Kohno, N., J. Li, Y. Sakamoto & Kajii, Y. (2020), Rate constants of  $CH_3O_2 + NO_2 \leftrightarrow CH_3O_2NO_2$  and  $C_2H_5O_2 + NO_2 \leftrightarrow$  $C_2H_5O_2NO_2$  reactions under atmospheric conditions, *Int. J. Chem. Kinet.*, 53, 571-582.
- Kovacs, T. A. et al. (2003), Direct measurements of urban OH reactivity during Nashville SOS in summer 1999. J. Environ. Monit. 5, 68-74.
- Kurokawa, T. & 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.
- Kurtenbach, R. et al. (2001), Investigations of emissions and heterogeneous formation of HONO in a road traffic tunnel, *Atmos. Environ.*, 35, 3385–3394.
- Kyrkilis, G., A. Chaloulakou, & P. A. Kassomenos (2007), Development of an aggregate Air Quality Index for an urban Mediterranean agglomeration: Relation to potential health effects, *Environment International*, 33, 670-676.
- Lew, M. M. et al. (2020), OH and HO<sub>2</sub> radical chemistry in a midlatitude forest: measurements and model comparisons, *Atmos. Chem. Phys.* 20, 9209-9230.
- Li, J. et al. (2019), Model evaluation and intercomparison of surface-level ozone and relevant species in East Asia in the context of MICS-Asia Phase III – Part 1: Overview, Atmos. Chem. Phys., 19, 12993–13015.
- Li, K. et al. (2019), Anthropogenic drivers of 2013–2017 trends in summer surface ozone in China. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 116, 422–427.
- Li, J. et al. (2020), Total hydroxyl radical reactivity

measurements in a suburban area during AQUAS–Tsukuba campaign in summer 2017. *Sci. Total Environ.* 740, 139897.

- Li, Y. et al. (2011), Impacts of HONO sources on the air quality in Beijing, Tianjin and Hebei Province of China, *Atmos. Environ.*, 45, 4735-4744.
- Lorente, A. et al. (2019), Quantification of nitrogen oxides emissions from build-up of pollution over Paris with TROPOMI, *Sci. Rep.*, 9, 20033, doi: 10.1038/s41598-019-56428-5.
- Lou, S. et al. (2010), Atmospheric OH reactivities in the Pearl River Delta – China in summer 2006: measurement and model results, *Atmos. Chem. Phys.* 10, 11243-11260.
- Macintyre, H. L. & M. J. Evans (2011), Parameterisation and impact of aerosol uptake of HO<sub>2</sub> on a global tropospheric model, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10965–10974, doi: 10.5194/acp-11-10965-2011.
- Martin, R. V. et al. (2006), Evaluation of space-based constraints on global nitrogen oxide emissions with regional aircraft measurements over and downwind of eastern North America, J. Geophys. Res., 111, D15308.
- McCulloch, A. & P. M. Midgley (2001), The history of methyl chloroform emissions: 1951–2000, *Atmos. Environ.*, 35, 5311–5319.
- Millet, D. B. et al. (2008), Spatial distribution of isoprene emissions from North America derived from formaldehyde column measurements by the OMI satellite sensor, J. Geophys. Res., 113, D02307.
- Miyazaki, K. et al. (2017), Decadal changes in global surface NOx emissions from multi-constituent satellite data assimilation, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807–837.
- Miyazaki, K., et al. (2020a), Evaluation of a multi-model, multiconstituent assimilation framework for tropospheric chemical reanalysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 931–967.
- Miyazaki, K. et al. (2020b), Updated tropospheric chemistry reanalysis and emission estimates, TCR-2, for 2005–2018, *Earth Syst. Sci. Data*, 12, 2223–2259.

Miyazaki, K. et al. (2021), Global tropospheric ozone responses

to reduced NOx emissions linked to the COVID-19 worldwide lockdowns, *Sci. Adv.*, 7 (24), eabf7460.

- Montzka, S. A. et al. (2011), Small interannual variability of global atmospheric hydroxyl, *Science*, 331, 67–69. doi:10.1126/science.1197640.
- Mote, P. W. et al. (1996), An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor, J. Geophys. Res. Atmospheres, 101, D2, 3989-4006, doi:10.1029/95JD03422.
- Nagashima, T., K. Sudo, H. Akimoto, J. Kurokawa, & T. Ohara (2017), Long-term change in the source contribution to surface ozone over Japan, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8231-8246.
- Naik, V. et al. (2013), Preindustrial to present-day changes in tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5277–5298, doi: 10.5194/acp-13-5277-2013.
- Nakajima, T. et al. (2017), Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident. *Progress in Earth* and Planetary Science, 4, 2, doi:10.1186/s40645-017-0117-x.
- Nakashima, Y., N. Kamei, S. Kobayashi & Y. Kajii, (2010), Total OH reactivity and VOC analyses for gasoline vehicular exhaust with a chassis dynamometer. *Atmos. Environ.* 44, 468-475.
- Nakashima, Y. et al. (2014), Total OH reactivity measurements in ambient Air in a southern Rocky Mountain Ponderosa Pine Forest during BEACHON-SRM08 summer campaign. *Atmos. Environ.* 85, 1-8.
- Nassar, R. et al. (2017), Quantifying CO<sub>2</sub> emissions from individual power plants from space, *Geophys. Res. Lett.*, 44, 10045–10053, doi:10.1002/2017GL074702.
- Nelson, D. M. et al. (2018), Triple oxygen isotopes indicate urbanization affects sources of nitrate in wet and dry atmospheric deposition, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 6381–

6392, doi: 10.5194/acp-18-6381-2018.

- Nicely, J. M. et al. (2018), Changes in global tropospheric OH expected as a result of climate change over the last several decades, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 123, 10774–10795, doi: 10.1029/2018JD028388.
- Nicely, J. M. et al. (2020), A machine learning examination of hydroxyl radical differences among model simulations for CCMI-1, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 1341–1361, doi: 10.5194/acp-20-1341-2020.
- Nölscher, A.C. et al. (2013), Seasonal measurements of total OH reactivity emission rates from Norway spruce in 2011, *Biogeosciences*, 10, 4241-4257.
- OECD (2016), The economic consequences of outdoor air pollution, OECD Publishing, Paris, doi: 10.1787/9789264257474-en.
- 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, 2012.
- Patra, P. et al. (2014), Observational evidence for interhemispheric hydroxyl-radical parity, *Nature*, 513, 219– 223, doi: 10.1038/nature13721.
- Patra, P. K. (2017), モデル解析を基にした温室効果気体の全 球規模循環に関する研究-2016 年度堀内賞受賞記念講 演-, *天気*, 64, 769-785.
- Patra, P. K. et al. (2017), The Orbiting Carbon Observatory (OCO-2) tracks 2-3 peta-gram increase in carbon release to the atmosphere during the 2014-2016 El Niño, *Sci. Rep.*, 7, 13567.
- Patra, P. K. et al. (2021), Methyl chloroform continues to constrain the hydroxyl (OH) variability in the troposphere. *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 126, e2020JD033862. doi: 10.1029/2020JD033862.
- Polonsky, I. N., D. M. O'Brien, J. B. Kumer, C. W. O'Dell & the geoCARB Team (2014), Performance of a geostationary mission, geoCARB, to measure CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and CO columnaveraged concentrations, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 959–981,

doi: 10.5194/amt-7-959-2014.

- Porada, P. et al. (2019), Global NO and HONO emissions of biological soil crusts estimated by a process-based nonvascular vegetation model, *Biogeosciences*, 16, 2003-2031.
- Prather, M. J. (1996), Natural modes and time scales in atmospheric chemistry: theory, GWPs for CH<sub>4</sub> and CO, and runaway growth, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2597–2600.
- Prather, M. et al. (2001), Chapter 4, in: Atmospheric Chemistry and Greenhouse Gases, in Climate Change 2001: The Scientific Basis, edited by: Houghton, J. T., Ding, Y., Griggs, D. J., Noguer, M., van der Linden, P. J., Dai, X., Maskell, K., and Johnson, C. A., Cambridge U. Press, 239– 287.
- Prinn, R. et al. (1992), Global average concentration and trend for hydroxyl radicals deduced from ALE/GAGE trichloroethane (methyl chloroform) data for 1978–1990, J. Geophys. Res., 97, 2445–2461, doi: 10.1029/91JD02755.
- Prinn, R. G. et al. (2005), Evidence for variability of atmospheric hydroxyl radicals over the past quarter century, *Geophys. Res. Lett.*, 32, 1–4. doi: 10.1029/2004GL022228.
- Reuter, M. et al. (2019), Towards monitoring localized CO<sub>2</sub> emissions from space: co-located regional CO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> enhancements observed by the OCO-2 and S5P satellites, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 9371-9383, doi: 10.5194/acp-19-9371-2019.
- Rigby, M., Montzka, S. A., Prinn, R. G., et al. (2017), Role of atmospheric oxidation in recent methane growth, *P. Natl. Acad. Sci. USA*, 114, 5373–5377.
- Sadanaga, Y. A. Yoshino, S. Kato & Y. Kajii (2005), Measurements of OH reactivity and photochemical ozone production in the urban atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 8847-8852.
- Sakamoto, Y., A. Yabushita,, M. Kawasaki & S. Enami, (2009), Direct emission of I<sub>2</sub> molecule and IO radical from the heterogeneous reactions of gaseous ozone with aqueous potassium iodide solution, J. Phys. Chem. A, 113, 7707-

7713, doi: 10.1021/jp903486u.

- 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. Atmospheres, 118, 7, 2991–3006, doi: 10.1002/jgrd.50220
- Sato, K. et al. (2017), Total OH Reactivity Measurements for the OH-Initiated Oxidation of Aromatic Hydrocarbons in the Presence of NOx. *Atmos. Environ.* 171, 272-278.
- Sato, T. O., T. Kuroda & Y. Kasai, Novel index to comprehensively evaluate air cleanliness: the Clean aIr Index (CII), *Geoscience Communication*, 3, 233-247, doi: 10.5194/gc-3-233-2020, 2020.
- Schlosser, E. et al. (2009), Technical Note: Formal blind intercomparison of OH measurements: results from the international campaign HOxComp, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7923–7948.
- Sekiya, T. et al. (2020), Global bromine- and iodine-mediated tropospheric ozone loss estimated using the CHASER chemical transport model, SOLA, doi: 10.2151/sola.2020-037.
- Sekiya, T. et al. (2021), Impacts of horizontal resolution on global data assimilation of satellite measurements for tropospheric chemistry analysis, *J. Adv. Model. Earth Syst.*, 13, e2020MS002180.
- Sekiyama, T. T. & M. Kajino (2020), Reproducibility of surface wind and tracer transport simulations over complex terrain using 5-, 3-, and 1-km-Grid Models, J. Appl. Meteorol. Climatol., 59, 937-952.
- Sherwen, T. et al. (2016), Global impacts of tropospheric halogens (Cl, Br, I) on oxidants and composition in GEOS-Chem, Atmos. Chem. Phys., 16, 12239–12271, doi: 10.5194/acp-16-12239-2016.
- Simpson, W. R., Brown, S. S., Saiz-Lopez, A., Thornton, J. A., and von Glasow, R. (2015), Tropospheric halogen chemistry: sources, cycling, and impacts, *Chem. Rev.*, 115,

4035-4062, doi:10.1021/cr5006638.

- Sofen, E. D. et al. (2014), WAIS divide ice core suggests sustained changes in the atmospheric formation pathways of sulfate and nitrate since the 19th century in the extratropical Southern Hemisphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(11), 5749–5769.
- Someya, Y. et al. (2020), Atmospheric ammonia retrieval from the TANSO-FTS/GOSAT thermal infrared sounder, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 309–321.
- Spivakovsky, C. M. et al. (1990), Tropospheric OH in a threedimensional chemical tracer model: An assessment based on observations of CH<sub>3</sub>CCl<sub>3</sub>, *J. Geophys. Res.*, 95, 18441– 18471.
- Spivakovsky, C. M. et al. (2000), Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: Update and evaluation, J. Geophys. Res., 105, 8931–8980.
- Stavrakou, T. et al. (2009), The continental source of glyoxal estimated by the synergistic use of spaceborne measurements and inverse modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8431–8446.
- Stevenson, D. S. et al. (2020), Trends in global tropospheric hydroxyl radical and methane lifetime since 1850 from AerChemMIP, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 12905–12920, doi: 10.5194/acp-20-12905-2020.
- Stevenson, D. S. et al. (2013), Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3063–3085, doi: 10.5194/acp-13-3063-2013.
- Stieb, D. M. et al. (2008), A New Multipollutant, No-Threshold Air Quality Health Index Based on Short-Term Associations Observed in Daily Time-Series Analyses, Journal of the Air & Waste Management Association, 58, 435-450, doi: 10.3155/1047-3289.58.3.435
- Sudo, K., M. Takahashi & H. Akimoto (2003), Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on

future tropospheric ozone simulations, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2256, doi:10.1029/2003GL018526, 24.

- Takashima, H. et al. (2022), Full latitudinal marine atmospheric measurements of iodine monoxide, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 4005–4018, doi:10.5194/acp-22-4005-2022, 2022.
- Takegawa, N. et al. (2004), Removal of NOx and Noy in Asian outflow plume: Aircraft measurements over the western Pacific in January 2002, J. Geophys. Res., 109, doi:10.1029/2004JD004866.
- Taketani, F. et al. (2012), Measurement of overall uptake coefficients for HO<sub>2</sub> radicals by aerosol particles sampled from ambient air at Mts. Tai and Mang (China). *Atmos. Chem. Phys.* 12, 11907-11916.
- Taketani, F., Y. Kanaya & H. Akimoto (2013), Kinetic studies of heterogeneous reaction of HO<sub>2</sub> radical by dicarboxylic acid particles. *International Journal of Chemical Kinetics* 45, 560-565.
- Takigawa, M. et al. (2020), Can Delhi's pollution be affected by crop fires in the Punjab region?, *SOLA*, 16, 77-80.
- Tanimoto, H., K. Ikeda, R. van der A, S. Garivait & K. F. Boersma (2015), Interannual variability of nitrogen oxides emissions from boreal fires in Siberia and Alaska during 1996–2011 as observed from space, *Environ. Res. Lett.*, 10, 065004.
- Tarasick, D. et al. (2019), Tropospheric Ozone Assessment Report: Tropospheric ozone from 1877 to 2016, observed levels, trends and uncertainties, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 7, 39, doi:10.1525/elementa.376.
- Thornton, J. A. & J. P. D. Abbatt (2005), N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> reaction on submicron sea salt aerosol: Kinetics, products, and the effect of surface active organics, *J. Phys. Chem. A*, 109, 10004–10012.
- Toride, K. et al. (2021), Potential of mid-tropospheric water vapor isotopes to improve large-scale circulation and weather predictability, *Geophys. Res. Lett.*, doi: 10.1029/2020GL091698.
- Tsunogai, U. et al. (2010), Tracing the fate of atmospheric nitrate

deposited onto a forest ecosystem in Eastern Asia using  $\Delta^{17}$ O, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1809–1820, doi: 10.5194/acp-10-1809-2010, 2010.

- Ueda, K., H. Nitta & H. Odajima (2010), The effects of weather, air pollutants and Asian dust on hospitalization for asthma in Fukuoka, *Environ. Health Prev. Med.*, 15, 350-357, doi: 10.1007/s12199-010-0150-5.
- U.S. Environmental Protection Agency (EPA) (2014), Air Quality Index, A Guide to Air Quality and Your Health. Available online: https://www.airnow.gov/sites/default/files/2018-04/aqi\_brochure\_02\_14\_0.pdf (accessed on 12 August 2021).
- Varon, D. J. et al. (2018), Quantifying methane point sources from fine-scale satellite observations of atmospheric methane plumes, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 5673–5686.
- Varon, D. J. et al. (2019), Satellite discovery of anomalously large methane point sources from oil/gas production, *Geophys. Res. Lett.*, 46, 13,507–13,516.
- Veefkind, J. P. et al. (2012), TROPOMI on the ESA Sentinel-5 Precursor: A GMES mission for global observations of the atmospheric composition for climate, air quality and ozone layer applications, *Remote Sens. Environ.*, 120, 70–83.
- Verhoelst, T. et al. (2021), Ground-based validation of the Copernicus Sentinel-5P TROPOMI NO<sub>2</sub> measurements with the NDACC ZSL-DOAS, MAX-DOAS and Pandonia global networks, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 481–510.
- Vicars, W. C., S. K. Bhattacharya, J. Erbland & J. Savarino, (2012), Measurement of the <sup>17</sup>O-excess (Δ<sup>17</sup>O) of tropospheric ozone using a nitrite-coated filter, *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, 26, 1219-1231. doi: 10.1002/rcm.6218.
- Villena, G. et al. (2011), Vertical gradients of HONO, NOx and O<sub>3</sub> in Santiago de Chile, *Atmos. Environ.*, 45, 3867–3873.
- Voulgarakis, A. et al. (2013), Analysis of present day and futureOH and methane lifetime in the ACCMIP simulations,*Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2563–2587, doi: 10.5194/acp-

13-2563-2013.

- Wang, T. W. et al. (2013), Developing a risk-based air quality health index, *Atmos. Environ.*, 76, 52-58.
- Wennberg, P. (2006), Radicals follow the Sun, *Nature*, 442, 145–146, doi:10.1038/442145a.
- Whalley, L. K. et al. (2021), Evaluating the sensitivity of radical chemistry and ozone formation to ambient VOCs and NOx in Beijing, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 2125-2147.
- Whalley, L. K. et al. (2016), Atmospheric OH reactivity in central London: observations, model predictions and estimates of in situ ozone production, *Atmos. Chem. Phys.* 16, 2109-2122.
- Wild, O. et al. (2020), Global sensitivity analysis of chemistryclimate model budgets of tropospheric ozone and OH: exploring model diversity, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 4047– 4058, doi: 10.5194/acp-20-4047-2020.
- Wofsy, S. C. et al. (2011), HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO): fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols, *Phil. Trans.* R. Soc. A., 369, 2073–2086, doi:10.1098/rsta.2010.0313.
- World Health Organization (WHO) (2005), Air quality guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide, Available online: https://www3.paho.org/hq/index.php?option=com \_topics&view=rdmore&cid=9831&Itemid=40799 &lang=fr (accessed on 12 August 2021).
- World Health Organization (WHO) (2021), WHO global air quality guidelines: particulate matter (PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide, Available online: https://apps.who.int/iris/handle/10665/345329 (accessed on 27 March 2022).
- Xu, H. et al. (2021), Determination of the triple oxygen isotopic composition of tropospheric ozone in terminal positions using a multistep nitrite-coated filter-pack system. *Rapid Commun. Mass Spectrom.* 35, e9124. doi:

10.1002/rcm.9124.

- Yamaji, K. et al. (2006), Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan?, *Atmos. Environ.*, 40, 1856-1868.
- 山崎昌平ら (2012), 北米産針葉樹から放出される VOCs の 化学分析と OH 反応性測定, 大気環境学会誌 47, 9-17.
- Yang, Y. et al. (2016), Towards a quantitative understanding of total OH reactivity: A review, *Atmos. Environ.* 134, 147-161.
- Ye, C. et al. (2018), Tropospheric HONO distribution and chemistry in the southeastern US, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9107–9120, doi: 10.5194/acp-18-9107-2018.
- Yeung, L. Y. et al. (2019), Isotopic constraint on the twentiethcentury increase in tropospheric ozone, *Nature*, 570, 224– 227, doi:10.1038/s41586-019-1277-1.
- Yoshino, A. et al. (2012), Air quality diagnosis from comprehensive observations of total OH reactivity and reactive trace species in urban central Tokyo, *Atmos. Environ.*, 49, 51-59.
- Young, P. J. et al. (2018), Tropospheric Ozone Assessment Report: Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 6, 10, doi:10.1525/elementa.265.
- Zhou, J., K. Murano, N. Kohno, Y. Sakamoto & Y. Kajii (2020), Real-time quantification of the total HO<sub>2</sub> reactivity of ambient air and HO<sub>2</sub> uptake kinetics onto ambient aerosols in Kyoto (Japan), *Atmos. Environ.*, 223, 117189, doi: 10.1016/j.atmosenv.2019.117189.

原稿受領日: 2022 年 3 月 29 日 掲載受理日: 2022 年 6 月 13 日

# 著者所属:

1. 海洋研究開発機構 地球表層システム研究セン ター

2. 名古屋大学大学院 環境学研究科

3. 京都大学大学院 地球環境学堂

4. 国立環境研究所 地球システム領域

5. 九州大学 応用力学研究所

6. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター

7. 情報通信研究機構 テラヘルツ研究センター

8. 気象庁気象研究所 全球大気海洋研究部

#### \* 責任著者:

Yugo Kanaya <yugo@jamstec.go.jp>



# 未来の大気化学のための室内実験

Laboratory experiments for future atmospheric chemistry

江波進一,石塚紳之介,羽馬哲也,猪俣敏

# 未来の大気化学のための室内実験

# Laboratory experiments for future atmospheric chemistry

# 江波進一<sup>1</sup>\*,石塚紳之介<sup>2</sup>,羽馬哲也<sup>3</sup>,猪俣敏<sup>1</sup>

物理化学をベースとした室内実験・理論計算研究が大気化学の発展に果たしてきた役割は大きい。 本稿では、10年後の大気化学の発展の鍵となるテーマ・未解決問題を取り上げ、その突破口となる可 能性がある室内実験技術について議論する。大気中の凝縮相に関する不均一性の定量化を目指し た研究など、既成概念にとらわれない斬新な研究が期待される。

# 1. はじめに

地球の環境は気相・液相・固相によって構成され ており、これまでの大気化学の主な舞台は気相であ った。気相は均一な反応場であり、化学反応を取り扱 いやすいため,実験・理論研究が盛んに行われてき た。一方,溶媒分子が反応に重要な影響を与える液 相,異なる相が接触する境界相である界面は,気相 とは異なる独自の反応場である。近年,液相・界面を 含む多相(multiphase)で起こる物理化学プロセスが 大気化学の理解の鍵となることがわかってきた [Akimoto & Hirokawa, 2020]。例えば, 空気中に浮遊 するエアロゾルは,気相の酸化剤(OH, O<sub>3</sub>, NO<sub>3</sub>, Cl など)と気液界面や液中で反応を起こし、その結果, エアロゾルの放射強制力(気候変動を引き起こす影 響度)や生体への毒性が常に変化している。個々の エアロゾルは微小ではあるが,地球大気に存在する エアロゾルの表面積の総和は、地表面の総面積の 100 倍以上に及ぶと推定され [Seinfeld & Pandis, 2006],界面の反応を無視することはできない。気候 変動に関する政府間パネル(IPCC)の報告書による と放射強制力の不確かさが最も大きいのはエアロゾ ルと雲の相互作用に関する項目である。最新の第6 次評価報告書では,エアロゾルー雲相互作用込みの 「Organic carbon(有機炭素)」の放射強制力は、「SO2」 の約4分の1と報告されているが、二次有機エアロゾ ルの年間生成量は、モデルにより 10-143 Tg/年と大 幅に異なり、大きな誤差要因となっている。エアロゾル に関する不均一性を定量化し,モデルに組み込むこ とができれば、これらの誤差要因を大幅に減らすこと ができる可能性がある。また大気汚染によって世界 で年間約430万人が死亡しており、エアロゾルは その主因であるとされる[Shiraiwa et al., 2017]。界 面を含む多相反応によって,大気中のエアロゾル は酸化を受けており、その毒性も常に変化してい る。これらの大気のエアロゾルが、どのように発生、成 長,変質していくのか、という「エアロゾルの一生」に 関しては未だによくわかっていない。このように、液 相・界面を含む多相で起こる物理化学プロセスはエ アロゾルがもたらす気候変動への影響と健康影響の 理解において極めて重要と考えられるため、その全 容解明の取り組みは推進すべき課題である。

本稿では、大気化学の発展の鍵となるテーマ・未 解決問題について議論する。気相、液相、界面の大 気化学、そして実験技術の進歩と今後の発展性につ いて概説する。なお、本誌 34 号「有機エアロゾルに 関する不均一反応研究の現状と課題:大気化学と理 論化学の連携」[谷本ら、2016]において、理論計算 化学の大気化学における将来構想が既に記されて いるので、本稿では主に室内実験に関する将来構想 について述べる。

### 2. 気相の大気化学

気相の大気化学の分子科学的研究は、主にレー ザーの発展とともに進み,気相で起こる多くの主 要な大気化学反応の速度定数や吸収断面積など の分光データが導出されてきた。これらのデータ は既に IUPAC reference data などで公開されてい る。これまで,成層圏で起きる化学反応過程は網 羅的に調べられてきた。一方、対流圏で重要な有 機化合物が関わる反応については、光化学オゾン 生成能を評価するための有機化合物の第一段階 の酸化反応(OH 反応やオゾン反応),もしくは, その生成物の後続反応が主として研究されてき た。近年、二次有機エアロゾル生成の研究が盛ん になり、化合物の「揮発性」の概念のもと、生成 物の低揮発性化の鍵となる反応過程に注目した 研究が行われてきた。しかし、下記に示すように いくつかの反応系において未解決問題が残され ている。

#### 2.1 RO<sub>2</sub>の化学

アルキルペルオキシラジカル  $RO_2$ は、大気中の HOx/NOx サイクルの中心となる重要な化学種で あり、その反応についてこれまで詳しく研究が行 われてきた (RO2 の大気中での役割に関しては 「大気汚染物質群の新たな科学: 化学理論の更新 と排出一気候変動・健康問題の解決へ向けて」の 章を参照) [Orlando & Tyndall, 2012]。しかし、近 年その重要性が明らかになってきた炭素数が 10 以上のテルペンを由来とする  $RO_2$ に関してはまだ 十分理解されていない。特に  $RO_2$ の反応の分岐比 が非常に重要な未解決問題となっている。具体的 には、 $RO_2$ の self-reaction ( $RO_2$ + $RO_2$ ) および他種  $R'O_2$  との反応 ( $RO_2$ + $R'O_2$ ),  $RO_2$ の分子内自動酸 化反応 (autoxidation)の反応速度定数の導出が早

急の課題である。これらの反応は、低揮発性の化 合物を生成し、エアロゾルの生成と成長に寄与す るため重要である。テルペン由来の RO2+R'O2 が 十分速く, ROOR'という低揮発性の過酸化物が生 成することで, エアロゾル生成に貢献している可 能性がある[Berndt et al., 2018]。一方で, RO2の自 動酸化反応によって、分子内に「自動的に」ヒド ロペルオキシド基-OOH が複数個存在する highly oxygenated organic molecules (HOM) が生成し、エ アロゾルの生成に貢献している可能性がある [Bianchi et al., 2019]。最近の研究では、この自動酸 化反応は NO 存在下(都市域の汚染大気条件下) でもRO2+NOに匹敵し、大気中のエアロゾル生成 の大部分を占めていると主張されている[Praske et al., 2018]。従来, RO2の消失過程は R'O2, HO2, NO による二分子反応が主であると想定されてき たが、自動酸化反応も考慮しなくてはいけないこ とがわかってきた。今後、大気汚染対策が進み、 NOx 濃度が減少することが予想されており,自動 酸化反応およびそれに伴うエアロゾル生成が重 要になるだろう。

このように、大気中の代表的な揮発性有機化合物であるテルペン由来RO<sub>2</sub>の消失過程を決定する 室内実験が望まれる。テルペン由来のRO<sub>2</sub>は様々 な構造を持つため、それぞれ速度定数が大きく異 なることも考えられ、理論計算を含めた詳細な研 究が必要である。

HOM 生成に関しては,水素原子移動反応が複数回,秒のスケールで起きているとされるが,今後,それらの反応を逐次反応の1ステップ毎に追跡することができれば,HOM の生成機構の直接的な証明になると考えられる。

また,人為起源の代表的な揮発性有機化合物で あるトルエン由来のRO2の反応に関してもまだ完 全には理解されていないため[*Wang et al.*, 2020], こちらも引き続き,室内実験研究が必要である。

#### 2.2 安定化クリーギー中間体の化学

安定化クリーギー中間体 (stabilized Criegee intermediate, sCI) はアルケンとオゾン反応で生成 するカルボニルオキシドと呼ばれる化学種であ る。後述のエネルギーが過剰な (hot な) 状態のク リーギー中間体に対して, エネルギー的に「安定 化」したものを sCI と呼ぶ。sCI はビラジカルと 両性イオンの性質を持つ中間体である[Chhantyal-Pun et al., 2020]。2008 年に Taatjes らによって最 も単純な sCI である CH<sub>2</sub>OO の直接検出がなされ [Taatjes et al., 2008], それ以降, sCI の分子科学研 究が盛んに行われている。sCIは,-OH 基を持つ 分子(主に水,アルコール,カルボン酸)やSO2, アミンやアンモニアなどと反応し、大気の重要な 反応種としての役割を担っている。テルペンは分 子内に C=C 二重結合を持つため(時に複数個持 つ), 大気中の主要な sCI のソースである。 テルペ ン由来の sCI の消失過程が二分子反応で進む場合, 揮発性の低い生成物が生じるため, エアロゾルの 生成に寄与する。しかし, sCI の反応性はその分 子構造に大きく依存することが理論的に示され ている[Long et al., 2019; Vereecken et al., 2017]。複 雑な構造を持つテルペン由来の sCI の消失過程を 実験的に調べることが今後の課題である。

さらに、sCI の役割として特筆すべき点は、OH との反応が遅くて大気中で分解しないと考えら れていた化学種とも、速い反応速度で反応する場 合があることである。例えば、近年、環境汚染が 問題になっているペルフルオロオクタン酸が、

CH<sub>2</sub>OO とほぼ拡散律速の速さで反応することが 見出された[*Taatjes et al.*,2019]。ペルフルオロオク タン酸の炭素にはすべてフッ素が付いているた め,OH での引き抜き反応は起こりにくい。しか し,sCI との反応では,速やかにヒドロペルオキ シド基を持つエステル化合物を生成する。このよ うに,大気中における sCI の役割はまだ十分には 理解されていない。 ー方で、アルケンとオゾン反応の初期にはエネ ルギーが過剰な状態のクリーギー中間体が生成 し、安定化する以外に、異性化してビニルペルオ キシドを経由し、OH ラジカルを放出する経路も ある[Chhantyal-Pun et al., 2020]。その場合は、HOx サイクルと大気の酸化能に影響を与える。そのた め、様々なアルケン+O3反応系での sCI と OH の 収率に関する研究が進められてきた[Chhantyal-Pun et al., 2020; Hatakeyama & Akimoto, 1994]。

#### 2.3 異性化反応

上述のように、気相で起こる主要な大気化学反応が研究されてきたが、近年、実験手法や理論計算の改良によって、新しい反応経路の発見が報告されている。特に、ラジカルの異性化反応に関する報告が多い。これまでよく調べられてきたα-ピネンやジメチルスルフィド(DMS,硫化ジメチルとも呼ばれる)のOH酸化反応の反応機構に、粒子生成につながる新しい異性化反応が報告されている。

代表的なテルペンであるα-ピネンと OH の反応 は、OH 基がα-ピネンの六員環にある二重結合に 付加し、もう一方のラジカルポイントに酸素分子 が付加する過程が主要な反応経路である。また、 ラジカルポイントが四員環の炭素に移動して、四 員環が開環する過程の存在も報告されていたが、 その開環のルートが HOM 生成に重要である可能 性がある(図1)[*Inomata*, 2021; *Xu et al.*, 2019]。



図1 新粒子生成(NPF)につながるα-ピネンの四員環の 開環経路(枠組み内)[*Inomata*, 2021]。

同様のラジカルの異性化反応が、六員環外 に二重結合のある β-ピネンと OH の反応 系でも報告されている[*Xu et al.*, 2019]。開 環ルートの収率はアセトンの生成収率か ら求められていた(α-ピネンの場合約 7% [*Nozière et al.*, 1999])が、今後、開環ルー トの収率の見直しが必要かもしれない。

DMS は主に海洋の植物プランクトンか ら放出される揮発性の硫黄化合物である。 主に OH によって酸化され,最終的に硫酸 もしくはメタンスルホン酸となり,雲の凝 (DMS 結核やエアロゾルを発生する(「人新世に おける海洋エアロゾル・生物の気候フィードバッ ク」の章参照)。CLAW 仮説で知られるように, DMS の生成・放出が地球規模の気候変動に関与し ている可能性が指摘されている[Charlson et al., 1987]。エアロゾルと雲の相互作用が放射強制力の 不確かさの最大の要因であることを踏まえると, DMS の酸化過程は極めて重要な反応であるとい える。実際に,その重要性から DMS の酸化反応 に関する多くの研究が行われてきた[Barnes et al., 2006]。

近年,化学イオン化質量分析法を用いた実験に よって,DMS+OHの酸化過程に新しい反応経路が 報告された[Berndt et al., 2019]。DMS+OHの反応 では,硫黄原子SにOHが付加しジメチルスルホ キシド(DMSO)が生成する反応経路と,メチル 基の水素原子が引き抜かれ O2が付加することで CH<sub>3</sub>SCH<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ラジカルが生成する反応経路がある。 この CH<sub>3</sub>SCH<sub>2</sub>O<sub>2</sub> は RO<sub>2</sub> ラジカルの一種で,その 他の RO<sub>2</sub> 同様に NO や RO<sub>2</sub>/HO<sub>2</sub> と二分子反応を 起こすと想定されてきた。しかし,Berndt らは CH<sub>3</sub>SCH<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の $\geq$ 95%は異性化し,CH<sub>2</sub>SCH<sub>2</sub>OOH と なり,さらに O<sub>2</sub>が付加し OOCH<sub>2</sub>SCH<sub>2</sub>OOH ラジ カルとなる反応経路が存在することを見出した (図 2)。OOCH<sub>2</sub>SCH<sub>2</sub>OOH はさらに異性化し HOOCH<sub>2</sub>SCHOOH となり,HOOCH<sub>2</sub>SCHO+OH に



図2 Berndt らにより提案された気相で起こるジメチルスルフィド (DMS)+OH の新規反応経路(赤字と赤矢印)[Berndt et al., 2019]。

> 分解する。この反応経路の中心は、上記 2.1 節の RO<sub>2</sub>の自動酸化と同じ分子内の水素原子移動反応 であることが興味深い。この反応経路は従来の大 気化学モデルでは組み込まれておらず、今後 DMS+OH系の見直しが必要になるかもしれない。

> 上記のいずれの反応系もこれまで非常によく 研究されてきており、未知の反応経路はないと想 定されてきた。しかし、α-ピネンのケースで明ら かになったように、収率(分岐比)は低くても、 生成物の揮発性が低い場合には粒子生成につな がるなど、大気へ大きな影響を与える反応経路が 存在する。今後も、エアロゾル生成につながる気 相反応の詳細な研究が重要である。また未知の反 応経路の探索には理論計算の助けが必須である。 特に、質量分析法を用いた実験では、生成物の異 性体を区別することは困難である。理論計算によ って、異性化反応に進む反応経路の分岐比を推定 することで、多様なエアロゾル有機分子の起源に ついて定量的な議論が可能になる。

> また,上記のような課題に取り組むためには,有 機合成化学者との連携が今後重要になるであろ う。定量分析の鍵となる標準物質や,複雑な構造 を持つテルペン由来化合物などは市販されてい ないケースが多い。有機合成によって,研究に必 要な化合物を自在に合成し使用できれば大きな アドバンテージになる。実際に,海外の大気化学

研究では有機合成化学者と連携し、大気中で鍵と なる化合物を合成し用いることで、近年、大きな 成果を挙げている(例えば [Barber et al., 2018; Kenseth et al., 2020])。

### 3. 液相の大気化学

エアロゾルや雲粒などの大気の凝縮相の内部で 起こる液相反応は、粒子の蒸発や凝集、吸湿、相状 態の変化、溶解等に影響を及ぼすため重要である。 しかし、液相で起こる大気化学反応は気相に比べて まだよくわかっていない。その理由の一つは溶媒の 存在である。液相においては溶質の化学反応は常に 溶媒分子の影響下で起こる。例えば、RO<sub>2</sub>+RO<sub>2</sub>の self-reaction や RO<sub>2</sub>+R'O<sub>2</sub>の cross self-reaction は気 相では比較的遅いが、液中では多くの場合、非常に 速い。これは ROOOOR(ROOOOR')中間体が溶媒分 子(水など)によって安定化することが理由に挙げら れる。液相では、第三体(third body, M)が常に密に 存在する「高圧」条件にあるといえる。

これまでOHラジカルやオゾンによる速い酸化反応 に関しては比較的研究が進められてきた。一方で, エアロゾル・雲粒内で数時間~数日という比較的ゆ っくりとした時間スケールで進行する縮合反応・重合 反応などに関してはよくわかっていない。また,大気 中には水が大量に存在しているため,有機化学でよ く知られている有機溶媒中で起こる反応が,水が存 在する実際の大気の凝縮相で起こるのかどうかにつ いては今後詳しく研究する必要がある。特に,液中に おけるオリゴマーや有機硫酸エステルの生成,微小 で不均一な液相の大気化学反応の理解は現時点で 不十分であり,ここで取り上げる。

#### 3.1 オリゴマーの化学

Dommen らは、イソプレンがNOx 存在下でOH と反応して生成するSOA をマトリックス支援レ ーザー脱離イオン化質量分析法で測定し、質量数 100~600の範囲に現れるイオン信号の間隔が 14 (CH<sub>2</sub>の分子量に相当),16(Oの原子量に相 当),18(H<sub>2</sub>Oの分子量に相当)であることを見 出した[Dommen et al.,2006]。この結果はSOA内に いくつかの周期的なユニット構造を持つ高分子 量の化合物が生成したことを意味している。この ような化合物は,気相の反応で生成するモノマー の揮発性からは説明できない。そのため,SOAの 「内部」でオリゴマー化反応が進んだ可能性が示 唆される。

硫酸エアロゾルなどの酸性の粒子が存在する と、気相のアルデヒド、ヒドロペルオキシド、ア ルコール、カルボン酸は粒子に吸収されたのち、 (ペルオキシ) ヘミアセタール、アセタール、ア ルドール反応生成物、アルドール縮合体、エステ ルなどのオリゴマーの生成を促進することが知 られている[Jang et al., 2002]。酸性粒子内に気相生 成物が取り込まれて低揮発性の化合物を生成す る過程は「酸触媒不均一反応」と呼ばれ、粒子を 成長させるという点で重要である。

しかし、これらの反応は基本的に可逆反応のた め、条件次第では元に戻る(オリゴマーの分解) ことが起こりうる。また、HOMやsCIの反応生成 物は-OOH基を持つヒドロペルオキシドであるた め、粒子内に多くのヒドロペルオキシドが存在す ると考えられている。ヒドロペルオキシドは酸触 媒分解が知られている[丸山,1960]。テルペンのオ ゾン酸化で生成するヒドロペルオキシドの一部 は、水溶液中でH<sup>+</sup>の触媒反応によって、過酸化水 素に分解することが報告されている[Enami, 2021]。

オリゴマーの生成と分解の兼ね合いが,SOA生 成量の決定に重要であり、オリゴマーの生成と分 解過程を体系的に理解することが今後必要であ る。

#### 3.2 有機硫酸エステルの化学

有機硫酸エステル(OS)は、大気粒子に含まれる重要成分として、近年注目を集めている

[Brüggemann et al., 2020]。OSは揮発性が低いの で、その生成過程を理解することは、SOA生成 のモデル化に必須である。OSの生成過程は、従 来考えられていたアルコールとのエステル化反 応ではなく、エポキサイドとの酸触媒開環反応 が有力とされている。また、スルフォキシラジ カル (SO<sub>3</sub>・)の液相内での反応やSO<sub>2</sub>の界面での 不均一反応も提案されている。現在のモデルで は、イソプレン由来OSにフォーカスされている が、モノテルペン由来OS、人為起源由来OSのモ デル化も今後必要と考えられ、またそれらに帰 属できないOSの存在も確認されており、この解 明も残されている。

また今後、大気汚染対策で硫酸エアロゾルの量 が減ることが予想されており、その場合、無機硫 酸イオンに対する有機硫酸イオンの割合が大き くなり、粒子の吸湿性や形状に変化が生じると予 想されている[*Riva et al.*, 2019]。エアロゾルー雲相 互作用への影響が考えられることからも、OS の 研究は必要である。

#### 3.3 微小不均一性の化学

従来の液相の大気化学の研究では,主に単一の 溶媒(水やアルコール)が使用されてきた。しか し,水と親水性溶媒の混合溶液には,濃度の不均 ーな偏りができることが知られている。例えば, 海洋エアロゾルのモデルとして考えられる水と ジメチルスルホキシド(DMSO)の混合溶液は, 分子レベルでは不均一な状態で存在している(図 3)。水:イソプロパノール(IPA)などの混和溶 液でも同様の「微小不均一性」が報告されている。 重要なことに,水と水以外の混合溶液では,分子 の集合体(ドメイン)が普遍的に発生することが 知られている。このような分子レベルでの不均一 性が存在する反応場では,反応速度が反応物のバ ルク濃度に対して非線形的に応答するため,従来 の反応速度論で議論することは不可能である。た



図3 水:DMSO の混合溶液(海洋エアロゾルのモデル) の内部には 10<sup>-10</sup>から 10<sup>-9</sup>メートルのサイズのドメイン が存在する。*Oh & Baiz* [2020]を一部改変。

とえば、 $\alpha$ -ピネンのオゾン酸化で生成する $\alpha$ -ヒド ロキシヒドロペルオキシドの水:アセトニトリル 溶媒中での分解速度を調べた実験では、溶媒中の 水の体積%が60%から20%に変化すると、分解速 度定数もそれに従いほぼ線形的に減少する。とこ ろが、20%から10%に変化させた時には、その分 解速度定数は突然一桁減少する[Oiu et al., 2020]。 これはα-ヒドロキシヒドロペルオキシドの寿命 に換算すると、1時間(水20%)から11時間(水 10%)の劇的な変化である。β-カリオフィレンの オゾン酸化で生成するα-ヒドロキシヒドロペル オキシドの水:アセトニトリル溶液における分解 反応速度定数においても、同様の非線形的な挙動 が報告されている[Qiu et al., 2019a]。このような非 線形的な挙動は、水と水以外の液体の混合溶液で 普遍的に観測されており,液中反応だけでなく, 界面反応においても重大な影響を与えている [Enami et al., 2019]<sub>o</sub>

このように混和している水溶液でさえ、極微視 的には不均一であり、実際の大気中の凝縮相は、 水とそれ以外の成分で構成されているため、常に 分子レベルでは不均一な状態として存在してい るはずである。このような不均一性は、周りの環 境条件(相対湿度,温度,太陽光・酸化剤の有無) によって変化していき、液相反応のみならず、界 面で起こる物理化学過程に重大な影響を与えて いると推定される。従来の室内実験で導出された



図4 大気中で起こる界面反応と今後の研究課題。

反応速度定数や取り込み係数は、これらの微小不 均一性を考慮せずに、空間・時間平均を取った値 であるため、実験の系によっては再評価が必要と なる可能性がある。実際に、ドメイン内で起こる 反応は、均一な溶媒を仮定したときよりもオーダ ーレベルで速く進行する可能性が示唆されてお り[Kononov, 2015; Qiu et al., 2019a],その定量化と 大気の凝縮相中で起こる化学反応に与える影響 の評価が今後必要になる。

ここで取り上げた液相反応を研究することで,エ アロゾル・雲粒の蒸発や凝集,粒子の吸湿,粒子の 相状態の変化,溶解等の物理過程の理解が進み, 大気化学モデルと観測結果への橋渡しが可能にな ると期待される。また,エアロゾル内部で起こる化学 変化を解明することで,エアロゾル成分中のどの化合 物が人体への悪影響を及ぼしているのかが推測でき るようになるため,PM の健康影響を解明する上でも 重要である。

#### 4. 界面の大気化学

近年の研究によって,エアロゾルと雲粒の発 生・成長・変質には,界面反応が深く関与してい ることがわかってきた。空気-液体エアロゾルが 接する境界(気液界面)や,水が付着した固体エ アロゾルの境界(固液界面)は,界面特有の現象 が起こる反応場であり,大気の物理化学過程に大 きな影響を与えている(図4)。以下,界面の特異 性の起源,界面反応の定量化と界面光反応の重要 性について述べる。

#### 4.1 界面の特異性の起源の解明

空気-水界面に存在する化学種の密度分布は, 深さ方向(z 軸方向)に偏りが生じ,それぞれの 存在する層によって反応速度や生成物が変わっ てくる。例えば,海洋上の大気で重要となるヨウ 化ナトリウム(Nal)水溶液-空気界面では,ヨウ 化物イオン(I)は空気側の最表面(深さ約0.4nm) に濃度分布の極大を持つため[Jungwirth & Tobias, 2006],最表面のIは気体のオゾンと特異的に反応 すると予想される[Sakamoto et al., 2009]。

また、気液界面では液体の密度が液中に比べて 低いため、溶媒和が不完全になり、そこで起こる 反応が液中とも気相とも異なるケースが数多く 報告されている[Enami et al., 2014; Ruiz-Lopez et al., 2020; Wei et al., 2020]。例えば、酸性エアロゾルに イソプレンやテルペンのガスを吹き付ける実験



図5 大気中のエアロゾル・雲粒の気液界面で起こる 化学反応・物理過程の模式図。*Bzdek & Reid* [2017]を 一部改変。

では、気液界面に存在する $(H_3O^+)(H_2O)_{n\leq 4}$ がイソプ レンやテルペンに H<sup>+</sup>を渡すことがわかっている [*Enami et al.*, 2012; *Ishizuka et al.*, 2020; *Matsuoka et al.*, 2017]。水中に存在する $(H_3O^+)(H_2O)_{n=5}$ は同様の H<sup>+</sup>移動反応を起こすことができないため、気液界 面における「不完全な水和」が、界面反応の特異 性の起源の一つであると言える。

また,空気-水界面では面方向(x,y軸方向)に おいても分子レベルの不均一性が生じている。界 面活性な有機化合物は,ある特定のバルク濃度で は空気-水界面に島状に不均一に分布し,界面反 応と吸着・脱離・拡散などの物理過程に影響を与 えている(図5)。界面活性なカルボン酸が液滴の 表面に存在する場合,これまで想定されてきたよ りも容易に雲粒の成長が起きることが示されて いる[Ruehl et al., 2016]。

このように空気-水界面では深さ方向と面方向 において、溶媒と溶質(反応物や生成物)の分布 に分子レベルの不均一性が生じており、それが反 応メカニズムに劇的な影響を与えていると考え られる。しかし、分子レベルで不均一な気液界面 の「どこで」界面反応が起こっているのか、など の問題が残されている。

また空気--氷界面や水--氷界面も,成層圏・対流 圏で起こる不均一反応の反応場として重要であ る。最新の研究によって,空気--氷界面の分子構造 と,そこで起こる諸現象の理解が進んできた [Nagashima et al., 2016; Nagashima et al., 2018; *Nagata et al.*, 2019; *Nojima et al.*, 2020; *Sazaki et al.*, 2010]。また,水が凍結するときに水-氷界面を介して反応が増幅される可能性が示されている [*Kim et al.*, 2016; *Takenaka & Bandow*, 2007]。しかし,大気条件下に存在する氷とその界面で起こる反応機構と,その特異性の起源はまだよくわかっていない。

#### 4.2 界面反応の定量化

上述のように、分子レベルで不均一な気液界面 で起こる物理化学過程は、気相とも液相とも異な る特殊なものであることがわかってきた。それが 実際の大気中でどのような働きをしているのか についてはまだよくわかっておらず、界面で起こ る物理化学過程を定量化する必要がある。従来, 反応速度定数(k)や反応性ガスのエアロゾルや雲 粒への取り込み係数 (γ)の決定を行う実験におい ては、溶媒として単一の溶媒(多くは純水)を用 いており、「その中に含まれる成分は均一に混ざ っている」という前提で解釈を行ってきた。しか し、上述のように、自然に存在する溶媒には、常 に溶媒と溶質の両方に極微小な不均一性が生じ ており, k とγは界面の不均一性のために変化する ため、「定数」として扱うことに問題があるかもし れない[Enami et al., 2019]。従来の k, yに代わり, 溶 質・溶媒濃度などの条件に応じて変化する分子レ ベルの不均一性の効果を反映する kreal, Yreal を導出 する必要があるだろう。理想的には、気液界面の サブナノメートルの空間分解能においてそれぞ れの反応場における kreal を決定したいが、これは 実験的には非常に困難であるため、理論計算の助 けが必要であろう。理論計算によって、それぞれ の反応場におけるローカルな k, yを導出し, それ らを実験の系における  $k_{real}$ ,  $\gamma_{real}$  とつなぐ必要があ る。kreal, Yrealを導出し、大気モデルに組み込むこと で,初めて界面反応が大気に与える影響を定量的 に評価することができる。

#### 4.3 界面光反応の解明

大気-海洋の境界であるマイクロレイヤーやエ アロゾルの気液界面には、ノナン酸 (CH<sub>3</sub>(CH<sub>2</sub>)<sub>7</sub>COOH)などの界面活性な有機分子が 液中よりも濃縮して存在している。気相や液相に おける光吸収スペクトルのデータからは、これら の有機分子について太陽光 (> 295 nm) による反 応は起こらないとされ、従来、光化学反応は考慮 されてこなかった。しかし近年、これらの界面活 性な分子が気液界面では活発な光反応を起こす ことで, 大気の掃除屋と呼ばれる OH が生成し, 地球大気に影響を与えている可能性が示唆され ている[Rossignol et al., 2016]。しかし、本当にカル ボン酸の光分解で OH が生成するのか?また,な ぜ気液界面ではカルボン酸が光反応を起こすの か?などに関してはわかっていない。また、理論 計算によると気液界面に存在するオゾンの光分 解反応は、気相・液中と比べて早く進む可能性が 報告されている[Zhong et al., 2019]。このような界 面光反応が大気中で重要な働きをしている可能 性があり、そのメカニズムの解明が急がれる。

# 5. 実験技術の進歩と今後の発展性

#### 5.1 質量分析技術

質量分析技術は気相,液相,界面の三相の物質 を対象とする非常に強力な手法である。直接大気 の取り込みが可能なソフトイオン化質量分析法 の革新的な進歩により,多種多様に存在する有機 物の高時間分解能での測定が可能になった。その 成果として HOM の存在が明らかになるなど,新 しい発見に貢献している[Ehn et al., 2014]。さらに, インレット部にエアロゾルを(捕集+)気化させ るシステムを組み合わせることで,エアロゾル成 分の高時間分解能での測定が可能となっている。 これまでのエアロゾル質量分析計ではイオン化 に電子衝撃法が用いられてきたが,ソフトイオン 化の工夫がされた点に進展がある。しかし,エア ロゾルの成分を見るためには熱をかけて気化さ せる必要があり,成分の熱分解の恐れがある。今 後,エアロゾル成分を「そのまま」の状態で見る ためのブレークスルーが必要である。それまでは, フィルター捕集後に抽出・誘導体化などを行って 安定化させて,分析にかける従来法との比較を行 うことが必要であろう。

オンライン質量分析法では,高質量分解能化す ることで,組成が異なれば区別して検出すること が可能であるが,異性体は区別できないという問 題点がある。異性体を区別していく方向性として は,MS×MS(タンデム質量分析)ができるシス テムにする[Sekimoto et al., 2020],イオン移動度と 組み合わせ衝突断面積の違いを求める[*linuma et al.*, 2021],などがある。これらの技術は現在は室 内実験での使用に限定されるが,可搬型のものが できてオンサイトで観測等に用いられるように なれば,大気化学の理解が飛躍的に進むと考えら れる。

#### 5.2 光学技術

気相の化学種の選択的な検出に、化学種の吸 収・発光が用いられる。発光は高感度検出が可能 であるが,発光する化学種は限定的であるという 問題がある。一方、吸収はすべての化学種が持つ ので, 高選択性・高感度化を目指していけばよい。 また、定量的である点もメリットである。高選択 性の観点から言えば, 化学種固有の吸収線が利用 できれば良いので、線幅の狭いレーザーの普及が 求められる。吸収帯としては,電子励起遷移(紫 外~可視領域)や振動-回転線のある中~遠赤外 領域(4~10µm)が用いられる。紫外~可視領域 では青色発光ダイオードの普及、中~遠赤外領域 では量子カスケードレーザーの普及により、多く の新しい計測装置が開発されている[Sakamoto & Tonokura, 2012]。一方の高感度化の観点から言え ば,光路長を稼ぐキャビティリングダウン分光法

(Cavity Ringdown Spectroscopy, CRDS) やキャビ ティ増幅吸収分光法が優れている[Maity et al., 2021;川崎, 2007]。従来の物よりもさらに高反射 率のミラーと高感度の光電子増倍管を用いるこ とで,これまで不可能であった極微量成分の検出 ができる可能性がある。

また,これまで用いられてこなかったテラヘル ツ領域の波長域を用いた光学技術が,大気化学の 室内実験においても有効利用されるかもしれな い。

#### 5.3 反応実験研究技術

気相ラジカル反応の速度定数を決定する実験 は,反応させる分子の濃度過剰条件下において, ラジカルの減衰率から決定する手法が一般的に 用いられている。フローチューブ系で行われ、ラ ジカルは質量分析法もしくは分光学的手法で検 出される。例えば, Taatjes らはシンクロトロン光 イオン化質量分析法を用いた sCI の直接検出によ って、気相における多くの sCI の反応速度定数を 決定してきた (例えば [Taatjes et al., 2019])。一方, ラジカルを検出せずに行う手法として、光化学チ ャンバー等を用いた相対法がある[Illmann et al., 2021; Yajima et al., 2017]。反応速度定数が既知のも のと比較し, 速度の相対値を求めるもので, 有機 化合物の OH や Cl 反応の速度定数の決定に使わ れてきた。最近は、フローチューブと前述のオン ライン質量分析計を組み合わせて、RO2 ラジカル 等の反応研究に用いられている[Berndt et al., 2018].

反応生成物や二次生成有機物粒子の収率等を 求める研究には、光化学チャンバーが用いられる [Ramasamy et al., 2021]。しかし、二次生成粒子の 生成は十分に定量化されていない様々な要素に 依存するとされている。従来の酸化剤(OH/O<sub>3</sub>/NO<sub>3</sub>) を変えた実験(光照射の有無)だけでなく、温度、 湿度、シード粒子の量や性状(酸性度)の依存性 を系統的に調べられるシステムが必要である [Deng et al., 2021]。

光化学チャンバーは、大気中で起きる光化学反 応を研究するために考案された大型の反応容器 である。大容量が必要とされるのは、分析上の理 由と反応上の理由からである。分析上の理由とし て、反応物・生成物の分析にチャンバー内の大気 を吸引する必要がある点が挙げられる。また、反 応上の理由として、低濃度のガスを用いた実験で は反応容器の壁面での吸着や脱着が無視できず, その影響を減らす必要がある点が挙げられる。そ のため、表面積/体積比が小さくなる大容量の容 器が求められた。この要請にこたえるため、光化 学チャンバーは二つの方向の発展を遂げた。一つ は真空排気型で,実験終了後,容器を高真空にす ることで吸着物質を除去し,前の反応実験の履歴 をなくし再現性のあるデータ取得を目指すもの である。国立環境研究所の光化学チャンバー(内 容積 6 m<sup>3</sup>) はこのタイプのものである。もう一つ は屋外型で、光源は自然太陽光を用い、大容量の チャンバーを可能にし,壁面の影響を極力減らす ものである。代表的なものは、スペインのバレン シアに建設された EUPHORE で, 内容積は 187 m<sup>3</sup> に及ぶ[秋元,2014]。現在稼働中の光化学チャンバ ーについては, Hallquist et al. [2009]の表 2 にまと められている。

雲凝結核のエアロゾルの吸湿性などを調べる 技術に雲チャンバーがある。エアロゾル内に雲凝 結核を導入し、減圧・低温にしながら雲生成を起 こすものであり、エアロゾルー雲相互作用の研究 に有益である。国内では、気象研究所の雲チャン バーがある[*Tajiri et al.*, 2013]。海外では、European Organization for Nuclear Research (CERN) の CLOUD (Cosmics Leaving Outdoor Droplets) チ ャンバーや Karlsruhe Institute of Technology の AIDA (Aerosol Interaction and Dynamics in the Atmosphere) チャンバーなどがあり、低温での SOA 生成や新粒子生成の研究などに用いられて いる [*Caudillo et al.*, 2021; *Kirkby et al.*, 2016; *Saathoff et al.*, 2009]。また, Interuniversity Laboratory of Atmospheric Systems (LISA) で考案された CESAM (French acronym for Experimental Multiphasic Atmospheric Simulation Chamber) チャ ンバーは、雲発生中や発生後のエアロゾルのエイ ジングを調べることができるように設計されて いる点に特徴がある[*Wang et al.*, 2011]。

気液界面で起こる反応の理解は、近年の実験手 法の発展により飛躍的に進展した。例えば、マイ クロジェットと質量分析法を利用した手法では, サンプル水溶液をネブライザーでマイクロジェ ットとしてチャンバーに噴霧し、そこに反応ガス を吹き付ける。反応後,微小液滴の分解により, 気液界面のイオンが選択的に気相に放出され、そ のイオンを質量分析計で計測する[Enami et al., 2014]。ただし、本手法では、反応時間が数十µs以 内に起きる現象しかとらえられないという制限 がある。その反応時間を制御できるようになれば, 気液界面の反応に関する多くの情報を得られる だろう。また、この手法は、液相内で起こる反応 に応用できることも確かめられ[Qiu et al., 2019a; *Qiu et al.*, 2019b], エアロゾル・雲粒内部で起きて いると考えられるヒドロペルオキシドの酸触媒 反応やフェントン反応(Fe<sup>2+</sup>+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)等の液相反 応の理解が今後深まることが期待される。

#### 5.4 気液界面の光化学研究

大気-海洋の境界であるマイクロレイヤーや, エアロゾル・雲粒の気液界面で起こる光化学反応 を研究するために,気液界面の光反応実験装置の 開発が進められている。水界面に存在する界面活 性な有機分子の光反応を調べるために,レーザー 誘起蛍光法(Laser-induced fluorescence, LIF)と CRDS を組み合わせ,水溶液界面の有機分子の光 反応で生成する OH の LIF, CRDS 同時測定を行う



図6 界面活性な有機分子は濃度と表面圧に応じて 気液界面における構造が異なる。低濃度(molecular area が大きく surface pressure が低い)では島状に存 在し,高濃度(molecular area が小さく surface pressure が高い)になると単分子膜や多層膜が形成さ れる。*Ruehl & Wilson* [2014]より抜粋。

(LIF-CRDS)。LIF では OH からの蛍光を, CRDS では OH の吸収を測定する。水溶液界面で起こる 光反応によって気相に放出される OH を直接測定 することで,光反応速度定数と OH の収率を導出 できる。海洋のマイクロレイヤーやエアロゾルの 気液界面に存在する界面活性なモデル分子とし て,ノナン酸などの長鎖のカルボン酸が用いられ ている。カルボン酸の気液界面の光反応で気相へ 放出される OH を検出することで,本当にカルボ ン酸の光分解で OH が生成するのか?また,なぜ 気液界面ではカルボン酸が光反応を起こすの か?という重要な問いに答えることができるか もしれない。

カルボン酸は,水素結合を形成するか否かで OH 生成効率が大きく異なることが知られている。 また,水溶液界面において界面活性な有機分子の 構造は,分子の被覆率や表面圧によって「島状」,

「単分子膜」,「多層膜」など不均一な構造をもつ (図6)。気液界面における分子の構造が光反応 に与える影響を解明することが,対流圏での太陽 光による光反応効率を定量する上で重要な課題 である。



図7(A)実験的に生成した Sea Spray Aerosol の AFM 像。色の違いは探針がタップする際の位相の変化を表 しており、エアロゾルが相分離によって Core-shell 構造 を内包していることがわかる。(*Bertram et al.* [2018]か ら抜粋)(B)光酸化反応を経た Fe(III)-Citrate 粒子の STXM-NEXAFS像。界面近傍に生じた二価鉄/三価鉄 の比の不均一が可視化されている。(*Alpert et al.* [2021]から抜粋)(C)硫酸アンモニウム/有機物の混 合からなるエアロゾルのクライオ TEM 観察像。複雑な 表面形態を持っていることが分かる。(*Kucinski et al.* [2019]を一部改変)

#### 5.5 粒子の不均一性に注目した最新技術

多くの実験的研究やフィールド観測では, 無数のエ アロゾルが分散した実験系の平均像として, エアロゾ ルの化学組成, 光学特性などが調べられてきた。し かし, エアロゾルはサイズや化学組成に幅を持ち, そ れぞれの粒子が内包する不均一構造やそのサイズ 依存性, 表面近傍の局所的な現象を議論することは 難しい。気候変動や環境汚染の主要因である 0.01-10 μm のエアロゾルの不均一性を計測し, 相状態や 化学反応性と紐づけ, 理解するための手法が, 今後 のエアロゾルの物理化学的研究の鍵の一つである。

界面 (<1 nm) や微小不均一性(ドメイン)のよう な分子スケールの局所的な計測は未だに難しく、物 理化学的な情報が得られる手法や系は限られている。 上述の水のマイクロジェットと質量分析法を利用した 手法(SIMS: Spray Ionization Mass Spectrometry)で は、気液界面約1nmで起こる不均一反応によるダイ ナミックな組成変化を直接調べることができる。この計 測手法によって,前述の界面に存在する分子レベル の不均一性と化学反応機構を関連付けることが可能 となった[Enami et al., 2019]。また, 真空チャンバーに 導入した液体ビームを光脱離分光法(photodetachment spectroscopy)で分析することで,液体の 表面部分と液中に存在するイオンを別々に調べるこ とができる可能性がある[Hiranuma et al., 2011]。気液 界面の分子の情報を得るために,より一般に用いら れている手法として,和周波発生分光法 (SFG: Sum-Frequency Generation)を始めとした界面選択 性を持つ分光法がある[Inoue et al., 2020; Ishiyama et al., 2011; Nojima et al., 2017; Qiao et al., 2013]. SFG によって界面の不均一構造を明らかにし,他の手法 で測定した不均一構造で起こる化学反応を議論する ような相補的な活用が期待される。明らかにした反応 機構は,前述の LIF-CRDS によって,化学反応速度 定数や,量子収率が決定できる可能性がある。

エアロゾルが内包するナノからサブマイクロスケー ルの不均一構造については,原子間力顕微鏡 (AFM: Atomic Force Microscopy),走査型透過X線 顕微鏡-吸収端近傍X線吸収微細構造分光 (STXM-NEXAFS: Scanning Transmission X-ray Microscopy-Near Edge X-ray Absorption Fine Structure),クライオ透過型電子顕微鏡(cryo-TEM: Transmission Electron Microscopy)によるオフライン 観察と分析が近年報告されるようになっている。図7 に各観察法を用いたエアロゾル試料の観察例を示す。 AFMは探針を這わせることで,エアロゾルの構造を3 次元的に調べる手法で,液相のエアロゾルが探針を 引っ張る力から表面張力を求める解析法も考案され ている [Lee & Tivanski, 2021]。STXM-NEXAFS は, 放射光を用いた吸収端近傍 X 線吸収微細構造分光 (NEXAFS) によって,他の手法では得られないエア ロゾル内部の化学結合についての情報が調べられる。 TEM はここで取り上げた手法の中で最も時間・空間 分解能が高く,形態観察に適している。TEM は電 子線を試料に照射し,試料を透過させて観察する 顕微鏡法であり,電子線が通る経路には高真空環 境 (10<sup>-5</sup> Pa) が必要となる。そのため,水や有 機物を含む揮発性のエアロゾルの観察は困難で あった。近年,液体窒素温度で瞬間凍結することで, 揮発性の高い液相や有機物の観察も行えるクライオ 電子顕微鏡法が普及し,エアロゾル試料の観察も行 わるようになった。

これらの顕微鏡法は, 基板上に粒子を沈着させた 後に観察を行う必要がある。しかし, 実際のエアロゾ ルは大気中に浮遊している。単一のサブマイクロメー トルスケールのエアロゾルを捕捉, 計測する手法とし て, 光ピンセット法(OPT: Optical Tweezers)がある。 レーザー光の吸収の有無によってエアロゾル捕捉の 原理は異なり, そのため様々な光学系が考案されて いる。ここでは大気化学研究への応用が容易な, エ アロゾルによる捕捉光の吸収がない場合について紹 介する。左右両側からレーザー光を集光する対向ビ ーム光学系では, 光圧によって直径 0.5-10 µm の液 滴を捕捉することができる。対向ビーム光学系は, 大 気エアロゾルと同等サイズの粒子を安定に捕捉でき るため, 他の光学系よりも大気化学研究における応 用可能性が高い。捕捉したエアロゾルは, 捕捉光そ

のものや,別の光源を用いて様々な計測が行える。 大気化学的に重要となり得る手法として,可視光の 散乱スペクトルから屈折率と粒径をナノメートルレベ ルの精度で求める手法 [David et al., 2016], 左右の レーザー光強度を変化させた際のエアロゾルの調和 振動から質量を求める手法[Reich et al., 2020], 光音 響効果を用いて適応係数を求める手法 [Diveky et al., 2021], 界面張力波の周波数シフトから界面張力 を求める手法[Endo et al., 2018], 2 つの粒子が合体 するまでの緩和時間から粘性を求める手法 [Marshall et al., 2016]などが挙げられる。 ラマン分光 と組み合わせることで,温度や湿度の変化,ガスの吹 き付けによる化学反応,光との相互作用によって,粒 子のサイズ,化学組成,相が変化する過程を捉える こともできる。現状,光捕捉したエアロゾルの局所的 な計測や、それに起因する化学過程を抽出すること ができる実験系は限られているが, 顕微鏡法と組み 合わせることで、ナノ・マイクロスケールの不均一性と、 気相,液相,固相の相互作用による分子の分配,そ れに伴って誘起される相転移, 化学反応のメカニズ ムなどを議論することができる可能性がある。また、 OPT 以外にも、二つの液滴を空気中で衝突させるこ とで生じる混合液滴を誘導ラマン散乱で分析する実 験によって,液滴内部の不均一性を研究できる可能 性がある[Negishi & Kohno, 2019; Suzuki & Kohno, 2014]。一方, 顕微鏡法単独での観察・計測から, 物 理量を導出することは容易ではない。 OPT を始めとし た単一粒子計測法と組み合わせることで,大気化学 モデルに橋渡しが行えるようになる。図8に、本稿で

					1		
< 1 nm	(界面,微小不均一	)	10-1000 เ	nm(相,册	<b>彡態,</b> 注	昆合状	態)
手法	特徴		手法		特征	敳	
SIMS	質量分析法, 界面の化	:学反応	AFM	3次元1	青報,界	面張力	〕測定
SFG	界面敏感分光,分子	-配向 STX	M-NEXAFS	豊富な化	:学結合	に関す	る情報
LIF-CRDS	速度定数,量子収率	の定量	TEM	高分解能	,結晶	構造,亻	L学組成
			OPT	浮遊法.低:	分解能.	豊富な	:計測手法

エアロゾル不均一化学

図8 粒子の不均一性に注目した室内実験技術の例。

紹介したエアロゾル不均一性に対するアプローチを サイズごとに示し,各手法の特徴をまとめた。

### 表1 大気化学の室内実験研究の現況と将来展望のまとめ

究極のゴールは何か。	<ul> <li>・大気中で起こるすべての物理化学過程の理解。</li> <li>・分子レベルの不均一性が与える溶媒効果や界面の特殊性を考慮した反応速度定数・取り込み係数・光学定数の導出。</li> <li>・上記のデータをもとに、大気中で起こるすべて物理化学過程(エアロゾルに関しては、化学組成・揮発性分布・吸湿性・光学特性)を計算によって再現・予測可能。</li> </ul>
この10年での世界的な動 向や日本での研究の強み	<ul> <li>・世界的に、エアロゾルの生成につながる気相反応の理解が進んだ。</li> <li>・界面を含む多相反応の重要性が認識されるようになった。</li> <li>・界面の性質を明らかにする実験装置や理論計算が発達した。</li> <li>・日本では、物理化学をベースとしたオリジナルの研究成果が出ている。</li> <li>・アジアの新興国の台頭と日本の地理的なメリット(共同研究や人材交流)。</li> </ul>
現在の重要なギャップ	<ul> <li>・室内実験(シンプルな系かつ高濃度)と実大気(複雑な系かつ低濃度)のギャップ。</li> <li>・最終生成物の生成メカニズムを確定するための中間体の検出。</li> <li>・エアロゾル成分の中で、どれだけの割合のものを分析でき、また正しく定量できているか。</li> <li>・エアロゾルと雲の相互作用の理解が不十分。</li> <li>・大気との間で物質移動がある海洋のマイクロレイヤーや氷雪が関与する反応が与える影響評価が不十分。</li> <li>・界面現象は定性的にしか扱えず、定量化できていない(例えば界面における反応速度定数の非線形的増大)。</li> </ul>
それらを踏まえ, 今後 10 年の研究をドライブする key question or 作業仮説	<ul> <li>・計測機器の高感度化・多成分同時高時間分解能計測装置の精度の向上ができるか?</li> <li>・酸化過程におけるモノマー・ダイマーの生成機構(特に HOM)や粒子相での化学反応過程を正しく理解できるか?</li> <li>・二次生成エアロゾルの生成収率は、鍵と考えられる要因(酸化剤・気温・湿度・既存粒子の量や性状)でどう(シンプルに)整理できるか?他に見落としている要因はあるか?</li> <li>・エアロゾルの化学的変質過程を microscopic に捉えられないか?(具体例:光ピンセットで大気中のエアロゾルを捕捉,そのまま数日キープして分光(Raman, IR)測定。日中の OH 酸化,夜間の NO3 酸化による成分変化の証拠が得られないか?)</li> <li>・界面特有の現象の把握</li> <li>・不均一性(複雑さ)・界面現象の定量化に向けたブレークスルーは何か?</li> </ul>
主な連携相手	IGAC·分子科学会·有機合成化学

# 6. まとめ

本稿では,室内実験の観点から,気相,液相,界面 の大気化学の現状と今後の課題を紹介した。表1に サマリーを示す。「エアロゾルの動態と放射・雲過程と の相互作用」の章で取り上げられているモデルによる SOA 生成量の過小評価の問題を解決するためには、 本稿第3章で紹介したオリゴマーなどの不揮発性成 分の生成機構の解明やエアロゾルの微小不均一化 学のモデルへの取り込みが鍵となるだろう。また,エ アロゾル-雲相互作用の理解には本稿第4章の界面 反応の定量化や第5章で紹介した雲チャンバーなど の技術を用いた研究が重要になる。また、「大気汚染 物質群の排出・化学過程・濃度のリンクと SLCFs 気 候・健康影響解明:大気化学理論と観測の刷新」の 章で取り上げられている PM の健康影響問題の解決 に関しては、第3章で扱ったエアロゾル内部で起こる 化学反応の理解やエアロゾルの変質に伴って生成 する有害化合物の同定と分析がポイントとなるだろう。

気相と液相といった均一な系で起こる大気化学反応にも、まだ解明されていないものが残されているのが現状である。さらに、多相で起こる物理化学過程はエアロゾルがもたらす気候変動への影響と健康影響の理解において特に重要であるにもかかわらず、その全容解明には遠い状況である。しかし、今後、本稿で示した実験技術と、最先端の理論計算の融合によってブレークスルーが生まれ、これらの課題の突破口となることが期待される。

# 参考文献

秋元肇 (2014), 大気反応化学, 朝倉書店, 東京.

- Akimoto, H. & J. Hirokawa (2020), Field Observations of Secondary Organic Aerosols, in Atmospheric Multiphase Chemistry, edited, doi:https://doi.org/10.1002/9781119422419.ch8.
- Barber, V. P. et al. (2018), Four-Carbon Criegee Intermediate from Isoprene Ozonolysis: Methyl Vinyl Ketone Oxide Synthesis, Infrared Spectrum, and OH

Production, J. Am. Chem. Soc., 140(34), 10866-10880, doi:10.1021/jacs.8b06010.

- Barnes, I., J. Hjorth & N. Mihalopoulos (2006), Dimethyl Sulfide and Dimethyl Sulfoxide and Their Oxidation in the Atmosphere, *Chem. Rev.*, 106(3), 940-975, doi:10.1021/cr020529+.
- Berndt, T. et al. (2018), Accretion Product Formation from Self- and Cross-Reactions of RO<sub>2</sub> Radicals in the Atmosphere, *Angew. Chem. Int. Edt.*, 57(14), 3820-3824, doi:10.1002/anie.201710989.
- Berndt, T. et al. (2019), Fast Peroxy Radical Isomerization and OH Recycling in the Reaction of OH Radicals with Dimethyl Sulfide, J. Phys. Chem. Lett., 10(21), 6478-6483, doi:10.1021/acs.jpclett.9b02567.
- Bianchi, F. et al. (2019), Highly Oxygenated Organic Molecules (HOM) from Gas-Phase Autoxidation Involving Peroxy Radicals: A Key Contributor to Atmospheric Aerosol, *Chem. Rev.*, 119(6), 3472-3509, doi:10.1021/acs.chemrev.8b00395.
- Brüggemann, M. et al. (2020), Organosulfates in Ambient Aerosol: State of Knowledge and Future Research Directions on Formation, Abundance, Fate, and Importance, *Environ. Sci. Technol.*, 54(7), 3767-3782, doi:10.1021/acs.est.9b06751.
- Bzdek, B. R. & J. P. Reid (2017), Perspective: Aerosol microphysics: From molecules to the chemical physics of aerosols, *J. Chem. Phys.*, 147(22), 220901, doi:10.1063/1.5002641.
- Caudillo, L. et al. (2021), Chemical composition of nanoparticles from α-pinene nucleation and the influence of isoprene and relative humidity at low temperature, *Atmos. Chem. Phys.*, 21(22), 17099-17114, doi:10.5194/acp-21-17099-2021.
- Charlson, R. J., J. E. Lovelock, M. O. Andreae & S. G. Warren (1987), Oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo and climate, *Nature*, 326(6114), 655-661, doi:10.1038/326655a0.

- Chhantyal-Pun, R. et al. (2020), Criegee intermediates: production, detection and reactivity, *Int. Rev. Phys. Chem.*, 39(3), 383-422, doi:10.1080/0144235x.2020.1792104.
- David, G., K. Esat, I. Ritsch & R. Signorell (2016), Ultraviolet broadband light scattering for opticallytrapped submicron-sized aerosol particles, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, *18*(7), 5477-5485, doi:10.1039/C5CP06940H.
- Deng, Y. et al. (2021), Temperature and acidity dependence of secondary organic aerosol formation from α-pinene ozonolysis with a compact chamber system, *Atmos. Chem. Phys.*, 21(8), 5983-6003, doi:10.5194/acp-21-5983-2021.
- Diveky, M. E., M. J. Gleichweit, S. Roy & R. Signorell (2021), Shining New Light on the Kinetics of Water Uptake by Organic Aerosol Particles, *J. Phys. Chem. A*, *125*(17), 3528-3548, doi:10.1021/acs.jpca.1c00202.
- Dommen, J., et al. (2006), Laboratory observation of oligomers in the aerosol from isoprene/NOx photooxidation, *Geophys. Res. Lett.*, 33(13), doi:https://doi.org/10.1029/2006GL026523.
- Ehn, M., et al. (2014), A large source of low-volatility secondary organic aerosol, *Nature*, *506*(7489), 476-479, doi:10.1038/nature13032.
- Enami, S. (2021), Fates of Organic Hydroperoxides in Atmospheric Condensed Phases, J. Phys. Chem. A, 125(21), 4513-4523, doi:10.1021/acs.jpca.1c01513.
- Enami, S., S. Ishizuka & A. J. Colussi (2019), Chemical signatures of surface microheterogeneity on liquid mixtures, J. Chem. Phys., 150(2), 024702.
- Enami, S., H. Mishra, M. R. Hoffmann & A. J. Colussi (2012), Protonation and oligomerization of gaseous isoprene on mildly acidic surfaces: Implications for Atmospheric Chemistry, J. Phys. Chem. A, 116(24), 6027-6032, doi:10.1021/jz100322w.
- Enami, S., Y. Sakamoto & A. J. Colussi (2014), Fenton

chemistry at aqueous interfaces, *Proc. Natl. Acad. Sci.* U. S. A., 111(2), 623-628, doi:10.1073/pnas.1314885111.

- Endo, T. et al. (2018), Spherical Spontaneous Capillary-Wave Resonance on Optically Trapped Aerosol Droplet, J. Phys. Chem. C, 122(36), 20684-20690, doi:10.1021/acs.jpcc.8b03784.
- Hallquist, M., et al. (2009), The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(14), 5155-5236, doi:10.5194/acp-9-5155-2009.
- Hatakeyama, S. & H. Akimoto (1994), Reactions of criegee intermediates in the gas-phase, *Res. Chem. Intermed.*, 20(3-5), 503-524, doi:10.1163/156856794x00432.
- Hiranuma, Y., K. Kaniwa, M. Shoji & F. Mafuné (2011), Solvation Structures of Iodide on and below a Surface of Aqueous Solution Studied by Photodetachment Spectroscopy, J. Phys. Chem. A, 115(30), 8493-8497, doi:10.1021/jp204195t.
- Iinuma, Y., S. Ramasamy, K. Sato, A. Kołodziejczyk & R. Szmigielski (2021), Structural Characterisation of Dimeric Esters in α-Pinene Secondary Organic Aerosol Using N2 and CO2 Ion Mobility Mass Spectrometry, *Atmosphere*, 12(1), 17.
- Illmann, N., R. G. Gibilisco, I. G. Bejan, I. Patroescu-Klotz & P. Wiesen (2021), Atmospheric oxidation of α,β-unsaturated ketones: kinetics and mechanism of the OH radical reaction, *Atmos. Chem. Phys.*, 21(17), 13667-13686, doi:10.5194/acp-21-13667-2021.
- Inomata, S. (2021), New Particle Formation Promoted by OH Reactions during α-Pinene Ozonolysis, ACS Earth Space Chem., 5(8), 1929-1933, doi:10.1021/acsearthspacechem.1c00142.
- Inoue, K.-i., C. Takada, L. Wang, A. Morita & S. Ye (2020), In Situ Monitoring of the Unsaturated Phospholipid Monolayer Oxidation in Ambient Air by

HD-SFG Spectroscopy, J. Phys. Chem. B, 124(25), 5246-5250, doi:10.1021/acs.jpcb.0c03408.

- Ishiyama, T., A. Morita & T. Miyamae (2011), Surface structure of sulfuric acid solution relevant to sulfate aerosol: molecular dynamics simulation combined with sum frequency generation measurement, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, *13*(47), 20965-20973, doi:10.1039/C1CP21920K.
- Ishizuka, S., A. Matsugi, T. Hama & S. Enami (2020), Interfacial Water Mediates Oligomerization Pathways of Monoterpene Carbocations, J. Phys. Chem. Lett., 11(1), 67-74, doi:10.1021/acs.jpclett.9b03110.
- Jang, M., N. M. Czoschke, S. Lee & R. M. Kamens (2002), Heterogeneous Atmospheric Aerosol Production by Acid-Catalyzed Particle-Phase Reactions, *Science*, 298(5594), 814-817, doi:doi:10.1126/science.1075798.
- Jungwirth, P. & D. J. Tobias (2006), Specific ion effects at the air/water interface, *Chem. Rev.*, *106*, 1259-1281.
- 川崎昌博 (2007), キャビティーリングダウン分光法 による化学反応の研究, レーザー研究, 35(Supplement), 8-9, doi:10.2184/lsj.35.8.
- Kenseth, C. M. et al. (2020), Synthesis of Carboxylic Acid and Dimer Ester Surrogates to Constrain the Abundance and Distribution of Molecular Products in  $\alpha$ -Pinene and  $\beta$ -Pinene Secondary Organic Aerosol, *Environ. Sci. Technol.*, 54(20), 12829-12839, doi:10.1021/acs.est.0c01566.
- Kim, K. et al. (2016), Production of Molecular Iodine and Tri-iodide in the Frozen Solution of Iodide: Implication for Polar Atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, 50(3), 1280-1287, doi:10.1021/acs.est.5b05148.
- Kirkby, J., et al. (2016), Ion-induced nucleation of pure biogenic particles, *Nature*, 533(7604), 521-526, doi:10.1038/nature17953.
- Kononov, L. O. (2015), Chemical reactivity and solution structure: on the way to a paradigm shift?, *RSC Adv.*, 5(58), 46718-46734, doi:10.1039/c4ra17257d.

- Lee, H. D. & A. V. Tivanski (2021), Atomic Force Microscopy: An Emerging Tool in Measuring the Phase State and Surface Tension of Individual Aerosol Particles, Ann. Rev. Phys. Chem., 72(1), 235-252, doi:10.1146/annurev-physchem-090419-110133.
- Long, B., J. L. Bao & D. G. Truhlar (2019), Rapid unimolecular reaction of stabilized Criegee intermediates and implications for atmospheric Nat. Commun., 10. 2003, chemistry, doi:10.1038/s41467-019-09948-7.
- Maity, A., S. Maithani & M. Pradhan (2021), Cavity Ring-Down Spectroscopy: Recent Technological Advancements, Techniques, and Applications, *Anal. Chem.*, *93*(1), 388-416, doi:10.1021/acs.analchem.0c04329.
- Marshall, F. H. et al. (2016), Diffusion and reactivity in ultraviscous aerosol and the correlation with particle viscosity, *Chem. Sci.*, 7(2), 1298-1308, doi:10.1039/C5SC03223G.
- 丸山和博 (1960), ヒドロペルオキシドの化学, *有機 合 成 化 学 協 会 誌*, *18*(10), 708-717, doi:10.5059/yukigoseikyokaishi.18.708.
- Matsuoka, K., Y. Sakamoto, T. Hama, Y. Kajii & S. Enami (2017), Reactive Uptake of Gaseous Sesquiterpenes on Aqueous Surfaces, J. Phys. Chem. A, 121, 810–818, doi:10.1021/acs.jpca.6b11821.
- Nagashima, K. et al. (2016), Direct Visualization of Quasi-Liquid Layers on Ice Crystal Surfaces Induced by Hydrogen Chloride Gas, *Cryst. Growth Des.*, 16(4), 2225-2230, doi:10.1021/acs.cgd.6b00044.
- Nagashima, K., G. Sazaki, T. Hama, K.-i. Murata & Y. Furukawa (2018), Uptake Mechanism of Atmospheric Hydrogen Chloride Gas in Ice Crystals via Hydrochloric Acid Droplets, *Cryst. Growth Des.*, 18(7), 4117-4122, doi:10.1021/acs.cgd.8b00531.
- Nagata, Y. et al. (2019), The Surface of Ice under Equilibrium and Nonequilibrium Conditions, *Acc.*

*Chem. Res.*, *52*(4), 1006-1015, doi:10.1021/acs.accounts.8b00615.

- Negishi, K. & J.-Y. Kohno (2019), Low-Frequency Raman Scattering in Colliding Benzene Droplets, J. Phys. Chem. A, 123(42), 9158-9165, doi:10.1021/acs.jpca.9b06354.
- Nojima, Y., Y. Shioya, H. Torii & S. Yamaguchi (2020), Hydrogen order at the surface of ice Ih revealed by vibrational spectroscopy, *Chem. Commun.*, 56(33), 4563-4566, doi:10.1039/D0CC00865F.
- Nojima, Y., Y. Suzuki & S. Yamaguchi (2017), Weakly Hydrogen-Bonded Water Inside Charged Lipid Monolayer Observed with Heterodyne-Detected Vibrational Sum Frequency Generation Spectroscopy, J. Phys. Chem. C, 121(4), 2173-2180, doi:10.1021/acs.jpcc.6b09229.
- Nozière, B., I. Barnes & K.-H. Becker (1999), Product study and mechanisms of the reactions of α-pinene and of pinonaldehyde with OH radicals, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *104*(D19), 23645-23656, doi:https://doi.org/10.1029/1999JD900778.
- Orlando, J. J. & G. S. Tyndall (2012), Laboratory studies of organic peroxy radical chemistry: an overview with emphasis on recent issues of atmospheric significance, *Chem. Soc. Rev.*, 41(19), 6294-6317, doi:10.1039/c2cs35166h.
- Praske, E. et al. (2018), Atmospheric autoxidation is increasingly important in urban and suburban North America, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, 115(1), 64-69, doi:10.1073/pnas.1715540115.
- Qiao, L., A. Ge, M. Osawa & S. Ye (2013), Structure and stability studies of mixed monolayers of saturated and unsaturated phospholipids under low-level ozone, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, *15*(41), 17775-17785, doi:10.1039/C3CP52484A.
- Qiu, J., S. Ishizuka, K. Tonokura, A. J. Colussi & S. Enami (2019a), Water Dramatically Accelerates the

Decomposition of  $\alpha$ -Hydroxyalkyl-Hydroperoxides in Aerosol Particles, *J. Phys. Chem. Lett.*, 10, 5748-5755.

- Qiu, J., S. Ishizuka, K. Tonokura & S. Enami (2019b), Interfacial vs Bulk Ozonolysis of Nerolidol, *Environ. Sci. Technol.*, 53, 5750–5757, doi:10.1021/acs.est.9b00364.
- Qiu, J., Z. Liang, K. Tonokura, A. J. Colussi & S. Enami (2020), Stability of Monoterpene-Derived α-Hydroxyalkyl-Hydroperoxides in Aqueous Organic Media: Relevance to the Fate of Hydroperoxides in Aerosol Particle Phases, *Environ. Sci. Technol.*, 54(7), 3890-3899, doi:10.1021/acs.est.9b07497.
- Ramasamy, S. et al. (2021), Nitrate radical, ozone and hydroxyl radical initiated aging of limonene secondary organic aerosol, *Atmos. Environ. X*, *9*, 100102, doi:https://doi.org/10.1016/j.aeaoa.2021.100102.
- Reich, O., G. David, K. Esat & R. Signorell (2020),
  Weighing picogram aerosol droplets with an optical balance, *Commun. Phys.*, 3(1), 223, doi:10.1038/s42005-020-00496-x.
- Riva, M. et al. (2019), Increasing Isoprene Epoxydiol-to-Inorganic Sulfate Aerosol Ratio Results in Extensive Conversion of Inorganic Sulfate to Organosulfur Forms: Implications for Aerosol Physicochemical Properties, *Environ. Sci. Technol.*, 53(15), 8682-8694, doi:10.1021/acs.est.9b01019.
- Rossignol, S. et al. (2016), Atmospheric photochemistry at a fatty acid-coated air-water interface, *Science*, *353*(6300), 699-702, doi:10.1126/science.aaf3617.
- Ruehl, C. R., J. F. Davies & K. R. Wilson (2016), An interfacial mechanism for cloud droplet formation on organic aerosols, *Science*, 351(6280), 1447-1450, doi:10.1126/science.aad4889.
- Ruehl, C. R. & K. R. Wilson (2014), Surface Organic
  Mono layers Control the Hygroscopic Growth of
  Submicrometer Particles at High Relative Humidity, J.
  Phys. Chem. A, 118(22), 3952-3966,
doi:10.1021/jp502844g.

- Ruiz-Lopez, M. F., J. S. Francisco, M. T. C. Martins-Costa & J. M. Anglada (2020), Molecular reactions at aqueous interfaces, *Nat. Rev. Chem.*, 4(9), 459-475, doi:10.1038/s41570-020-0203-2.
- Saathoff, H. et al. (2009), Temperature dependence of yields of secondary organic aerosols from the ozonolysis of α-pinene and limonene, *Atmos. Chem. Phys.*, 9(5), 1551-1577, doi:10.5194/acp-9-1551-2009.
- Sakamoto, Y. & K. Tonokura (2012), Measurements of the Absorption Line Strength of Hydroperoxyl Radical in the v<sub>3</sub> Band using a Continuous Wave Quantum Cascade Laser, J. Phys. Chem. A, 116(1), 215-222, doi:10.1021/jp207477n.
- Sakamoto, Y., A. Yabushita, M. Kawasaki & S. Enami (2009), Direct Emission of I<sub>2</sub> Molecule and IO Radical from the Heterogeneous Reactions of Gaseous Ozone with Aqueous Potassium Iodide Solution, *J. Phys. Chem. A*, 113(27), 7707-7713, doi:10.1021/jp903486u.
- Sazaki, G., S. Zepeda, S. Nakatsubo, E. Yokoyama & Y. Furukawa (2010), Elementary steps at the surface of ice crystals visualized by advanced optical microscopy, *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, 107(46), 19702, doi:10.1073/pnas.1008866107.
- Seinfeld, J. H. & S. N. Pandis (2006), Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change, 2nd ed., Wiley, Hoboken, N.J.
- Sekimoto, K., D. Fukuyama & S. Inomata (2020), Accurate identification of dimers from α-pinene oxidation using high-resolution collision-induced dissociation mass spectrometry, J. Mass Spectrom., 55(6), e4508, doi:https://doi.org/10.1002/jms.4508.
- Shiraiwa, M. et al. (2017), Aerosol health effects from molecular to global scales, *Environ. Sci. Technol.*, 51(23), 13545-13567.
- Suzuki, T. & J.-Y. Kohno (2014), Simultaneous Detection of Images and Raman Spectra of Colliding Droplets:

Composition Analysis of Protrusions Emerging during Collisions of Ethanol and Water Droplets, *J. Phys. Chem. B*, *118*(21), 5781-5786, doi:10.1021/jp503285w.

- Taatjes, C. A. et al. (2019), Reaction of Perfluorooctanoic Acid with Criegee Intermediates and Implications for the Atmospheric Fate of Perfluorocarboxylic Acids, *Environ. Sci. Technol.*, 53(3), 1245-1251, doi:10.1021/acs.est.8b05073.
- Taatjes, C. A. et al. (2008), Direct Observation of the Gas-Phase Criegee Intermediate (CH2OO), J. Am. Chem. Soc., 130(36), 11883-11885, doi:10.1021/ja804165q.
- Tajiri, T. et al. (2013), A Novel Adiabatic-Expansion-Type Cloud Simulation Chamber, J. Meteor. Soc. Jpn. Ser. II, 91(5), 687-704, doi:10.2151/jmsj.2013-509.
- Takenaka, N. & H. Bandow (2007), Chemical Kinetics of Reactions in the Unfrozen Solution of Ice, J. Phys. Chem. A, 111(36), 8780-8786, doi:10.1021/jp0738356.
- 谷本浩志ら (2016), 有機エアロゾルに関する不均一 反応研究の現状と課題:大気化学と理論化学の連 携, *大気化学研究*, 34, 22-28.
- Vereecken, L., A. Novelli & D. Taraborrelli (2017), Unimolecular decay strongly limits the atmospheric impact of Criegee intermediates, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 19(47), 31599-31612, doi:10.1039/C7CP05541B.
- Wang, J. et al. (2011), Design of a new multi-phase experimental simulation chamber for atmospheric photosmog, aerosol and cloud chemistry research, *Atmos. Meas. Tech.*, 4(11), 2465-2494, doi:10.5194/amt-4-2465-2011.
- Wang, M. et al. (2020), Photo-oxidation of Aromatic Hydrocarbons Produces Low-Volatility Organic Compounds, *Environ. Sci. Technol.*, 54(13), 7911-7921, doi:10.1021/acs.est.0c02100.
- Wei, Z., Y. Li, R. G. Cooks & X. Yan (2020), Accelerated Reaction Kinetics in Microdroplets: Overview and Recent Developments, Ann. Rev. Phys. Chem., 71(1),

31-51, doi:10.1146/annurev-physchem-121319-110654.

- Xu, L. et al. (2019), Unimolecular Reactions of Peroxy Radicals Formed in the Oxidation of α-Pinene and β-Pinene by Hydroxyl Radicals, *J. Phys. Chem. A*, 123(8), 1661-1674, doi:10.1021/acs.jpca.8b11726.
- Yajima, R., Y. Sakamoto, S. Inomata & J. Hirokawa (2017), Relative Reactivity Measurements of Stabilized CH<sub>2</sub>OO, Produced by Ethene Ozonolysis, Toward Acetic Acid and Water Vapor Using Chemical Ionization Mass Spectrometry, J. Phys. Chem. A, 121(34), 6440-6449, doi:10.1021/acs.jpca.7b05065.
- Zhong, J. et al. (2019), Atmospheric Spectroscopy and Photochemistry at Environmental Water Interfaces, Ann. Rev. Phys. Chem., 70(1), 45-69, doi:10.1146/annurev-physchem-042018-052311.

原稿受領日: 2022 年 3 月 28 日 掲載受理日: 2022 年 6 月 13 日

#### 著者所属:

- 1. 国立環境研究所 地球システム領域
- 2. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所
- 3. 東京大学 先進科学研究機構

#### \* 責任著者:

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

# 5



# 陸域生態系と大気化学

**Terrestrial Ecosystem and Atmospheric Chemistry** 

持田陸宏, 伊藤昭彦, 松田和秀, 谷晃

# 陸域生態系と大気化学

# **Terrestrial Ecosystem and Atmospheric Chemistry**

持田陸宏 1\*, 伊藤昭彦 ², 松田和秀 ³, 谷晃 4

陸域生態系は,温室効果ガスである二酸化炭素(CO2)など,大気の化学・放射・微物理過程に 関わる多様な微量化学成分の供給源としての役割を有している。また一方で,大気から生態系 への物質の供給は,大気化学成分の消失過程であるのみならず,生態系やそれを含む陸域環境 に影響を及ぼす側面も持つ。これらはいずれも,大気化学成分の動態と役割に密接に関わる過 程であり,大気化学分野における主要な研究対象のひとつに位置付けられる。しかし,時空間 的に極めて多様な陸域生態系と大気化学の諸過程の関係は複雑であり,現在までその理解は限 られている。本稿では,これらの大気-陸域生態系間の相互作用に関するこれまでの研究を,大 気-陸域間の長寿命気体の交換,大気化学成分の沈着,生物起源揮発性有機化合物の放出,生 物起源有機エアロゾルの動態・性状と役割の4つの側面からレビューする。そして,十分に解 明されていない重要問題が何であるのか,また,今後どのようなアプローチの研究が望まれる かを,学問としての大気化学の視点から,そして温室効果気体を中心に社会実装に向けた取り 組みの視点から提示する。

#### 1. はじめに

陸域生態系は、温室効果をもたらす二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>)やメタン(CH<sub>4</sub>)などの長寿命気体、大気 光化学過程やエアロゾル生成に関与するイソプ レンなどの揮発性有機化合物(VOCs),氷晶核と しての役割が注目されているバイオエアロゾル など、多様な物質の供給源としての役割を担って おり、その物質の種類に応じて大気中の化学・放 射・微物理過程に様々な形で関わっている。これ らの微量成分の大気への供給の実態とメカニズ ムを時空間的に把握することは、ローカル~グロ ーバルスケールの大気過程を理解する上で重要 であるが、様々な環境下における多様な生態系か らの供給過程には、多くの不確かな点が残されて いる。

また一方で, 硝酸塩の沈着や植生による炭素固

定などは、大気成分の消失過程であるのみならず、 生態系への物質の供給過程としての側面を持つ。 これらは大気化学成分の収支に関わる過程であ ること, また, 生態系やそれを含む陸域環境に影 響を及ぼしうることから、その詳細の解明が望ま れ、さらに理解を深めるための取り組みが求めら れる。植生の光合成や呼吸を通して大気と交換が ある CO<sub>2</sub>や,植生から放出される VOCs を前駆体 とする二次有機エアロゾルは, 放射収支に関与し て気候に影響を及ぼし得ることから、近年、それ が植生に影響をもたらすフィードバック機構の 存在が新たな議論の対象として取り上げられる ようになった。しかし,現状では,気候の変化に 対して大気-陸域生態系間の相互作用がどのよう な応答をもたらすのかを,正確に把握できる知見 は得られていない。

本稿では、これらの大気-陸域間の相互作用に 関する研究について、大気-陸域間の長寿命気体 の交換、大気化学成分の沈着、VOCsの放出、生 物起源有機エアロゾルの動態・性状と役割の4つ の視点で振り返り、これまでの到達点を確認する。 そして、残された重要課題が何であるかを整理し、 今後十年において重要となる研究のアプローチ を提示する。

#### 2. 大気-陸域間の長寿命気体の交換

#### 2.1 研究の目標

大気および地表における長寿命気体,特に温室 効果ガス(CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O)の動態と交換量をマルチ スケールで,短期から長期にわたって高精度で把握 することを大きな目標とする(図 1)。それには,気候 変動や土地利用変化に伴う温室効果ガス交換の変 化メカニズムを解明し,将来の地球環境変動に伴う 陸域の温室効果ガス収支の変化を定量的に予測す る精度の向上が含まれる。これらの研究成果によって, 影響評価,適応・緩和策の立案に貢献することを目 指す。

#### 2.2 世界と日本の研究動向

パリ協定やゼロエミッション目標など気候変動問題 への社会的関心が高まり、大気中の長寿命温室効 果ガスに関する観測、モデル、インベントリ研究は世 界的に大きく進展した [International Panel on Climate Change, 2021]。特に 2009 年以降は人工衛 星(GOSAT, OCO シリーズなど)による大気中 CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> カラム平均濃度の全球観測が可能になり、陸域 についても地上・衛星による観測データ量は飛躍的 に増大した。グローバルな収支の描像を得るため、 Global Carbon Project による温室効果ガスの統合解 析が、CO<sub>2</sub>だけでなく CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>Oについても実施され [Friedlingstein et al., 2020; Saunois et al., 2020; Tian et al., 2020]、グローバルあるいは地域スケールの把 握が格段に進展した。日本の研究も、地上、航空機、



図 1 大気-陸域間の長寿命気体交換に関わる生物地球 化学的過程の概要。実際には、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O のいずれ にも工業活動や廃棄物など人為的排出源が加わるため、 さらに複雑になる。

衛星など複数のプラットフォームによる高精度の大気 観測データや,大気輸送,地上物質循環モデルによ る収支推定を提供して大きく貢献してきた。一方で, 設備の老朽化,人的リソース不足など観測継続性の 問題が顕在化するケースもあった。

2015 年からは Future Earth グローバルリサーチプ ロジェクトの 1 つである iLEAPS が実施され,欧米だ けでなく日本国内でも大気-陸域間の物質交換に関 する学際的な研究が活性化し, CO<sub>2</sub> 以外の微量ガス 交換に関する観測とモデル研究が進展した[*Ito*, 2019]。地上での地表フラックス観測(FLUXNET)に 関しては, CO<sub>2</sub>だけでなく CH4 でも渦相関法による観 測が標準的になり,多点データを用いた統合的な解 析が進展した [*Jung et al.*, 2020]。日本は,1990 年代 より大気中の温室効果ガス観測と陸域研究の連携が 実施されており,1 つの強みとなってきた。それは大 気輸送モデル(トップダウン)と地表交換モデル(ボト ムアップ)の共同研究として多くの成果を挙げてきた [*Patra et al.*, 2016; *Niwa et al.*, 2021]。

#### 2.3 収支の不確実性と残された課題

温室効果ガスの長期的なトレンドだけでなく,新型 コロナウィルス感染症の蔓延や大規模火災など,予 測困難なイベントに伴う温室効果ガス排出の変動に 注目が集まっている [Le Quéré et al., 2020]。それらを 確実に把握するためには継続的に高精度でモニタリ ングを行う体制を拡充する必要がある。

グローバルな温室効果ガス収支には、なお大きな 不確実性が残されており、予測や対策上の問題とな っている。CO2の吸収放出の地域分布や年々変動の メカニスティックな理解が不足している [Kondo et al., 2020]。特に陸域では、モデル相互比較の結果も乖 離が大きく、森林などによる CO2 吸収源の定量的評 価を困難にしている。CH4 収支の年々変動には、 2000 年代の顕著な濃度増加の鈍化やその後の急増 など、現在の科学的理解では説明できない現象が残 されている [Nisbet et al., 2019]。統合解析の結果も、 大気観測に基づくトップダウン評価と地上データを積 み上げたボトムアップ評価の間では、特に陸域の河 川・湖沼からの放出などに大きな不整合がある。

人為起源排出の基礎情報となり,大気逆解析の初 期値にも用いられる排出インベントリにも深刻な不確 実性が残されていることが示された [Saunois et al., 2020; Chandra et al., 2021]。特に排出源が混在する 都市周辺を中心に,産業等の活動量,排出係数,そ して空間的ダウンスケーリングの各段階で高精度化 を進める必要がある。森林破壊に代表される土地利 用変化は,植生や土壌を撹乱し温室効果ガス収支を 大きく変化させるが,そのメカニズムの全容は解明さ れてはおらず,年々変動や広域評価には大きな不確 実性が残されている [Kondo et al., 2020; Arneth et al., 2017]。永久凍土の融解は、現時点では大気中濃度 に影響するほどの CO2・CH4 排出源とはなっていない が,温度上昇時の排出量変化には不確実性が大き い。農地の温室効果ガス放出は、従来は簡易な排出 係数や統計モデルで推定されてきたが,より信頼性 の高い(地理データや複雑なモデルを用いる)方法 を確立する必要がある。

#### 2.4 今後求められる研究

脱炭素社会に向けて温室効果ガス収支の高精度 評価に対する社会的ニーズはさらに高まると予想される。従来の観測・モデル手法をそれぞれ高度化し て精度と分解能を高め、さらにグローバルな収支を整 合的に説明することが求められる。特に、パリ協定の グローバルストックテイクに向けた科学的データを提 供するため、各国あるいは大都市の温室効果ガス収 支をインベントリだけでなく観測やモデルに基づく科 学的手法で評価する必要がある。

陸域と海洋に関する推定を比較すると、現在のCO2 収支に関する陸域の不確実性幅は海洋の約2倍 [Friedlingstein et al., 2020], 将来の温度上昇に対す る応答の不確実性幅に至っては1ケタ大きい [Arora et al., 2020]。このような状況を解消するための不確実 性低減は最も優先度が高い課題の1 つであり, 観測 とモデルの両面で精度向上を図る必要がある。長期 観測データの蓄積により,短期的な観測では検出で きなかった陸域の温室効果ガス収支に関する特性が 明らかとなりつつある。生態系の炭素収支に強い影 響を与えてきた CO2 施肥効果に長期的な減衰効果 (順化)が生じるかどうか、将来の森林破壊・火災が 陸域の炭素収支にどの様な影響を与えるか,などが key question となりうる。また、大気中での寿命が 10 年程度と比較的短く短寿命気候強制因子(SLCF)で もある CH4 に関して, 陸域には主要な放出源が分布 しており、複数手法によるグローバルな収支評価の 高精度化が進むと考えられる。一方で,永久凍土融 解や泥炭火災などに伴う大規模 CH4 放出の可能性 でも注目される [Nisbet et al., 2019]。大気汚染物質 が陸域の温室効果ガス交換に与える影響は、未だに 定量的に把握されていない。対流圏オゾン濃度の上 昇は,植生のガス交換を介して広域的な温室効果ガ スの交換にも影響を与えている可能性があり [Sitch et al., 2007], その把握とモデル化は SLCF の排出抑 制と温暖化対策のコベネフィットの観点でも注目され る。

温室効果ガスに関する研究面では、観測衛星 (GOSAT, OCOシリーズなど)の重要性は今後ますま す高まると考えられ、それに対応した陸域の排出イン ベントリ整備、地表の物質交換モデルの開発が課題



図 2 大気-森林間交換フラックス観測タワー(FM 多摩丘 陵, 東京)。

となる。生物地球化学的フィードバックを導入した地 球システムモデルの開発も進んでおり [Kawamiya et al., 2020],陸域における炭素・窒素の動態,大気や 水域との相互作用を解明してモデルに導入していく 流れが進むと予想される。

#### 3. 大気化学成分の沈着

#### 3.1 はじめに

化学輸送モデルにおいて, 地表面への沈着過程 は,化学成分の分布や変動の予測に影響を与える。 乾性沈着過程は,湿性沈着過程に比べて未解明な 部分が多く、モデルにより算出される沈着速度の不 確実性は未だに大きい。また,硫黄や窒素などの沈 着量分布の把握は,生態系への影響を評価するうえ で極めて重要であり,特に乾性沈着推計の精緻化が 求められる。湿性沈着の測定は、ウェットオンリーサン プラーを用いて降水を捕集し,降水試料を化学分析 する方法がスタンダードであり、WMO GAW(全球), EMEP(欧州), NADP(米国), CAPMoN(カナダ), EANET (東アジア)などのモニタリングネットワーク [Fowler et al., 2020]において採用されている。これに 対し,乾性沈着の測定は,渦相関法,緩和渦集積法, 濃度勾配法など化学成分の鉛直方向の流れ(フラッ クス)を直接測定する方法があるが、対象とする成分 や場所が限定され、特殊な装置や設備を要するため、

湿性沈着モニタリングのような広域展開は難しい。そ こで,乾性沈着量の推計にはモデルを利用し,化学 成分の濃度とその成分の沈着速度の積から求める方 法が広く適用されている。沈着速度モデルのフレー ムは, 1970年代~1990年代にかけて開発されたが, 今世紀に入ってから,各地域で,新しい技術による 様々な化学成分,沈着表面に対するフラックス観測 が行われ(例:図 2),沈着速度モデルの検証 [Matsuda et al., 2006; Matsuda et al., 2015]やモデル 間比較[Flechard et al., 2011]などが行われてきた。さ らには, 化学輸送モデル間の窒素や硫黄沈着量の 比較も全球スケール[Dentener et al., 2006] や東アジ アスケール[Itahashi et al., 2020]で行われている。そ の結果,沈着過程の不確実性が特に大きい成分,表 面などが明らかになり、これらの沈着・交換過程のさ らなる理解が求められている。

#### 3.2 沈着・交換過程の課題

エアロゾルの沈着速度は粒径に大きく依存し, ブラ ウン拡散と重力沈降の関係で、サブミクロン領域で極 小となる。一方で,植生面での沈着速度の理論値と 観測値との不一致が指摘されており、その不一致は、 特にサブミクロン領域で,森林のような空気力学的粗 度の高い植生面において顕著である[Pryor et al., 2008; Petroff et al., 2008]。この要因として, フラックス 観測誤差,化学的性質の影響,モデルの仮定の誤り, 重要な沈着過程の無視などが挙げられているが、こ の不一致は現在も残っており,明確に解決されてい ない[Saylor et al., 2019]。沈着に影響を及ぼす化学 的性質として、サブミクロン領域に存在する NH4NO3 粒子などの半揮発性が挙げられる[Nemitz, 2015]。日 射の当たるキャノピー表面は気温よりも温度が高くな るため,半揮発性粒子の一部は沈着面近傍で揮発 してガス化する。NH4NO3の場合、ガス化した HNO3 や NH3 は沈着速度が大きく, 粒子の状態より速やか に沈着・除去されると考えられる。このような現象は、 各地で観測されているが[Nemitz, 2015; Nakahara et

*al.*, 2019; *Katata et al.*, 2020], 現在のモデルでは考 慮されておらず, 窒素酸化物の大気成分濃度の計 算精度に影響を与えている可能性がある。

植生表面におけるフラックス観測では、しばしば上 向きの放出現象がみられる。上記の NH4NO3 の揮発 に伴い地表面付近で発生した HNO3 が放出される現 象も確認されている[Nemitz, 2015; Xu et al., 2021]。 粒 径別個数測定によるエアロゾルの放出も報告されて おり,植生キャノピー内の粒子生成による可能性が 示唆されている[Saylor et al., 2019]。モデルでは,上 記のようなキャノピー内の物理的,化学的過程が考 慮されていないため、これらの放出現象は再現でき ない。一方, NH<sub>3</sub>は, 土壌や植物の気孔などから放 出されることが分かっており,双方向交換モデルが開 発されている[Sutton et al., 1998]。NH3 双方向交換モ デルにおいて重要なパラメータである放出ポテンシャ ルについて研究がなされているが、その値は広い範 囲にばらついており[Massad et al., 2010], 広範囲で の沈着量予測に適用できる段階にあるとは言えない。

上記のように窒素成分の沈着過程は複雑であり, さらに沈着した窒素成分は陸域生態系へ影響を与え る。硝酸イオンに関し,三酸素同位体異常(Δ<sup>17</sup>O)を 用いて大気沈着と陸域生態系の相互作用を定量化 する手法が開発されており[*Tsunogai et al.*, 2010],水 圏生態系との相互作用に対しても応用されている [*Tsunogai et al.*, 2011]。このようなアプローチは、陸域 生態系内での大気沈着由来の物質の動態を理解す るうえで極めて有益である。

#### 3.3 越境大気汚染の動向

ヨーロッパでは、長距離越境大気汚染条約(1983 年発効)のもと、汚染物質の削減対策を進めてきた。 削減の規制は、酸性雨問題に対する SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> から 始まり、次いで対流圏オゾンに対する VOCs へと展開 された。当該条約に基づく現在の規制である「酸性 化・富栄養化・地上レベルオゾン低減議定書(ヨーテ ボリ議定書)」では、これらの成分の他、PM<sub>2.5</sub> と NH<sub>3</sub> が対象になっている[Fowler et al., 2020]。東アジアに おいては、SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>の中国の排出量が急増してい た 1990 年代に酸性雨への関心が集まり, 2001 年に 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)が 本格稼働を開始した。2000年代には対流圏オゾンの 越境汚染の問題が話題になるようになり、2013年1 月に出現した北京の PM2.5 の重度汚染以来, 越境汚 染は広く知れ渡ることとなった。注目される成分の推 移は、NH3を除きヨーロッパの推移と一致している。 2014 年から大気汚染に関する日中韓三カ国政策対 話が開始され,その後,中国は大気汚染対策を進め, SO2の排出量を大幅に削減しNOxもそれに続いてい る。これに伴い,近年,日本の広域において硫黄酸 化物の沈着量は減少しており,一部地域で窒素酸化 物の沈着量も減少している[Yamaga et al., 2021]。一 方,森林や農作物などの植物へ悪影響を与える対流 圏オゾンは、未だに減少する傾向は見られていない。 対流圏オゾンの植物への沈着は、将来の気候変動 における炭素吸収や食料生産に関係するものであり, これらのリスク評価のために植物影響の過程の精緻 な理解が望まれる[Izuta et al., 2017; Emberson et al., 2018]。さらに、NH3の対策は東アジアではほとんどな されておらず,その排出量は増加傾向にある [Kurokawa & Ohara, 2020]。NH3 は主に農業生産活 動から大気へ放出され、PM2.5の成分となるだけでな く,陸域へ過剰に沈着することにより生態系の富栄養 化を引き起こし, 生物多様性の損失の要因となる [Sutton et al., 2020]。日本における NH3 の排出量の 60%以上は畜産によるものであり、前述した双方向交 換過程の理解とともに, 畜産からの排出量推計の精 緻化も求められる[Fukui et al., 2014]。

越境大気汚染対策において、化学輸送モデルに よる輸送・沈着シミュレーションが有益であり、ヨーロッ パの上記条約でも対策を検討するためのツールとし て活用されている。東アジアにおける現在の問題で あるPM2.5,将来的に問題となることが予想されるNH3 について化学輸送モデルの精緻化は必須であり、沈 着・交換過程の研究において,上記したエアロゾル および NH<sub>3</sub>の課題を克服していく必要がある。

#### 3.4 今後の取り組み

沈着・交換過程の理解を深め,現象をモデル化し, 化学輸送モデルの予測精度向上へとつなげるため には、戦略的な観測による高精度のデータセットが 必要である。フラックス観測でターゲットとすべきは, 植生,特に森林であり,二酸化炭素等のフラックスモ ニタリングを行っている Asia-Flux などと連携した戦略 的な観測が望まれる。同時に、フラックス測定の精度 向上も望まれる。これまでに述べた大気化学成分の 高精度フラックス測定を実現するために、例えば最も 直接的にフラックスを測定する渦相関法では, 高時 間分解能(10 Hz 程度)での濃度計測が求められるた め、この要求を満たすセンサーの開発が望まれる。 一方,フィルターや吸着剤などに捕集可能なガス・粒 子成分のフラックス測定には,緩和渦集積法 [Matsuda et al., 2015; Xu et al., 2021] が適用可能であ り, 現時点で有益な手法と考えられる。化学輸送モデ ルによる東アジアスケールの予測の検証においては, EANET のデータ(ガス, 粒子成分, 降水成分等)が 活用できるが,新たな項目が必要な場合は,EANET との共同研究として,一部のサイトに測定器を導入し, 特定の目的を持ったネットワーク内ネットワークを構 築することも一案である。また、「アジアにおける大気 質モデル・化学気候モデル間相互比較研究(MICS-Asia)」において、当該地域におけるモデル間比較が 実施されている[Itahashi et al., 2020]。沈着量計算に 起因するモデル間の差も明らかになってきており、沈 着・交換過程の研究者との連携を強化することにより、 差を生み出す要因を見出すことが期待される。このよ うに、東アジアの研究者らと連携している活動を基盤 とし、モデルと各過程の研究者の協働により、大気質 や気候変動のモデル予測精度を向上させていくこと が望まれる。

#### 4. 生物起源揮発性有機化合物の放出

#### 4.1 究極的な研究目標

植物が生産し放出するテルペン類に代表される生 物起源 VOC の放出機構を,分子レベルから細胞レ ベル,組織レベル,個体レベル,群落レベルで明ら かにする。植物個体や植物群落から大気への生物 起源揮発性有機化合物(BVOC)の放出に影響する 環境要因を,植物生理生態学的手法を用いて明ら かにし,放出推定モデルを精緻化する。BVOC が関 与する未知の反応を明らかにし,都市を含む陸域生 態系やその土地改変が,大気質や気候に及ぼす影 響を明らかにする。

#### 4.2 世界的な研究の動向や日本の研究の強み

1999 年に開発された陽子移動反応質量分析計 (PTR-MS)の性能向上など測定技術の進歩によって, 個体レベル, 群落レベルでの BVOC 放出機構や, そ れらの酸化反応物の植物による再吸収など双方向交 換の知見が集積しつつある(図 3)[Niinemets et al., 2014]。日本において開発当初から PTR-MS を用い た研究が活発に行われ, その分野を先導している [Tani et al., 2010]。

情報伝達物質としてテルペン類を対象に,植物間 および植物-動物間コミュニケーションの分子レベル



図3 森林生態系-大気間の VOC 交換の模式図(Tani & Mochizuki [2021]の図を改変)。交換には大気中での化学反応と植物体内での代謝反応が介在し、物質が形を変えながら双方向の交換が起こっている。

および生態学レベルでの研究の進展が見られ,外的 刺激に応答するテルペン類放出機構の解明が進ん でいる。日本において先導的な成果が継続して発表 されている[e.g., Yazaki et al., 2017; Masui et al., 2020]。

また、土地利用変化は温室効果気体だけでなく、 BVOC のフラックスにも変化をもたらし、周辺の大気 質や気候に影響を及ぼす可能性があるため、森林の 農地転換による生態系変化に伴う BVOC 放出特性 (種類、強度)の変化の解明とその大気質や気候へ の影響にアプローチする研究が、東南アジアなどを 中心に行われてきた[Hewitt et al., 2009]。また、都市 の緑地などこれまで無視されてきた BVOC 放出源と それらが都市の大気質に及ぼす影響の検討も行わ れてきた[Chang et al., 2012]。日本においては、モデ ルで精確に説明できない光化学オキシダントの動態 を明らかにするため、詳細な植栽データやバイオマ ス推定法に基づき BVOC 放出量の推定が近年行わ れている[Kokubu et al., 2020]。

#### 4.3 残存する重要課題

BVOC の放出量や濃度は温室効果気体の植物-大気間交換量や濃度と比べ低いため,実測する場 合,精確な測定のためには高額機器を必要とする。 そのため,若手研究者が容易に取り組める分野でな く,日本における研究者人口は少ない。国の研究機 関に BVOC を専門に扱う部門がなく,国主導の研究 が進みにくい。

全球レベルでの放出量推定は重要であるが,衛星 観測データ(OMI/TROPOMI 等の HCHO カラム観測 など)を用いて放出量を推定する手法の進展が,温 室効果気体と比べて遅い。また,森林生態系にて BVOC フラックスの経年データの蓄積が,モデル精 度向上のため必須であるが,現状,高額装置の入手 が困難であったり,継続測定を自動化できず,手間と 時間がかかり,長く取り組める研究テーマに設定しづ らいなどの問題がある。

反応性が高い BVOC が介在する大気化学反応に

関しては、オゾン生成等による大気質の悪化や BVOC 由来の二次有機エアロゾルの地球温暖化に 対する影響(緩和効果など)を総合的に評価できて おらず、それらの影響の地域依存性も不明である。

#### 4.4 今後 10 年間に取り組むべき課題

今後10年間に取り組むべき課題として,さらなる装置開発があげられる。BVOC の新規測定・分析手法の開発と,分析装置の低価格化による,新規研究者の参入環境の整備が求められる。精度が従来法と同等あるいはそれ以上で,BVOC をリアルタイムあるいは短時間で分析できる手法の開発が望まれる。

分子生物学,植物生理生態学,大気化学など分野を横断する研究組織の編成とプロジェクトの立ち上 げ,若手研究者の育成と海外研究者の積極的な受 け入れを行い,研究分野としての活性化をはかる必 要がある。アジアとの連携も重要であり,AsiaFlux, iLEAPs 等のネットワークを活用し,連携やデータ共 有を進める必要がある。

BVOC インベントリはまだ大雑把なものしか公開さ れておらず,精緻化へ向けた植生分類データの整備 や樹種ごとの放出特性データの地道な取得が必要 である。衛星観測法やプロセスモデル開発の進展と, それらの検証に必要な継続的な地上観測データ(森 林での BVOC フラックス)の取得が重要である。

# 5. 生物起源有機エアロゾルの動態・性状と役 割

#### 5.1 研究目標

陸域植生を起源に持つエアロゾルとして,植生から直接放出されるバイオエアロゾル等の一次エアロゾルと,BVOCを前駆体として生成する二次エアロゾルである biogenic secondary organic aerosol(BSOA)がある。これらの生物起源エアロゾルに関わる究極的な研究目標のひとつは,大気エアロゾルの収支や環境影響に対する陸域生態系の寄与を定量的に把握することにある。この実現のため,様々な大気条件下に

おけるBSOAの生成機構と物理化学特性を明らかに し、大気モデルにおいてその時空間分布や放射・雲 に対する影響を正確に表現可能とすることが求めら れる。また、主要なバイオエアロゾルについてもその 供給量や性状を把握した上、その動態予測を可能に することが必要となる。また、その先の目標として、 BSOAやバイオエアロゾルの放射・気候影響を通した 陸域生態系へのフィードバックを定量的に理解し、温 暖化や土地利用変化に伴う植生の変化が及ぼす影 響など、大気エアロゾルの収支に対する陸域生態系 の影響をエアロゾルの気候と植生の関係から理解す ることが挙げられる。

#### 5.2 近年の国内外の研究動向

BSOA 生成の理解に関わる重要な進展として,自 動酸化により高次に酸化された extremely lowvolatility organic compounds (ELVOCs)の生成に関 する発見があった[Ehn et al., 2014]。また, CERN の CLOUD 実験において, highly oxygenated molecules (HOMs)が、核生成後の粒子の初期成長に寄与して いること[Tröstl et al., 2016], また, 硫酸による汚染の 低い陸域環境下においては、イオン誘発核生成によ りHOMsが核生成をもたらす可能性があることが指摘 された[Kirkby et al., 2016]。これらはいずれも, 陸域 植生から放出される代表的な BVOC であるα-pinene のオゾン酸化生成物を対象として発見されており,陸 域生態系がこれらの高次酸化有機物の生成に寄与 し,核生成後の微小な新粒子の生成成長に寄与して いる可能性が示された。また、大気有機エアロゾルの 質量濃度に対するBSOA 生成の寄与に関して, 過去 には生成への寄与がないと考えられていたイソプレ ンを前駆物質とするエアロゾル生成のメカニズムにつ いて理解が進んだ[e.g., Lin et al., 2013]。人為起源物 質である SO2, NOx が BVOC からの SOA 生成を促 進する働きも明らかになり、人間活動と生物圏の相互 作用の証拠も得られている[Xu et al., 2012]。

Kulmala et al. [2004]は、CO2の濃度上昇が温度・総

ー次生産量(GPP)の上昇をもたらし、BVOC・BSOA の増加により CCN, 雲粒数濃度の増加により冷却を もたらす負のフィードバックの機構について指摘して いる(図 4 の右部分)。近年には、放射における散乱 の増加による GPP の上昇をもたらす正のフィードバッ クがある可能性も指摘した[Kulmala et al., 2014]。陸 域生態系を含む大気-陸域のシステムにおける BSOA の役割が取り上げられ、議論が進みつつある (図 4)[Sporre et al., 2019]。

一方,バイオエアロゾルに関しては,有機トレーサ 一の分析に基づく解析が進んだほか,その場測定法 の開発[Toprak & Schnaiter, 2013]も行われた。バイオ エアロゾルは,氷晶核としての働きを持つことが指摘 されており[Kanji et al., 2017],室内実験に基づくその 氷晶核能や[Pummer et al., 2012],大気モデル計算 に基づく氷晶形成に対する寄与の検討も行われてい る[Hoose et al., 2010; Sesartic et al., 2012]。

陸域植生起源の有機エアロゾルに関する国内の研究は大規模なものではないが,分野の主要学術誌への掲載も含め,BSOA に関わる室内実験・野外観測において貢献がなされている[e.g., Sato et al., 2018; Deng et al., 2019; Xu et al., 2020]。BSOA 成分も対象となる有機エアロゾルの分子組成解析は,日本が強みを持つ取り組みとして挙げることができる[Zhu et al., 2016; Xu et al., 2020]。



図 4 BSOA の生成を介した負のフィードバック。この機構の影響の程度が論じられている。

#### 5.3 残存する課題

BSOA に関して、個数・質量ベースでの生成量と特 性の把握が課題として残されている。欧州北方林を はじめ、日本の森林域を含めて新粒子生成の現象が 観察されている一方で,森林域における新粒子生成 現象の有無を支配する要因については,気象的な 因子も含めて十分に解明されたとは言えない。エアロ ゾルの間接効果に基づく放射影響の理解には, CCN 数濃度の規程要因を理解することが重要であり、 新粒子生成が CCN 数濃度に及ぼす影響を明らかに することが望まれる。CCNの生成に繋がる、新粒子の 生成やそれに引き続く成長は,成長の初期段階では HOM が、それ以降の成長段階ではより多様な BSOA が寄与していると考えられ、それらを説明する ための分子レベルの反応機構,気相の条件に応じた エアロゾル収率・組成のさらなる理解が課題として残 されている。バイオエアロゾルに関しては,これまでの 取り組みが分子トレーサー分析や蛍光測定といった 間接的な検出に頼っている部分も大きく, 種類や存 在量を含めて、その動態は十分に把握できていない。 このような状況のもと、BSOA やバイオエアロゾルの 分布や性状を大気モデルにおいて適切に表現する ことも重要な課題として残されている。バイオエアロゾ ルの氷晶核としての役割については、大気モデル計 算でその寄与の小ささが指摘されている例があるが [Hoose et al., 2010], 限られた知見に基づく評価とい え, 更なる検討が求められる。

BSOA に関する重要なギャップを埋めるためには, それが重要な役割を担いうる森林におけるエアロゾ ルを中心に,環境の異なる多地点における動態把握 が望まれる[Kulmala, 2018]。しかし,世界的に見ても BSOA の研究に適した地上観測サイトは十分に整備 されているとは言い難く,BSOA に関わる研究は,フ ィンランドの北方林など,限られた地点の大気観測に 依存している実態がある。日本国内も含めて,エアロ ゾル観測において観測サイトなどの研究リソースが有 効活用されているとは言い難い。また,BSOA に関す る課題の一つに、他の起源のエアロゾルとの区別が 困難であり、BSOA 生成量や分布の観測データの取 得が困難な点が挙げられる。

#### 5.4 今後10年で取り組むべき研究

BSOA に関しては、生成過程の理解を深化させるこ とで生成量・特性を説明することを可能にすること、ま た、BSOA の生成が気候過程にもたらす影響を量的 に把握することで植生に対するフィードバック機構の 有無・程度を明らかにすることが望まれる。バイオエ アロゾルに関しては、そもそもその実態がよく理解さ れておらず、従来の測定手法に基づく観測研究に加 えて、新しい手法の開発とそれを用いる観測研究の 実現が望まれる。そして、氷晶核としての働きを通し た気候影響の有無や程度について知見を深めること が求められる。

検討するべきより具体的な作業仮説としては,森林 域等における新粒子生成現象に対して BSOA 成分 が大きく寄与している可能性が挙げられる。これを確 かめるためには,HOM の同定と生成経路・生成量の 理解,個数粒子濃度を扱う大気モデルにおける適切 な表現等を目指す必要がある。また,BSOA 生成が エアロゾル質量濃度や CCN 数濃度に及ぼす影響を 理解するためには,BSOAを検出・定量する信頼でき る手法を確立することが重要であり,エアロゾル質量 分析など有機エアロゾルの種別の分離が可能な手 法を用いて BSOA の寄与を把握する方法[Hu et al., 2015]の更なる開発が望まれる。

また,バイオエアロゾルが氷晶核として重要である 可能性も今後 10 年の重要な作業仮説となる。バイオ エアロゾルの種別ごとの検出・定量とその氷晶核能 の測定を進め,また,バイオエアロゾルを大気モデル で適切に扱うために信頼できる放出インベントリの作 成することが重要な課題として挙げられる。

前項で指摘したように、バイオエアロゾル・BSOAの 観測データを参照しつつ、BSOAの生成量を適切に 表現できる全球・領域モデルを開発することも必要で ある。人工衛星・航空機・地上からのエアロゾルのリ モートセンシングは、BSOA・バイオエアロゾルの選択 的検出に課題があるが、全球・領域モデルによる解 析と組み合わせることで、それらの動態把握にも役立 つことが期待される。森林キャノピー内外におけるバ イオエアロゾル・BSOA の動態を把握するため、森林 の微気象場や放射伝達を扱うエアロゾルモデルの開 発や、大気観測に基づくその検証も望まれる。

また,陸域植生-エアロゾル-気候間のフィードバッ クに関して,気候の安定化/不安定化に無視できな い影響をもたらしている可能性があるととらえ,これら のフィードバックループを対象とするモデル研究,ま た,季節変動・年々変動を代替としてこれらのフィー ドバックに関わる過程の感度に関する観測研究を推 進することが望まれる。BSOAだけでなくバイオエアロ ゾルも対象に含め,温暖化や土地利用変化が,これ らの生成・放出を介してどのような環境影響をもたら すのかを明らかにする必要がある。これを実現するた めには,陸域生態研究と大気化学研究の,今まで以 上に深い連携に基づく観測・モデル研究の取り組み が必要だと考えられる。

## 6. 地球表層システム・人間社会に関わる統合 的理解

本稿で取り上げた大気成分の動態は、大気中の反応過程や陸域生態系の応答、さらには人為的な影響を通して、相互に影響を及ぼしていることが考えられる。今後10年においては、各節で取り上げた課題への取り組みを進めつつ、地球表層システムの物質循環において重要な役割を担うひとつのサブシステムとして大気・陸域生態系を捉える研究、さらには、人間活動や海洋を含む地球表層システムの統合的理解に向けたモデル開発や観測研究の推進が望まれる。こうした取り組みにより、CO2、GPP、BVOC、BSOAといった分野をまたがる要素間の相互作用(窒素沈着によるGPP促進とCO2固定など)を網羅的に把握し、未発見の過程の解明や物質収支の定

量性の向上につながることが期待される。また,対流 圏オゾン等の大気沈着がもたらす生態系影響とその 大気へのフィードバックなどの課題を扱うことが可能と なる。このような地球システムを対象とする研究の実 現のためには,大気・陸域生態系の双方に関わる物 質循環・気候影響を対象とする観測・モデル研究の 連携を今以上に強化し,地球表層システムを扱うより 広い分野にまたがる議論を深めることが求められる。

また、大気・陸域生態系の物質循環とその変化が 人間社会に与える影響について、今後さらに深く知 る必要がある。脱炭素社会に向けた温室効果ガス収 支の高精度評価や、大気汚染物質の越境汚染と沈 着の評価は、大気化学の社会実装の取り組みとして、 その重要性が一層高まることが考えられる。一方で、 BVOC や BSOA、バイオエアロゾルの環境影響につ いては、学術的知見が不足しており、社会実装に結 びつく取り組みは乏しい。陸域生態系が関わる全有 機物の動態について、人間活動の影響を含めて定 量予測性を高め、知見の水準を高めることが望まれ る。地球表層システムの統合的理解を目指す大気・ 陸域生態系研究は、人間社会に与える影響の理解 を BVOC・BSOA 等まで拡げ、社会実装に至る新た な問題提起につながる可能性を有している。

### 7. 陸域生態系・大気化学と関係する研究プロ ジェクト等

陸域生態系と大気化学の関わりを扱う研究に関 連して,国内外において多くの取り組みが行われ ている。代表的な例をここに挙げる。

- 国際: International Global Atmospheric Chemistry (IGAC: Future Earth の Global Research Project の1つであり、大気化学の国際的連携を主導して いる。)
- 国際:Global Carbon Project (GCP: Future Earth の Global Research Project の1つであり、温室効 果ガスに関する統合解析結果を定期的に公表し ている。IPCC報告書にも貢献している。)

- 国際: integrated Land Ecosystem Atmosphere Processes Study (iLEAPS: Future Earth の Global Research Project の1つであり、大気-陸域間の微 量ガス交換と相互作用に注目。)
- 国際:FLUXNET(渦相関法など微気象学的方法 によるフラックス観測ネットワーク。地域ネットワー クとして AsiaFlux, JapanFlux もある。)
- 国際: International Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution (iCACGP:国際 気象学・大気科学協会(IAMAS)傘下の委員会 であり、IGAC と共同で大気化学の国際会議を主 催。)
- 欧州: Copernicus (EU による地球観測プログラム であり、衛星による温室効果ガス観測もその中に 含まれる。欧州には ICOS, VERIFY, CoCO2 など 多数の課題が進行している。)
- 米国:North American Carbon Program (NACP: NASA, DOE, NSF などが共催する、北アメリカの 炭素収支を観測やモデルによって評価するため の横断プログラム。)
- 日本:環境研究総合推進費 SII-8 プロジェクト(大気・海洋・陸域の統合的研究によって温室効果ガス収支をマルチスケールで把握する体制を構築する。)

#### 表1 陸域生態系と大気化学の関係を扱う研究の現況と将来展望のまとめ

究極のゴールは何か。	<ul> <li>・長寿命気体,特に温室効果ガスの動態・交換量をマルチスケールで短期〜長期にわたり高精度に把握する。交換の変化のメカニズムを解明し,地球環境変動に伴う収支を定量的に予測することで影響評価,適応・緩和策の立案に貢献する。</li> <li>・大気物質の沈着・交換プロセスの理解を深め,現象をモデル化し,化学輸送モデルの予測精度向上へと繋げる。</li> <li>・BVOCの放出機構やそれに及ぼす要因を,分子・細胞・組織・個体・群落の各レベルで明らかにし,BVOCが介在する大気質や気候への影響を解明する。</li> <li>・大気エアロゾルの収支に対する陸域生態系の影響を定量的に把握し,その将来予測を可能とする。また,これをエアロゾルの気候影響や気候と植生の関係から理解する。</li> </ul>
この 10 年での世界的な 動向や日本での研究の 強み	<ul> <li>・地上・衛星による観測データ量の飛躍的な増大や温室効果ガスの統合解析の 実施。日本は高精度の大気観測データや、大気輸送・地上物質循環モデルに よる収支推定で貢献。iLEAPS が実施され、国内でも大気-陸域間の物質交換 に関する学際的な研究が活性化した。</li> <li>・今世紀に入り、新技術による様々な化学成分・沈着表面に対するフラックス観 測が行われ、モデルの検証・比較が行われた。沈着速度の不確実性が大きい 成分・表面などが明らかになった。</li> <li>・植物間コミュニケーション、放出の環境応答等の分子〜生態学レベルの研究 や、リアルタイム測定装置の開発・普及が進展。日本で土地改変・都市緑地に 関する BVOC 研究が進展した。</li> <li>・自動酸化による高次に酸化された有機分子(HOMs)の生成など、生物起源二 次有機エアロゾル(BSOA)の生成機構の理解が向上。分子トレーサー分析や 蛍光測定に基づくバイオエアロゾル研究に進展。日本では BSOA に関わる室 内実験・野外観測での貢献。</li> </ul>

表1 (続き)

現在の重要なギャップ	・温室効果ガスに関して、モデル相互比較の結果に乖離が大きい。排出インベ
	ントリにも深刻な不確実性。予測困難なイベントに伴う変動を把握するための
	モニタリング体制の拡充が必要。
	・沈着速度の理論・観測値との不一致,上向きの放出現象を再現できない点,
	越境大気汚染対策のための輸送・沈着シミュレーションの精緻化への貢献。
	・BVOC の放出量・濃度の測定や,それらの推定の手段となる衛星観測手法の
	進展,安価な分析手法の開発が必要。測定装置が高価であり,若手研究者
	が容易に取り組める分野でない。
	・BSOA の生成量・特性の把握と大気モデルによる表現に課題。バイオエアロ
	ゾルの測定手法が十分に確立されていない。BSOA 観測に利用できるリソー
	スが活用されていない。
	・大気・陸域生態系の物質循環とその変化が人間社会に与える影響を理解す
	る上で,BVOC やエアロゾルに関する学術的知見が不足しており,それらの
	知見を社会実装に結びつける取り組みが乏しい。
それらを踏まえ, 今後 10	・CO2 施肥効果の長期的な減衰の有無,将来の森林破壊・火災の炭素収支へ
年の研究をドライブする	の影響,大気汚染物質が温室効果ガス交換に与える影響。観測・モデル手法
key question or 作業仮説	を高度化し,全球的な収支の整合的な説明が求められる。パリ協定のグロー
	バル・ストックテイクに向けた科学的データ提供のための取り組みが必要。
	・Asia-Flux などと連携した,特に森林をターゲットとするフラックス観測に基づく
	戦略的な観測による高精度データセットの取得が,プロセスの理解の深化と
	モデル予測精度の向上をもたらす。
	・BVOC の新規測定・分析手法の開発と分析装置の低価格化。大気化学・生
	態学・植物生理生態学など分野横断組織の編成とプロジェクトの立ち上げに
	よる新規研究者の参入環境の整備。
	・BSOA 生成プロセスの理解を深化させ生成量・特性を説明する。BSOA・バイ
	オエアロゾルの生成が気候プロセスもたらす影響を量的に把握し, 植生に対
	するフィードバック機構の有無・程度を明らかにする。
	・分野間(例えば CO <sub>2</sub> , GPP, BVOC, BSOA)にまたがる相互作用(例えば窒素
	沈着による GPP 促進と CO2 固定)を網羅的に把握することで,未発見の過程
	の解明や物質収支の定量性の向上につながる。
	・陸域生態系が関わる全有機物の動態について、人間活動の影響を含めて定
	量予測性を高める。
	・地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究を進め、ま
	た、それに基づき同テーマに関する社会実装を推進する。
主な連携相手	IGAC, GCP, iLEAPS, FLUXNET, iCACGP など。

- 業の創出:農地の温室効果ガス排出を大幅に削 減するための研究開発,農研機構など。)
- 日本:ムーンショット目標 5(持続的な食料供給産 ・ 日本:科学研究費補助金基盤研究(S)「熱帯泥炭 林のオイルパーム農園への転換による生態系機 能の変化と大気環境への影響」(代表:平野高司)

日本:科学研究費補助金学術変革 A「デジタルバイオスフェア:地球環境を守るための統合生物圏科学」(生物圏機能を活用した大気 CO2 固定など地球環境保全の対策を提示する。)

#### 8. おわりに

本稿では、陸域生態系と大気の相互作用を対象 とし大気化学過程が関わる研究について,大気-陸 域間の長寿命気体の交換,大気化学成分の沈着, BVOCsの放出,生物起源一次・二次有機エアロゾ ルの動態・性状と役割の4つの視点でこれまでの 取り組みの課題点を整理した。そして、今後10年 において取り組むべき研究の方針について論じ た。また,各節で取り上げた内容にまたがる今後 の取り組みについても指摘した。これらの内容を 表1にまとめる。本稿で論じた内容は、陸域生態 系と大気化学にまつわる重要課題を全て網羅し ているとは限らず、読者によっては取り上げるべ き重要課題がほかにもあると思われるかもしれ ない。このようなご指摘も含め、本稿で取り上げ た課題が、大気化学コミュニティ内における更な る議論のきっかけとなることを期待したい。また, 陸域生態系を対象とする研究分野と大気化学分 野の連携は、当該テーマの理解を大きく深める上 で欠かせず,新しい連携の模索やこれまでの連携 の更なる展開を行う上において、本稿が議論のた たき台となれば幸いである。

#### 引用文献

- Arneth, A., et al. (2017), Historical carbon dioxide emissions caused by land-use changes are possibly larger than assumed, *Nature Geosci.*, 10, 79–84, doi.org/10.1038/ngeo2882.
- Arora, V. K., et al. (2020), Carbon–concentration and carbon– climate feedbacks in CMIP6 models and their comparison to CMIP5 models, *Biogeosciences*, 17, 4173–4222, doi:10.5194/bg-17-4173-2020.
- Chang J. et al. (2012), An inventory of biogenic volatile organic compounds for a subtropical urban-rural complex, *Atmos. Environ.*, 56, 115–123, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.03.053.
- Chandra, N., et al. (2021), Emissions form the oil and gas sectors, coal mining and ruminant farming drive methane growth over the past three decades, *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 99, 309– 337, doi:10.2151/jmsj.2021-015.
- Deng. Y. et al. (2019), Diurnal variation and size dependence of the hygroscopicity of organic aerosol at a forest site in Wakayama, Japan: their relationship to CCN concentrations, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 5889–5903, doi:10.5194/acp-19-5889-2019.
- Dentener, F. et al. (2006), Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation, *Global Biogeochem. Cycles*, 20, GB4003, doi:10.1029/2005GB002672.
- Emberson, L. D. et al. (2018), Ozone effects on crops and consideration in crop models, *Eur. J. Agron.*, 100, 19–34, doi:10.1016/j.eja.2018.06.002.
- Fowler, D. et al. (2020), A chronology of global air quality, *Phil. Trans. R. Soc. A.*, 378, 20190314.
   doi:10.1098/rsta.2019.0314.
- Flechard, C. R. et al. (2011), Dry deposition of reactive nitrogen to European ecosystems: a comparison of inferential models across the NitroEurope network, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2703–2728, doi.org/10.5194/acp-11-2703-2011.
- Friedlingstein, P., et al. (2020), Global carbon budget 2020,

Earth Syst. Sci. Data, 12, 3269–3340, doi:10.5194/essd-12-3269-2020.

- Fukui, T., K. Kokuryo, T. Baba and A. Kannari (2014), Updating EAGrid2000-Japan emissions inventory based on the recent emission trends, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, 49, 117-125, doi.org/10.11298/taiki.49.117 (in Japanese).
- Hoose, C., J. E. Kristjánsson & S. M. Burrows (2010), How important is biological ice nucleation in clouds on a global scale?, 5, 024009, doi:10.1088/1748-9326/5/2/024009.
- Hu, W. W. et al. (2015), Characterization of a real-time tracer for isoprene epoxydiols-derived secondary organic aerosol (IEPOX-SOA) from aerosol mass spectrometer measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11807–11833, doi:10.5194/acp-15-11807-2015.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (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*, Masson-Delmotte, V. et al. (Eds.), Cambridge University Press.
- Itahashi, S. et al. (2020), MICS-Asia III: overview of model intercomparison and evaluation of acid deposition over Asia, Atmos. Chem. Phys., 20, 2667–2693, doi:10.5194/acp-20-2667-2020.
- Ito, A. (2019), Disequilibrium of terrestrial ecosystem CO<sub>2</sub> budget caused by disturbance-induced emissions and non-CO<sub>2</sub> carbon export flows: a global model assessment, *Earth Syst. Dynam.*, 10, 685–709, doi:10.5194/esd-10-685-2019.
- Izuta, T. (Ed.) (2017), Air Pollution Impacts on Plants in East Asia, Springer Tokyo, doi:10.1007/978-4-431-56438-6.
- Jung, M., et al. (2020), Scaling carbon fluxes from eddy covariance sites to globe: synthesis and evaluation of the FLUXCOM approach, *Biogeosciences*, 17, 1343–1365, doi:10.5194/bg-17-1343-2020.
- Kanji, Z. A. (2017), Overview of ice nucleating particles, *Meteorol. Monogr.*, 58, 1.1–1.33 doi: 10.1175/AMSMONOGRAPHS-D-16-0006.1.

- Katata, G., K. Matsuda, A. Sorimachi, M. Kajino & K. Takagi (2020), Effects of aerosol dynamics and gas-particle conversion on dry deposition of inorganic reactive nitrogen in a temperate forest. *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 4933–4949. doi:10.5194/acp-20-4933-2020.
- Kawamiya, M., T. Hajima, K. Tachiiri, S. Watanabe & T. Yokohata (2020), Two decades of Earth system modeling with an emphasis on Model for Interdisciplinary Research on Climate (MIROC), *Prog. Earth Planet. Sci.*, 7, 64, doi:10.1186/s40645-020-00369-5.
- Kirkby, J. et al. (2016), Ion-induced nucleation of pure biogenic particles, *Nature*, 533, 521–526, doi:10.1038/nature17953.
- Kokubu Y, S. Hara & A. Tani (2020), Mapping seasonal tree canopy cover and leaf area using Worldview-2/3 satellite imagery: A megacity-scale case study in Tokyo urban area, *Remote Sens.*, 12, 1505, doi:10.3390/rs12091505.
- Kondo, M., et al. (2020), State of the science in reconciling topdown and bottom-up approaches for terrestrial CO<sub>2</sub> budget, *Global Change Biol.*, 26, 1068–1084, doi:10.1111/gcb.14917.
- Kulmala M. (2018), Build a global Earth observatory, *Nature*, 553, 21–23, doi:10.1038/d41586-017-08967-y.
- Kulmala, M. et al. (2004), A new feedback mechanism linking forests, aerosols, and climate, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 557– 562, doi:10.5194/acp-4-557-2004.
- Kulmala M., et al. (2014), CO<sub>2</sub>-induced terrestrial climate feedback mechanism: From carbon sink to aerosol source and back, *Boreal Environ. Res.*, 19 (suppl. B), 122–131.
- 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
- Le Quéré, C., et al. (2020), Temporary reduction in daily global CO<sub>2</sub> emissions during the COVID-19 forced confinement, *Nat. Clim. Change*, 10, 647–653, doi:10.1038/s41558-020-0797-x.
- Lin Y.-H. et al. (2013), Epoxide as a precursor to secondary

organic aerosol formation from isoprene photooxidation in the presence of nitrogen oxides, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 110, 6718–6723, doi:10.1073/pnas.1221150110.

- Massad, R.-S., E. Nemitz & M. A. Sutton (2010), Review and parameterisation of bi-directional ammonia exchange between vegetation and the atmosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10359–10386. doi:10.5194/acp-10-10359-2010.
- Masui N, et al. (2020), Does ozone alter the attractiveness of Japanese white birch leaves to the leaf beetle Agelastica coerulea via changes in biogenic volatile organic compounds (BVOCs): An examination with the Y-tube test, *Forests*, 11, 58, doi:10.3390/f11010058.
- Matsuda, K., I. Watanabe, V. Wingpud, P. Theramongkol & T. Ohizumi (2006), Deposition velocity of O<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> in the dry and wet season above a tropical forest in northern Thailand, *Atmos. Environ.*, 40, 7557–7564, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.07.003.
- Matsuda, K., I. Watanabe, K. Mizukami, S. Ban & A. Takahashi (2015), Dry deposition of PM<sub>2.5</sub> sulfate above a hilly forest using relaxed eddy accumulation, *Atmos. Environ.*, 107, 255–261, doi:10.1016/j.atmosenv.2015.02.050.
- Nakahara, A., K. Takagi, A. Sorimachi, G. Katata & K. Matsuda (2019), Enhancement of dry deposition of PM<sub>2.5</sub> nitrate in a cool temperate forest. *Atmos. Environ.*, 212, 136–141, doi:10.1016/j.atmosenv.2019.05.053.
- Nemitz, E. (2015), Surface/Atmosphere Exchange of Atmospheric Acids and Aerosols, Including the Effect and Model Treatment of Chemical Interactions. Review and Integration of Biosphere-Atmosphere Modelling of Reactive Trace Gases and Volatile Aerosols. Springer, Dordrecht, pp. 115–149, doi:10.1007/978-94-017-7285-3\_5.
- Niinemets Ü., S. Fares, P. Harley & K. J. Jardine (2014), Bidirectional exchange of biogenic volatiles with vegetation: emission sources, reactions, breakdown and deposition, *Plant Cell Environ.*, 37, 1790–1809, doi: 10.1111/pce.12322.

- Nisbet, E. G., et al. (2019), Very strong atmospheric methane growth in the 4 years 2014–2017: Implications for the Paris Agreement, *Global Biogeochem. Cycles*, 33, 318–342, doi:10.1029/2018GB006009.
- Niwa, Y. et al. (2021), Estimation of fire-induced carbon emissions from Equatorial Asia in 2015 using in situ aircraft and ship observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 9455–9473, doi:10.5194/acp-21-9455-2021.
- Patra, P. K., et al. (2016), Regional methane emission estimation based on observed atmospheric concentrations (2002– 2012), *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 94, 91–113, doi: 10.2151/jmsj.2016-006.
- Petroff, A., A. Mailliat, M. Amielh & F. Anselmet (2008), Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part I: Review of present knowledge. *Atmos. Environ.*, 42, 3625– 3653, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.09.043.
- Pummer, B. G., H. Bauer, J. Bernardi, S. Bleicher & H. Grothe: Suspendable macromolecules are responsible for ice nucleation activity of birch and conifer pollen, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2541–2550, doi:10.5194/acp-12-2541-2012.
- Pryor, S.C. et al. (2008), A review of measurement and modelling results of particle atmosphere-surface exchange. *Tellus B*, 60, 42–75, doi:10.1111/j.1600-0889.2007.00298.x.
- Saunois, M., et al. (2020), The global methane budget 2000– 2017, Earth Syst. Sci. Data, 12, 1561–1623, doi:10.5194/essd-12-1561-2020.
- Sato, K. et al. (2018), Studying volatility from composition, dilution, and heating measurements of secondary organic aerosols formed during α-pinene ozonolysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 5455–5466, doi:10.5194/acp-18-5455-2018.
- Saylor, R. D., B. D. Baker, P. Lee, D. Tong, L. Pan & B. B. Hicks (2019), The particle dry deposition component of total deposition from air quality models: right, wrong or uncertain?, *Tellus B*, 71, 1550324, doi:10.1080/16000889.2018.1550324.
- Sesartic, A., U. Lohmann & T. Storelvmo: Bacteria in the

ECHAM5-HAM global climate model (2012), *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 8645–8661, doi:10.5194/acp-12-8645-2012.

- Sitch, S., P. M. Cox, W. J. Collins & C. Huntingford (2007), Indirect radiative forcing of climate change through ozone effects on the land-carbon sink, *Nature*, 448, 791–794, doi:10.1038/nature06059.
- Sporre, M. K., S. M. Blichner, I. H. H. Karset, R. Makkonen & T. K. Berntsen (2019), BVOC–aerosol–climate feedbacks investigated using NorESM, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 4763–4782, doi:10.5194/acp-19-4763-2019.
- Sutton, M. A., J. K. Burkhardt, D. Guerin, E. Nemitz & D. Fowler (1998), Development of resistance models to describe measurements of bi-directional ammonia surface– atmosphere exchange. *Atmos. Environ.*, 32, 473–480, doi:10.1016/S1352-2310(97)00164-7.
- Sutton, M.A. et al. (2020), Alkaline air: changing perspectives on nitrogen and air pollution in an ammonia-rich world. *Phil. Trans. R. Soc. A.*, 378, 20190315, doi:10.1098/rsta.2019.0315.
- Tani, A. & T. Mochizuki (2021), Review: Exchanges of volatile organic compounds between terrestrial ecosystems and the atmosphere. J. Agric. Meteorol., 77, 66–80, doi:10.2480/agrmet.D-20-00025.
- Tani, A., S. Tobe & S. Shimizu (2010), Uptake of methacrolein and methyl vinyl ketone by tree saplings and implications for forest atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, 44, 7096– 7101, doi:10.1021/es1017569.
- Tian, H., et al. (2020), A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks, *Nature*, 586, 248–256, doi:10.1038/s41586-020-2780-0.
- Toprak, E. & M. Schnaiter (2013), Fluorescent biological aerosol particles measured with the Waveband Integrated Bioaerosol Sensor WIBS-4: laboratory tests combined with a one year field study, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 225–243, doi:10.5194/acp-13-225-2013.
- 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.

- Tsunogai, U. et. al. (2010), Tracing the fate of atmospheric nitrate deposited onto a forest ecosystem in Eastern Asia using  $\Delta^{17}$ O, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1809–1820, doi:10.5194/acp-10-1809-2010.
- Tsunogai, U., S. Daita, D. D. Komatsu, F. Nakagawa & A. Tanaka (2011), Quantifying nitrate dynamics in an oligotrophic lake using Δ<sup>17</sup>O, *Biogeosciences*, 8, 687–702, doi:10.5194/bg-8-687-2011.
- Yamaga, S. et al. (2021), Trends of sulfur and nitrogen deposition from 2003 to 2017 in Japanese remote areas, *Environ. Pollut.*, 289, 117842, 10.1016/j.envpol.2021.117842.
- Yazaki, K., G. I. Arimura & T. Ohnishi (2017), 'Hidden' terpenoids in plants: their biosynthesis, localization and ecological roles, *Plant Cell Physiol.*, 58, 1615–1621, doi:10.1093/pcp/pcx123.
- Xu, M., K. Kasahara, A. Sorimachi & K. Matsuda (2021), Nitric acid dry deposition associated with equilibrium shift of ammonium nitrate above a forest by long-term measurement using relaxed eddy accumulation, *Atmos. Environ.*, 256, 118454, doi:10.1016/j.atmosenv.2021.118454.
- Xu, L. et al. (2012), Effects of anthropogenic emissions on aerosol formation from isoprene and monoterpenes in the southeastern United States, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 112, 37–42, doi:10.1073/pnas.1417609112.
- Xu, Y. et al. (2020), Aerosol liquid water promotes the formation of water-soluble organic nitrogen in submicrometer aerosols in a suburban forest, *Environ. Sci. Technol.*, 54, 1406–1414, doi:10.1021/acs.est.9b05849.
- Zhu. C., K. Kawamura, Y. Fukuda, M. Mochida, & Y. Iwamoto (2016), Fungal spores overwhelm biogenic organic aerosols in a midlatitudinal forest, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 7497– 7506, doi:10.5194/acp-16-7497-2016.

原稿受領日: 2022年5月9日 掲載受理日: 2022年6月13日

#### 著者所属:

- 1. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所
- 2. 国立環境研究所 地球システム領域
- 3. 東京農工大学 農学部附属広域都市圏フィール ドサイエンス教育研究センター
- 4. 静岡県立大学 食品栄養科学部
- \* 責任著者:

Michihiro Mochida <mochida@isee.nagoya-u.ac.jp>

# 6



# 人新世における生物地球化学的物質循環と 気候への海洋エアロゾルフィードバック

Marine aerosol feedback on biogeochemical cycles and climate in the Anthropocene

伊藤彰記, 宮崎雄三, 竹谷文一, 岩本洋子, 金谷有剛, 西岡純

# 人新世における生物地球化学的物質循環と気候への海 洋エアロゾルフィードバック

Marine aerosol feedback on biogeochemical cycles and climate in the

## Anthropocene

### 伊藤彰記<sup>1\*</sup>, 宮﨑雄三<sup>2</sup>, 竹谷文一<sup>1</sup>, 岩本洋子<sup>3</sup>, 金谷有剛<sup>1</sup>, 西岡純<sup>2</sup>

地球規模で大気環境や気候が変化する中,人間活動が海洋生態系へ与える影響,およびその海洋 生物活動の変化を介して気候へ与える影響を定量的に評価することは容易ではない。その主な理由 は、大気中の物理化学過程に加えて、生物地球化学的な物質循環と気候変化により引き起こされる フィードバックがエアロゾルを介して働くためである。海洋生物活動の影響を受けて自然起源エアロゾ ルおよびその前駆体が雲特性をどの程度変化させ、それにより、気候へどのような影響をどの程度与 えるのか?さらに、その気候変化が海洋生態系にどのようなフィードバックをもたらすのか?同時に、 大気から海洋への人為起源エアロゾルの供給が、生物地球化学的な物質循環をどの程度変化させ、 それにより、海洋生態系や気候へどの程度影響を与えるのか?本稿では、これらの研究課題に関す る最新の知見を総括する。将来構想として、観測・実験・数値モデル研究の融合、大気化学会と隣接 する研究分野との連携、および新規研究課題の開拓を展望する。

#### 1. はじめに

人類は地球規模での大気汚染や温暖化を引き起こし,人新世と呼ばれる時代に突入した[Crutzen &



図 1 人新世における大気エアロゾルと海洋生物活動の 相互作用と気候影響の模式図。

Stoermer, 2000]。それらの人為的な地球環境変化が 大気化学・陸域海洋生態系相互作用へ与える影響 およびその影響による気候フィードバックを本質的に 理解し,統合的に評価することは重要である(図 1)。 特に高緯度では,アイス・アルベド・フィードバックを 伴うため,雪氷面の減少により太陽光を反射する割 合は減少し,温暖化の進行が顕著に表れる(正の気 候フィードバック)。一方,エアロゾル雲相互作用によ る気候フィードバックに関しては,その複雑な過程を 理解することが温暖化予測の不確実性低減にとって 急務とされている[Schmale et al., 2021]。数値モデル 計算では過渡的な気温上昇に伴い,氷雲から水雲 へと相変化する過程により,雲の光学的厚さが増加 し,温暖化に対して負の気候フィードバックが働く

[Mülmenstädt et al., 2021]。しかし、そのフィードバック 強度は, 雲凝結核と氷晶核の混在した混相雲のモデ ルの取り扱いにより異なり、負のフィードバックが弱く 働くことは、より急激な気温上昇を予測することにつ ながる[Zelinka et al., 2020]。そのような物理的なフィ ードバックに加えて,海洋大気での雲凝結核および 氷晶核数濃度は海洋生物起源のエアロゾルおよび その前駆体により変化する。温暖化に伴い、海水温 の上昇や氷床の融解等,様々な側面から海洋生物 活動が影響を受ける結果,海洋大気における雲特性 は変化し、気候へフィードバックをもたらすと考えられ る。一方で、栄養塩不足により植物プランクトンの成 長が阻害される海域では、エアロゾルにより供給され る栄養塩が海洋植物プランクトンの成長を促す。これ により,反応性気体・エアロゾル放出と海洋による二 酸化炭素吸収を促進し,負の気候フィードバック が働くと考えられる。さらに,地球温暖化により,大 規模な森林火災が増加すると、海洋へ長距離輸送さ れたエアロゾルによる雲凝結核および栄養塩供給が 増加し,負の気候フィードバックを引き起こすと予測さ れる。従って,温暖化の地球システムへの影響を考 慮する際,このような大気汚染物質や温室効果気体 が陸域・海洋生態系およびその生物活動の変化を介 して気候へ与える影響に関する理解を深める必要が ある。

地球温暖化・大気汚染の地球システムへの影響を 定量的に評価する手法として,生物学的,化学的な 要素を含んだ地球システムモデルが用いられる [Kawamiya et al., 2020]。しかし,海洋から大気への 物質供給による気候への影響,および大気から海洋 への物質供給による海洋生態系への影響予測には 多大な不確実性が存在する。従って,観測・実験・数 値モデル研究を融合し,人新世において,生物地球 化学的な物質循環と気候変化で海洋大気エアロゾ ルを介して引き起こされるフィードバックを明らかにす ることが今後10年の研究課題となる。

海洋上の大気エアロゾル・海洋生物を介した気候

フィードバックの研究は,主に,大気側の研究から導 かれた仮説を基に、エアロゾル・雲相互作用の解明 を目指して盛んに行われてきた [Charlson et al., 1987]。これは, 著者の頭文字からCLAW 仮説と呼ば れ,温暖化に対して自然起源エアロゾルが負の気候 フィードバックをもたらすと提案された。一方,主に, 海洋側の研究から、「鉄の海洋施肥によって大気中 の二酸化炭素の海洋への吸収が促進される」という 仮説が提案された[Martin, 1990a]。これは, Martinの 鉄仮説と呼ばれ,寒冷化に対して自然起源エアロゾ ルに含まれる鉄の海洋表層への沈着が正の気候フィ ードバックをもたらすことを指摘している。さらに、 Martin 博士は、人為的鉄散布をジオエンジニアリン グとして適用することで,自然界の気候フィードバック を活用した温暖化対策を提案した。Martin 博士が独 創的な鉄仮説を提唱したことで、大気エアロゾルから の鉄の沈着評価を含む,鉄研究が飛躍的に発展し た[Martin, 1990b]。さらに, CLAW 仮説と鉄仮説が融 合された[Zhuang et al., 1992]ことにより, 鉱物エアロゾ ルの海洋生態系を介した気候フィードバックの重要 性が注目された[Jickells et al., 2005]。また, 大気から の窒素供給に関して, 人為起源の影響の重要性が 示唆された[Duce et al., 2008]。

近年では、硫化ジメチル (DMS)からの硫酸エアロ ゾル新粒子生成は観測による裏付けが限定的である など、有機物の重要性も含め CLAW 仮説は見直しを 迫られている[Quinn & Bates, 2011]。一方、大気から の栄養塩供給に関しても、より長期・広範囲・多元素 にわたる生物地球化学的な物質循環において、物 理化学過程に加えて生物活動による物質循環への 負のフィードバックが海洋内で働くため、全球数値モ デル計算による栄養塩施肥効果は、レッドフィールド 比(海洋における炭素、窒素とリンの経験的な比)を 仮定した試算[Martin, 1990a; Duce et al., 2008]より低 く見積もられた[Krishnamurthy et al., 2009; Somes et al., 2016]。さらに、現代気候では、海洋生物生産の 大部分は大気由来の鉱物エアロゾルに含まれる鉄供 給過程では説明できないと指摘されたことで [Boyd et al., 2010], 燃焼起源鉄の重要性も含め大気から海 洋への鉄の供給過程は見直す必要がある。本稿で は,「有機物・鉄・窒素」を軸に人間活動が海洋生態 系へ与える影響,およびその海洋生物活動の変化を 介して気候へ与える影響に関する最新の知見を総括 する。今後 10 年に大気 – 海洋間のインターフェース を対象とする大気化学分野の取り組むべき課題につ いて, 個別研究を分野横断的研究へと発展させるた めの道筋を展望する。

# 2. 海洋から大気への物質供給・気候への影 響

#### 2.1 海洋から大気への気体・エアロゾル供給

北太平洋亜寒帯域は,他外洋域に比べ生物生産の 季節的変動の大きな海域であることが、船舶や衛星 観測等で確認されている。その領域内において,東 部と西部では栄養塩の供給・消費量や CO2 排出・吸 収量に違いが見られるなど,植物プランクトンを中心 とする微生物のダイナミクスが異なる[Harrison et al., 1999]。微生物活動に伴って海洋表層から大気へ供 給される反応性気体やエアロゾルの量や組成、物 理化学特性は,植物プランクトンの消長や海水中 の有機物の起源によって異なる[O'Dowd et al., 2004]。したがって、北太平洋亜寒帯域は大気への 反応性気体・エアロゾルの供給と気候影響を評価す る上でも重要な海域である。西部北太平洋域では 2000年代後半の「海洋表層・大気下層間の物質循 環リンケージ (W-PASS: Western Pacific Air-Sea interaction Study)」プロジェクトが日本における大 気海洋相互作用に関する研究 (SOLAS: Surface Ocean–Lower Atmosphere Study, https://solas.jp/english/)の発展において大きな原動 力となった[植松, 2013]。

海洋表層から大気へのエアロゾル放出量を表現する際,海水飛沫(Sea spray aerosol)フラックスやその 粒径分布は,経験的に風速の関数として表される [Monahan et al., 1986; Gong et al., 2003]。実際,波の 状態を観察することで,風速が強くなるに従い,白 波の発生頻度が増加する傾向を観測できる。しかし, 白波の割合を算出する関係式を風速のみを変数と して表現した場合,データごとのバラツキは大きく, 風速以外に波の状態を変化させる要因を考慮に入 れる必要性が指摘された[de Leeuw et al., 2011]。そこ で,風速の代わりに,波の状態を表現するパラメータ としてレイノルズ数をエアロゾル放出量の数式化に活 用することで,予測精度の改善が試みられた [Ovadnevaite et al., 2014]。ただし,それらの数式では, 有機物が変数として取り入れられていない。

海洋大気エアロゾルの中でも有機物は、その化 学・物理特性を制御する表層海水中の支配要因(溶 存態・粒子態有機物の組成, 微生物の種・数・活動 度,表面活性など)について理解が不十分である。 海水飛沫中の有機物含有量は,植物プランクトン現 存量の指標として用いられるクロロフィル a 濃度の関 数として表された[O'Dowd et al., 2008]。この場合のク ロロフィル a 濃度は、衛星観測データや地球システム モデルを用いて推定される[Ito & Kawamiya, 2010; Gantt & Meskhidze, 2013]。しかし、植物プランクトン の大増殖(ブルーム)に伴いバイオマスや微生物群 集組成が変動するにもかかわらず, ブルーム期間中 に大気中に放出される微生物や海水中の有機物組 成と大気エアロゾルの有機物組成とに明瞭な関係性 は見られていない[Quinn & Bates, 2011]。その原因と して,北太平洋亜寒帯域での船舶観測から,海水飛 沫が表層海水から大気へ移行する過程で, 微生物 由来で生物学的に分解されやすい有機物の割合が 大気エアロゾル中で顕著に高くなるなど, 有機物の 著しい化学的変質が挙げられた[Miyazaki et al., 2018]。さらに、その有機物量の制御要因のひとつと して,植物プランクトン(珪藻類)の細胞老化の度合 いが重要であることが示唆されており,海水飛沫中の 有機物量の指標として植物色素が提案された [Miyazaki et al., 2020]。また,太平洋赤道域~中緯 度域での船舶によるオンライン蛍光測定から,大気 中の生物起源粒子(バイオエアロゾル)数濃度(5-30 個/L) [Kawana et al., 2021] が黒潮続流域で報告さ れた大気バクテリア数濃度(10-250 個/L) [Hu et al., 2017]と近く,風速を考慮した透明細胞外重合体粒子 (TEPs),海中バクテリア濃度との相関から,大気バイ オエアロゾル濃度のパラメータ表現も提案された(図 2, [Kawana et al., 2021])。



図 2 西太平洋低緯度域における大気バイオエアロゾル 数濃度と海洋表層の TEP 濃度と風速の積との間の相関 [Kawana et al., 2021]を一部改変。

海水飛沫の物理化学特性の理解の上で,このよう な海水と大気とのインターフェースにおけるエアロゾ ルの生物・物理化学的な変質過程が今後も鍵となる。 海洋表層の微生物活動に伴う有機物の気候影響を 明らかにするため,今後は海水飛沫中の有機物の量 や組成,粒子の混合状態や無機物も含めた反応性 [e.g., Yoshizue et al., 2019],海水から大気へ移行する 組成の選択性を決める要因とメカニズムを海洋表層 の生物プロセスと関連付け,定量的に明らかにして いくことが求められる。

海水飛沫(一次生成エアロゾル)と併せ,海洋表層 から放出される DMS 以外に揮発性有機化合物 (VOCs)[e.g., Tanimoto et al., 2014]や有機態窒素な どが,新粒子生成,二次エアロゾル生成や既存のエ アロゾルの変質に果たす役割も未知の部分が多い。 実際,海洋から放出される未知の VOCs の存在も指 摘された[Thames et al., 2020]。また,大気中の窒素 分子を微生物が栄養塩として利用可能な窒素化合 物(アンモニウム塩など)に変換する窒素固定プロセ スが,有機態窒素など反応性窒素の大気放出に及 ぼす影響等の研究も始まっている[Dobashi et al., 2022]。この有機態窒素やアンモニア(もしくはアンモ ニウム塩)の海洋表層から大気への再利用速度は, 大気からの窒素供給に関して, 人為起源の影響を推 定する際に重要である[Altieri et al., 2021]。海水と大 気とのインターフェースにおいて,光化学反応により 生成される VOCs を含む反応性気体は、新粒子生成 に関与する可能性が指摘されたが,その存在量の不 確定性が大きい[e.g., Brüggemann et al., 2018]。有機 物については、海水飛沫による一次生成量と二次生 成量を炭素換算値で比較し, 微小な海塩粒子数の 重要性と併せ,放出フラックスとしての相対的な重要 性を明らかにしていく必要がある。

海洋上の大気エアロゾル組成と海洋中の生物・物 理化学プロセスをより明確に関連付け,関係を定量 化するには,海水中で有機物を生成する生態系の代 謝経路や反応経路等の詳細な情報を潜在的に含む 分子レベルでの理解も必要となる。これらの理解には, 手法の確立も含めた海水中の有機物組成とエアロゾ ル組成の同時観測による定量的関連付けが今後ま すます重要となる。

海洋生態系-エアロゾル-雲の相互作用システム に関する今後の重要なテーマの一例として、「地球温 暖化に伴う海氷減少によって面積が拡大する開水域 (open water)において、あるいは海洋酸性化に伴っ て、海洋表層微生物の種・数・活動度にどのような変 化がもたらされ、それがエアロゾルや前駆体の大気 放出とそれに伴う雲凝結核能(2.2 節)や氷晶核能 (2.3 節)をどう変化させるか?」を明らかにしていくこ とが挙げられる。地球システムモデルにより海洋大気 エアロゾルの気候影響を精度良く評価する上で、生 物・物理過程も含め上に挙げたプロセスを明らかにし、 海洋から大気へのエアロゾル放出フラックスの最適な パラメータ化が必須となる。

#### 2.2 海洋大気での雲凝結核

CLAW 仮説 [Charlson et al., 1987]は, DMS によ る新粒子生成が雲アルベドの変化を通して地球の温 度調節に関わってきた可能性を提唱した。地球温暖 化に寄せられる関心の高さに伴い, CLAW 仮説以降, DMS に関わる生物地球化学的知見が蓄積されてき た。その結果,既存粒子として海塩粒子が豊富に存 在する大気境界層内において, DMSを前駆体とする エアロゾル粒子生成は極めて稀であった[e.g., Covert et al., 1996]。一方で, 海洋生物生産活動の活発な北 極域では, DMS を前駆体とするエアロゾル粒子生成 が観測された [Park et al., 2021]。従って, DMS の気 候調節能は当初に全球規模で予想されたより海域的 に限定されることがわかってきた。総括すると、CLAW 仮説で提案された海洋生物活動と気候フィードバッ クを支持する観測事実は、これまで確認されなかった [Quinn & Bates, 2011]。しかし, CLAW 仮説を構成す る素過程については議論の余地がある。

室内実験から[江波ら, 2022], 清浄な大気では, DMS の酸化過程で分子内 H 原子移動反応が重要 になると報告された [Berndt et al., 2019]。その過程で 生成される比較的安定な中間体 HPMTF (hydroperoxymethyl thioformate; HOOCH<sub>2</sub>SCHO) は海洋上で航空機により観測され, その異性化反応 の重要性が確認された[Veres et al., 2020]。さらに, そ の異性化反応を考慮に入れた数値モデル研究は, 海洋大気中のエアロゾル生成の制御過程とその変化 に対する雲応答の理解を深める必要性を示した [Novak et al., 2021; Fung et al., 2022]。また, 地球シ ステムモデルによる DMS 濃度の予測はモデルの取 り扱いにより異なり[Bock et al., 2021], 海域的な DMS の気候調節能は, さらなる研究が必要となる。

最近の大規模な航空機観測では,既存粒子や人 為起源の前駆気体が少ない熱帯の自由対流圏にお いて,持続的な粒子生成を捉えた[Williamson et al., 2019]。対流性の雲によって海洋大気境界層(Marine boundary layer; MBL)内の前駆気体が自由対流圏 に輸送され,新粒子生成につながったと考えられて おり,生成した新粒子の MBL への取り込みが, MBL 内の雲形成に寄与することが指摘されている。しかし ながら,数値モデルによる検証では,前駆気体として DMS のみを考えた場合に実際の粒子数濃度を過小 評価するため, DMS 以外の前駆気体の解明を課題 のひとつとして挙げている。

2000年代以降,海洋大気中の雲粒子の核として, 2.1節で述べた海洋生物由来の有機物を含む海水 飛沫の役割が注目された[O'Dowd et al., 2004]。海水 中の有機物は,海水飛沫粒子の雲凝結核能を決め る吸湿性や表面張力に影響を及ぼすだけでなく,気 泡のでき方を変えることで海水飛沫の生成フラックス, 粒径分布を変化させる可能性がある。これまでに室 内や現場における海水飛沫の観測や生成実験が実 施されており,海水飛沫に含まれる有機物として,吸 湿性の低い炭化水素やコロイド状物質の寄与が大き く,雲凝結核(Cloud Condensation Nuclei; CCN)活性 を抑制することがわかった[Gantt & Meskhidze, 2013]。 しかしながら,海洋生態系と海水飛沫に含まれる有 機物およびその CCN 能・後述の氷晶核能との関連 については未だ不明な点が多い。

気候モデルでは、自然起源エアロゾル個数濃度の 過小評価を補い、人為起源エアロゾルによるエアロゾ ル雲相互作用による冷却効果を抑えるために、エア ロゾル個数濃度を雲核数濃度に変換する際に閾値 が用いられている[Takemura et al., 2003]。そのため、 その閾値を下回る範囲で海洋生物起源の有機エア ロゾル濃度を変化させても気候へ影響を与えない [Ito & Kawamiya, 2010]。人為起源エアロゾルによる エアロゾル雲相互作用による冷却効果をより正確に 算出するためには、海洋生物起源の有機エアロゾル に対する理解を深め、その閾値を使用しないモデル 開発が必要である。一方、気象研究所の気候モデル では南大洋域での過剰な太陽光の入射を抑えるた めに、雲アルベド効果を調整するパラメータとして、 海水飛沫の雲凝結核数濃度が使用された[Kawai et al., 2019]。しかし, 氷晶核形成能を持つ粒子 (Ice Nucleating Particle; INP) について, 陸域起源の鉱物 エアロゾルより低い, 海洋生物起源の INP 特性を考 慮することで, 氷雲の過大評価を抑えることになり, 水雲の過小評価を補うことができた [Vergara-Temprado et al., 2018]。このように近年, 海水飛沫に 含まれる有機物に関しては, 氷晶核との関わりにつ いての関心が高まっている(2.3 節)。

室内実験と海洋の現場をつなぐ研究として,大型 水槽を用いたメソコスム実験(環境条件を制御しなが ら海洋生態系を再現する実験)により,人工的に波浪 を再現し自然により近い状況で海水飛沫を生成する 研究が推進されている[Prather et al., 2013]。また,海 水飛沫の気候影響を地球規模で理解するために, CCN として機能する海水飛沫の数濃度を,衛星から 観測できる海洋生物活動の指標である植物プランク トン色素や,気象場と関連づける試みがなされた [e.g., Sellegri et al., 2021]。

#### 2.3 海洋大気での氷晶核

上述のとおり,海水飛沫により海洋表層から大気 下層へ供給される「エアロゾル粒子」には有機物が含 まれる。その一部として、「生物起源(バイオ)粒子」、 すなわち「バクテリア・小型のプランクトン類やそれら の破片, 滲出物等」が海洋から大気へ供給される。 バクテリアの供給フラックスは2-10 Tg/年などとも見積 られるが[Burrows et al., 2009], 不確かさの幅が大き い。それらのうちには、前述の INP があるとされてい る。一般に, 過冷却の水滴の凍結には不純物がない 場合には-40℃程度の低温条件が必要だが, INP の 存在により比較的高温(-5~-25℃)での凍結が促さ れる。そのような顕著な氷晶核形成を通じ,海洋性バ イオエアロゾルが,海洋性大気中の雲のライフサイク ルや降水システムのダイナミクス,さらには放射収支 に大きな影響を与える可能性が指摘されている。INP は総エアロゾルに占める粒子数がごくわずか(例えば 100万個に1個)であっても、雲の消長に決定的な役 割を果たすため, 数濃度および氷晶核形成能の定 量的理解が必要である。しかしながら定性的な知見 すら限られており, 一連のプロセスの理解・定量化や モデル化には程遠い状況にある。

表層海水中有機物の大気への供給,氷晶核形成 能,雲降水システムへのインパクトの一連の過程を明 らかにできる総合的な観測調査とモデル化が必要で ある。総合観測には,船舶による海洋・大気物質・生 態系を対象とする学際的な計測が望まれる。

バイオエアロゾル[Fröhlich-Nowoisky et al., 2016] の計測方法では標準法が定まっておらず[Šantl-Temkiv et al., 2020], 海水中バイオ粒子とバイオエア ロゾルを統一的に計測できる方法の開発が望まれる。 エアロゾル自家蛍光計測では、アミノ酸や還元型ニコ チンアミドアデニンジヌクレオチド(NADH), リボフラ ビンなどを指標物質とした市販機器や研究型機器が あり, 連続測定可能だが[e.g., Taketani et al., 2013], 多環芳香族炭化水素(PAH)など, 非バイオエアロゾ ルからの干渉を十分に取り除く必要がある[Mivakawa et al., 2015; 金谷ら, 2019]。より信頼性が高い DNA 染色・蛍光顕微鏡計数,ゲノム解析[Maki et al., 2018]などの生物学的手法による整合性の評価も重 要となる。INP 計測では,オフライン型の液滴凍結法 で国内開発実績がある[Tobo, 2016; Tobo et al., 2020; Iwata & Matsuki, 2018]。オンライン型の Continuous Flow Diffusion Chamber 方式の INP 計も市販されて いるが信頼性向上が必要な段階である。

海洋地球研究船「みらい」ではユニークな試みとし て、2012 年以降、数多くの研究航海で、蛍光性粒子 の自動連続計測を実施するとともに、いくつかの航海 では INP 同時計測を行ってきた。また、起源となる海 洋表層物質とバイオエアロゾルとの対応関係が見出 されてきた。海洋物質との対応関係については、植 物プランクトンの現存量の指標としての汎用性が高い クロロフィル a だけでなく、バクテリア数や種、TEP や CSP(タンパク質性物質)についても評価することが、 バイオエアロゾル発生プロセス解明のために有効で ある。INP と海洋生態系指標との対応関係は,野外 観測だけでなく水槽培養実験の結果からも示された [DeMott et al., 2016]。しかし,関連する海洋物質の生 成・消失プロセスや粒子サイズなどについては未解 明であり,培養実験などを含めた実験室的アプロー チが有効である。

南大洋や亜寒帯~北極域では,低層雲・混相雲 のモデル再現性およびその未熟さに起因する短波・ 長波放射のモデル誤差が大きな課題となっており, 重点的にエアロゾル・雲相互作用の研究が行われ ている[e.g., McFarquhar et al., 2020]。南大洋ではか って-15℃で凍結する INP 数密度(N<sub>INP</sub>(-15℃))が 3-250 個/m<sup>3</sup>にも達するとされ[Bigg et al., 1973]注目 を集めたが,近年の航海調査などでは0.1-1個/m<sup>3</sup>の 桁であると観測された[McCluskey et al., 2018; Schmale et al., 2019; Miyakawa et al., 2022]。全球的 に収集された洋上 INP データでも N<sub>INP</sub>(-15℃)は 0.1-100 個/m<sup>3</sup>の範囲で,陸域より低かった[Welti et al., 2020]。しかし, 南大洋上では大気中バクテリア群 集解析から海洋性種が卓越すること[Uetake et al., 2021]や、 蛍光性粒子と INP の相関 [Miyakawa et al., 2022]などが報告されたが、海水中バイオ粒子、バイ オエアロゾルと INP の関係性の総合的な解明に至っ ていない。北半球高緯度~北極域で、INP を海中粒 子と結び付けた例はあるが,重要な粒子サイズが微 小粒子か1 µm 以上の粗大粒子か,見解は分かれて いる[Wilson et al., 2015; Creamean et al., 2019]。また, 北極海上で海洋起源の有機物が INP に影響する可 能性も指摘され[Inoue et al., 2021], 評価の継続が重 要である。中低緯度においても, 巻雲など上空の雲 の放射収支には大きな不確実性を伴う。そのため、 バイオエアロゾル供給が氷雲形成に重要な役目を果 たすかどうか知見の拡充が望まれる。

今後の研究では,陸・人間活動起源物質(鉱物エアロゾル,燃焼エアロゾル等)が海上でも INP として どの程度寄与するか[e.g., Kanji et al., 2017],海洋起 源物質と合わせて各々の役割および相対的な寄与

を明らかにすることが望まれる。大規模な植生燃焼起 源のバイオエアロゾル[Moore et al., 2021]や熱変性し た鉱物エアロゾル[Jahn et al., 2020]など各種発生源 の役割や、大気の長距離輸送にともなう湿性除去が 大気中に残存する INP/CCN 比率にどう影響を与え るか,についても評価が期待される。雲の高度での 情報を得るために, 無人・有人航空機(ドローンやへ リコプターも含む),係留気球などを船舶と併用する 観測,氷縁域に到達できる北極域研究船からの観測 も有効な手段となる。国内関係者による、沿岸の「波 の花」研究[岩本, 2014]や海水中の有機物の三次元 蛍光分析[Miyazaki et al., 2020]との連携, 静穏な海 洋表層で有機物が濃縮されているマイクロレイヤー の役割の解明や微生物学との連携[Hamasaki et al., 2019], 環境 DNA 網羅解析との連携も有望な方向性 である。

地球温暖化とともに海水中バイオ粒子・バイオエア ロゾル・INP はどう変化し,正または負の気候フィード バックをどの程度生むのか,豪雨のメカニズムなどに 対しても何らかの役割を果たしているのか,などの気 候・気象研究にも注目すべきである。海洋ー大気間 物質交換・エアロゾル微物理・CCN/INP の挙動・エア ロゾル雲相互作用や雲放射などのうち必要な要素を 取り入れた数値モデル[e.g., Steinke et al., 2022]により 各プロセスを評価し,統合的な知見としてゆくことも, 気象・気候システムや海・大気・陸を横断する地球シ ステムの視点で海洋起源氷晶核の役割を解明する ゴールに辿り着くために重要である。

# 3. 大気から海洋への物質供給・海洋生態系 への影響

植物の成長には、必須な栄養素のうちで与えられ た量が最も少ない無機栄養素によって支配されると いう法則(リービッヒの最小律)が成立する。リービッヒ の最小律が海洋植物の栄養素に適応される海域や 季節では、微量な栄養塩濃度の増加が、植物プラン クトンの成長を促進することにつながる[Martin et al.,



図3 培養実験で加えられた窒素(横軸)に対するクロロフ ィルa変化(縦軸)の応答[*Zhang et al.*, 2019]。記号は(M1, M2B, A1-b), 採水された場所を表す。応答は線形増加 (黒塗り)と非線形増加(白抜き)に分類され, 赤線と青線 が, それぞれのデータに対するフィッティング直線と曲線 を示す。 CC BY 3.0

1990]。従って、大気から海洋への降下物質に含まれ る窒素、リン、鉄などの微量元素は海洋での基礎生 産の増加をもたらし得る。また、海域や季節などによ って、栄養塩の枯渇要素が異なることは観測から知ら れている。しかし、表層水における生物に利用な形 態での栄養塩の滞留時間がそれぞれの要素間で異 なるため、大気物質の沈着後に生物に利用可能な 栄養成分濃度が時空間ごとにそれぞれ異なって変 化する。従って、より長期間・広範囲での生物に利用 可能な栄養塩の動態の理解が不可欠となる。本節で は大気から海洋への供給される栄養物質の海洋生 態系への影響に関して記述する。

#### 3.1 大気から海洋へのマクロ栄養塩供給

大気から海洋へ供給される気体・エアロゾル・降水 中の主要な栄養成分として窒素化合物がある。特に, 大都市域の風下域に位置する海域では,人間活動 により放出された大気窒素化合物が海洋に多く供給 され[Itahashi et al., 2016; Jickells et al., 2017],その存 在量や海洋生態系への寄与について現場観測,室 内実験,数値計算などにより議論がなされてきたがそ の効果については,まだ定量性の不確さが大きい [Altieri et al., 2021]。

大気化学輸送モデルと海洋生態系モデルを組み

合わせ,西部北太平洋亜熱帯域において,主に東ア ジア起源の大気を介した気体・エアロゾル・雨水中イ オンの沈着による無機態窒素化合物の供給により, 海洋植物プランクトンの基礎生産が増加すると報告さ れた[Taketani et al., 2018]。また, 西部北太平洋亜熱 帯域においてエアロゾルの毒性による成長阻害効果 は限定的であり,窒素栄養塩供給が植物プランクトン の成長を促進する効果は、東アジアでの大気汚染に より排出された微小エアロゾルを用いた植物プランク トン培養実験により支持された[Zhang et al., 2019]。さ らに,この培養実験では,窒素栄養塩供給を増加さ せ続けた結果,植物プランクトンの成長促進が鈍化 する状態になることを示した(図 3)。鉄を含んだ海洋 生態系モデルでは窒素が栄養塩として十分に供給さ れる場合に、リービッヒの最小律に従い、大気からの 鉄供給が冬季と春季に植物プランクトンの成長を促 進し、それに伴い深海への粒子状有機炭素輸送フラ ックスを増加させた[Xiu & Chai, 2021]。

数値計算や培養実験などからは、徐々に大気から の沈着後の窒素化合物の海洋生態系内利用および 変化を含めた影響評価が進められてきている。西部 北太平洋亜熱帯域に限らず、北極海やインド洋など においても窒素化合物が制限栄養要素として知られ ており[e.g., Nishino et al, 2011]、北極海では海氷減 衰に伴い海面の増加が今後も見込まれ、大気からの 物質供給の影響が大きくなると考えられる。インド洋 では南アジアの人口増加に伴い、産業活動から発生 し、硝酸の前駆物質である NO<sub>x</sub> や、堆肥などから発 生する NH<sub>3</sub> アンモニアの放出が沈着量を増加させる 可能性が示唆された [e.g., Jickells et al., 2017; Elguindi et al., 2020]。これらの海域においても大気 窒素化合物の沈着量の増加が予想されるため、海洋 生態系への影響評価は継続的に行う必要がある。

これまでの大気現場観測からの海洋生態系への 影響評価では、取得された沈着データをもとにレッド フィールド比を利用し時間的・空間的に独立した状 況で海洋表層生産力への影響評価が中心に行われ てきた。しかし、大気・海洋中でのそれぞれの輸送な どの変動の時間スケールが大きく異なるため、大気 からの影響の総合的かつ定量的な評価が困難にな っていた。特に海洋混合層下部からの表層への栄養 塩輸送、鉛直拡散、表層の水平輸送の寄与などの取 り扱いと大気からの乾性・湿性沈着や窒素固定の定 量評価が困難になっている。このスケール間の違い をどのように取り扱っていくかは重要な課題であり、 今後、大気・海洋それぞれの研究者との綿密な連携 および相互理解が必要である。

今後の窒素化合物を含む大気物質の海洋表層へ の沈着による海洋生態系への影響を総合的に理解 するために、様々な取り組みが必要と考えられる。現 場観測では大気組成/海洋化学の同時総合観測を 推し進め, 通年で, 船舶を含めた特定の地点の定常 的な観測を行うことが必要である。1995 年から 2012 年の間に行われた船舶調査から広範囲(5°×5°)で平 均化されたエアロゾル観測を元に算出された乾性沈 着のデータベースが作成された[Baker et al., 2017]。 しかし, 主に人為起源の微小粒子中の硝酸塩やアン モニウム塩は揮発性が高く、これらの定量の際には オンラインでの気体・エアロゾル同時測定が重要とな る[Guo et al., 2017]。一方で, 不均一だが大量の窒素 化合物を含む大気物質が局所的に供給される湿性 沈着のデータが少ないため, 乾性沈着のようにデー タベース化できていない。突発的に起こる現象である が,大量の大気物質が一気に供給される可能性があ るため,現場での沈着効果の影響評価の試みも重要 と考えられる。また, 北極海域では, 上記の観測に加 え,海氷上の積雪による物質供給などについて,季 節を問わず航行可能な北極研究砕氷船での観測も 有効である。

長期的には大気への窒素化合物の人為的排出量 推定についての精度改善も必要である。近年,中国 での NO<sub>x</sub> の排出量は大気汚染対策の効果により減 少傾向にあるため[*Kurokawa & Ohara*, 2020; *Ding et al.*, 2017], 今後, 西部北太平洋における硝酸塩の供 給量は減少傾向になる可能性がある。一方,アンモ ニアの農業による排出量は増加傾向になると予測さ れるが,正味のフラックス測定の困難さから,不確定 性が高い。海洋上からの排出なども含め,これらの排 出量を正確に見積もり,海洋生態系モデルとの連携 が今後の課題としてあげられる。さらに,エアロゾル前 駆体の排出量変化に伴い,大気の酸性度が変化し, エアロゾルの長距離輸送および海洋施肥効果に影 響を与える[Baker et al., 2021]。これまで大気中の存 在量の多さから無機態窒素を中心に影響評価が行 われてきたが,有機態窒素やリンなどの時空間分布 に関してもその組成を含め,情報を蓄積する必要が ある[Duce et al., 2008; Ito et al., 2014; Myriokefalitakis et al., 2020]。

#### 3.2 大気から海洋へのミクロ栄養塩供給

北太平洋亜寒帯において,長年にわたる観測から, 海洋内部の鉄の分布や循環に関する知見が蓄積さ れてきた[Nishioka et al., 2021]。 微量元素・同位体の 分布およびその循環機構を調査する国際共同プロ ジェクト GEOTRACES (An International Study of the Marine Biogeochemical Cycles of Trace Elements and Their Isotopes) が展開されたことで,海水中の鉄を含 んだ多元素の分布が明らかになりつつある (https://www.geotraces.org/)。これら海洋内部の鉄の 時空間分布や循環に関する知見を基に,大陸棚の 堆積物から北太平洋へと輸送される鉄のゆっくりとし た除去過程(粒子沈降速度:180-460 m/年)が海洋 物質循環モデルにより示唆された[Misumi et al., 2021]。一方, 大気エアロゾルを経由した, 生物に利 用可能な鉄供給の定量的な見積もりには課題が多 い。特に、大気から供給された鉄の海水中での溶解 度を制御すると考えられている有機配位子について は、降水と海洋マイクロレイヤーでの存在量、存在形 態,および錯体形成能が双方において未解明である [Meskhidze et al., 2019]。さらに, 鉄を海洋表層へ散 布した数値モデル実験では,海洋内で生物活動が

促進されることにより鉄以外の栄養塩不足が生物生 産活動を抑制することになる。しかし,海洋表層での 栄養塩の滞留時間あるいは再利用速度に,観測によ る制約が十分に働いていないため,どの栄養塩がど の海域で基礎生産を制御するかはモデル間で異な る[*Ito et al.*, 2020a; *Hamilton et al.*, 2022]。そのため, 鉄散布の数値シミュレーション実験による栄養塩濃 度変化の定量的な評価には,より長期・広範囲・多元 素にわたる生物地球化学的な物質循環の理解を深 化させる必要がある。

近年では、燃焼起源鉄の海洋表層での生物に利 用可能な鉄物質循環およびその生態系へ与える影 響の重要性に関する研究に関心が集まっている[Ito et al., 2021]。観測データから、エアロゾル中鉄濃度 が低いほど、鉄溶解率が高くなる逆相関関係が見ら れる[Baker & Jickells, 2006; Sholkovitz et al., 2012] (図 4)。この逆相関関係を対数軸で表現した場合、 単純な 1 次元モデルの解析から、提案されていた仮 説の中で一つの結論を導き出すことはできないことが



図 4 エアロゾル中の鉄濃度(横軸)と鉄溶解率(縦軸)の 逆相関関係の観測(a)と数値モデル予測(b, c, d, e)の比 較[*Ito et al.*, 2019]。数値モデルによる予測結果の色は, エアロゾル中の全ての溶存鉄に対する人為起源溶存鉄 の割合を表す。CC BY-NC

指摘された[Mahowald et al., 2019]。一方, この逆相 関関係は,無作為なデータによっても再現できること が指摘された[Meskhidze et al., 2019]。つまり, 鉄が 主成分となる濃度データ(横軸)は鉄溶解率(縦軸) の分母になるため, 逆相関関係のみから意味のある 結論を導き出すことはできない。しかし, 複数の数値 モデル計算と観測データを組み合わせた国際共同 研究(GESAMP: Group of Experts on the Scientific Aspects of Marine Environmental Protection, http://www.gesamp.org/work/groups/38)では、この逆 相関関係を説明するためにいくつか提案されていた 仮説から一つの結論を導き出した[Ito et al., 2019]。 複雑なプロセスに基づいた数値モデルでは、鉱物起 源鉄に比べて鉄溶出速度の速い燃焼起源鉄を考慮 に入れることで,エアロゾル中鉄濃度と鉄溶解率の逆 相関関係に関する観測再現性が向上したことから、 実環境で重要なメカニズムが明らかとなった[Ito et al., 2019]。同時に、複数の数値モデル間でその仕様が それぞれ異なり,結果として燃焼起源鉄の寄与率の 予測は大きく異なった。そのため、同位体[Conway et al., 2019; Kurisu et al., 2021]やマグネタイト[Moteki et al., 2017; Lamb et al., 2021]の観測データが, モデル で予測される人為起源鉄の寄与の制約条件として考 慮された。その結果,数値モデルは西部北太平洋に



図5 西部北太平洋における微小粒子中(< 2.5 µm)の鉄 安定同位体比の観測(横軸)と数値モデル予測(縦軸)の 比較[*Kurisu et al.*, 2021]。CC BY 4.0

おいて人為起源の影響を受けた微小粒子中の鉱物 起源より低い鉄の安定同位体比の観測データをよ く再現できた(図 5, [Kurisu et al., 2021])。この結果 は,モデルで予測された燃焼起源鉄の寄与率の正 確さを定量的に裏付けた。それでもなお,過去の観 測では鉱物起源鉄に着目されており、燃焼起源鉄に 関する知見が不十分である。さらに,北大西洋に比 べて,北太平洋(極域含む)・インド太平洋・南太洋に おいて船上観測は少ない状況である。数値モデルの 観測再現性の向上には、より長期間・広範囲での観 測およびその結果に基づく室内実験が不可欠である [Myriokefalitakis et al., 2018]。また, 海洋には多種多 様な生物が存在するため,海域の生物生産を制限 する微量元素は複数からなり,鉄以外の栄養塩の大 気からの供給に対する効果を調査する観測および数 値モデルによる研究は,発展途上にある[Browning et *al.*, 2021]<sub>o</sub>

近年,異常気象により引き起こされた大規模森林 火災は,海洋へ供給される栄養塩の発生源として 関心が集まっている。大気モデルが観測研究と融合 され,森林火災により供給される溶存鉄の重要性が 示された[Ito et al., 2020b; Hamilton et al., 2022]。さら には現代および古気候の観測データから,森林火災 により供給される溶存鉄と海洋生態系[Tang et al., 2021]および気候変動[Han et al., 2020]との関連性が 示された。しかし, 数値モデル予測による植生燃焼起 源鉄は観測による制約条件が限定的であり,室内実 験では鉄溶出速度が算出されていない。さらに、火 山灰などモデルで考慮されていない鉄発生源が存 在する[Duggen et al., 2007; Hamme et al., 2010]。そ のことから、モデルで考慮されていない栄養塩の供 給源やその発生・変質過程を明らかにすることが望ま れる。特に,南大洋域では,観測データ数としては少 ないながらも,モデルでは再現できないほど,エアロ ゾル中で高い溶存鉄濃度を示す観測データが得ら れた[Ito et al., 2019]。一方, 中国における観測結果 によると,霧の気象条件下で数値モデルが鉄溶解率 の観測結果を過小評価した[Shi et al., 2019]。海洋大 気中で,霧が発生した際の観測データを取得するな ど[Iwamoto et al., 2011],様々な気象条件下での海 洋大気における溶存鉄の動態に関する理解を深め る必要がある。

#### 4. 将来展望

本コアテーマについては,表1にまとめたように,大 気科学と海洋科学両方の研究コミュニティの参加に よる統合的な観測や室内実験,数値モデリングによ る研究が, 必要不可欠である[宮崎, 2020; 岩本ら, 2021]。海洋から大気への物質供給と気候影響評価 については、船舶等による、気体・エアロゾル・雲・降 水(降雪)および表層海水のデータ取得をセットとし た包括的な同時観測や,海洋微生物を用いたメソコ スム-大気観測実験が有効な手段と考えられる。メソ コスム実験のように制御された条件下で得られた知 見を数値モデルで活用することにより,船舶観測デ ータに対する数値モデル予測精度の改善へとつな がることが期待される。また、より長期の時間スケール の変動を理解するため,海洋大気境界層内の長期 観測によるエアロゾルや関連パラメータの時系列デ ータの蓄積,人工衛星による海洋表層データとのリン クも重要となる。特に気候応答感度が高い北極域や 北太平洋亜寒帯域などでの観測, プロセス研究の積 み重ねが今後さらに重要と考えられる。これらは SOLAS (https://www.solas-int.org/) の他, CATCH ( Cryosphere and Atmospheric Chemistry, https://www.catchscience.org/home ) 🔅 BEPSII

(Biogeochemical Exchange Processes at the Sea-Ice Interfaces,

https://sites.google.com/site/bepsiiwg140/home)にも 深く関連し, 連携の重要性がさらに増していくと考え られる[例えば, 飯塚ら, 2021]。

研究の一例として,海洋生物活動の影響を受けた エアロゾルの発生源からゲノム情報をトレーサー情報 として取得することなどが挙げられる。その結果を基 に,主な海洋生物由来のエアロゾルの雲凝結核能お よび氷晶核能を評価する。その上で,海洋から放出 され,雲凝結核および氷晶核の形成に対するエアロ ゾルの役割を数値モデル化することなどは,海洋生 物活動の気候影響をより正確に見積もる上で意義深 い。

気体・エアロゾル・雲・降水(降雪)および表層海水 の同位体・多元素・鉱物組成などの包括的な同時観 測データは,海洋表層に沈着する物質の起源を示 すツールとして利用できる可能性が高い。海水中で の人為燃焼起源のトレーサーとして,海水をフィルタ ーろ過した液体に含まれる DBC (Dissolved Black Carbon)の利用が注目を集めている [e.g., Nakae et al., 2017]。複素散乱振幅測定手法[Moteki, 2020, 2021]は,水中に懸濁する固体粒子を個別粒子で計 数可能ため,海水懸濁粒子の分析に応用可能であり, 大気海洋間の物質移動を定量的に解析できることが 期待される。そのため,数値モデルの制約条件として 有効に働き,観測と数値モデルを組み合わせること で,生物地球化学的な物質循環の理解をより深化さ せられると考えられる。

SDGs(持続可能な開発目標)では、人間活動の海 洋環境への影響として,海洋プラスチックが大きく取 り上げられている。マイクロプラスチックと呼ばれる大 きさ5mmから1µmの微小なプラスチック粒子は,生 物に摂取されるなど海洋生態系へ負荷を与えている。 ところが、マイクロプラスチックは大気中でも広範囲で 観測されるようになり[Allen et al., 2019], その健康被 害への影響だけでなく, 室内実験による研究からは 氷晶核としての気候への影響も示唆された[Ganguly & Ariya, 2019]。海洋大気マイクロプラスチックの発生 源として,海洋表層起源[Allen et al., 2020]やブレー キやタイヤなど陸域起源[Evangeliou et al., 2020]など が提案された。しかし、数値モデル結果は観測デー タにより検証されておらず,発生源インベントリーや 気候へ与える影響の定量的な評価に至る決定的な 証拠は得られていない。マイクロプラスチックの測定

法の確立[Zhang et al., 2020; Zhu et al., 2020]を含め, 全球分布を把握し,数値モデルにより定量的に気候 へ与える影響を理解するためには,さらなる研究が 必要である。

GESAMP は、海洋環境保護に関して科学的側面 を専門家が議論し、環境問題解決への具体策を提 案することを目的としている。GESAMP の WG (Working Group) 38 は 2008 年から様々な大気ー海 洋間の相互作用研究に取り組み、2018 年報告書で は、大気から海洋への窒素沈着に関して[GESAMP, 2018]、2021 年報告書では、海洋から大気への DMS 放出と大気から海洋への主に鉄沈着に関してま とめられた[GESAMP, 2021]。エアロゾルによる栄養 塩供給は、陸域同様[持田ら、2022]、海洋生態系へ 過剰に沈着することにより生態系の富栄養化を引き 起こし、生物多様性の損失の要因となることに注目さ れている。そのため、自然科学の専門家に加えて、 政策科学の専門家が議論に加わり、環境問題解決 への政策立案に向けて議論される。

本稿で記述した内容は、様々な物質の大気-海洋 間の相互作用研究を推進する SOLAS と連携して、 有機物・栄養塩の個別に行われてきた観測・実験・モ デル研究を融合する必要性を示すものである。さら に今後は、海洋内の微量金属元素の循環を明らか にしている GEOSTRACES と連携して、北極海・北太 平洋・インド洋・南太洋において船上観測と大気・海 洋物質循環モデル研究の展開が期待される。また、 GEOTRACES の後継のフェーズとして、微量元素の 分布と海盆スケールの広域なゲノム情報を含めた生 物情報とのリンクを図る Bio-GeoSCAPES が国際的に 計画されている。北太平洋においても大気からの栄 養物質沈着が駆動する海洋の生物過程の実態を把 握するために、日本から Bio-GeoSCAPES に積極的 に関与することが期待される。

#### 謝辞

宮川拓真博士,植松光夫博士ならびに匿名の日

究極のゴール は何か。	・人類は地球規模での大気汚染や温暖化を引き起こし、人新世と呼ばれる時代に突入した。それらの人為的な地球環境変化が大気化学・陸域海洋生態系相互作用へ与える影響およびその影響による気候フィードバックを本質的に理解し、統合的に評価・予測することは重要である。 従って、観測・実験・数値モデル研究を融合し、人新世における「大気微量成分と海洋生物活動の相互作用による気候影響と海洋生態系へ与える影響およびその気候フィードバックを明らかにすること」が究極のゴールとなる。
この10年での 世界的な動向 や日本での研 究の強み	<ul> <li>・海洋生物-大気エアロゾルの化学・物理過程-雲凝結核能・氷晶核能への影響に関する統合的な研究が国内外で進んだ。</li> <li>・国内では北太平洋を中心として船舶による大気化学観測データが蓄積された。</li> <li>・有機物・鉄・反応性窒素の大気-海洋間収支に関する分野横断の観測・モデルの統合研究体制が構築された。</li> <li>・同位体を用いた解析や蛍光法を用いた成分解析など先端的な計測/分析による洋上観測により海洋大気エアゾロル組成の新たな情報が蓄積された。</li> <li>・北太平洋亜寒帯において、海洋内部の鉄の分布や循環に関する知見が蓄積された。</li> <li>・鉱物起源鉄に加えて燃焼起源鉄を新たに考慮することで、大気モデルによるエアロゾル中鉄 濃度および鉄溶解率の観測再現性が向上し、燃焼起源鉄は鉱物起源鉄より効率的に栄養塩 施肥効果に働くことが海洋モデルから示唆された。</li> </ul>
現在の重要な ギャップ	<ul> <li>・表層海水から大気への有機物の供給過程・量と、その雲凝結核能・氷晶核形成能、雲降水過程への影響に関する気象・気候システムとしての総合的な理解が不十分である。</li> <li>・各海域において海洋生態系に影響を与える大気成分の供給量および起源に関する理解が未だ不十分である。</li> <li>・北極海・北太平洋・インド太平洋・南太洋において、大気・海洋パラメータを同期させた統合的な船上観測やメソコスム等の現場実験による検証データが少ない。</li> <li>・海洋-大気境界層での有機物と栄養塩の相互作用の理解が不足している。</li> </ul>
それらを踏ま え, 今後 10 年 の研究をドライ ブする key question or 作 業仮説	<ul> <li>・地球温暖化や海洋酸性化および海洋への栄養塩の沈着量の変化に伴って、海洋から大気へのエアロゾルや前駆体の放出量・質はどう変化し、雲凝結核・氷晶核を介してどの程度の正または負の気候フィードバックが生じるのかを明らかにする。</li> <li>・大気から海洋への様々な栄養成分および阻害成分の供給に対する海洋生態系(基礎生産など)の応答を定量化する。</li> <li>・北極海・北太平洋・インド洋・南太洋において長期的な大気・海洋統合船上観測と大気・海洋物質循環モデル研究を展開する。</li> <li>・大気化学だけでなく、海洋分野も含め、個別に行われてきた有機物・栄養塩の観測・実験・モデル研究を融合するとともに、分野横断型研究へと発展させる。</li> </ul>
主な連携相手	・日本海洋学会,日本気象学会,日本地球化学会,日本エアロゾル学会,SOLAS,CATCH, BEPSII,GESAMP,GEOTRACES,IMBeR

表 1. 海洋エアロゾル・生物の気候フィードバックに関する総括。

本大気化学会員の方々から,本稿に対する貴重な コメント・ご助言をいただきました。深く感謝申 し上げます。

#### 参考文献

- Allen, S. et al. (2019), Atmospheric transport and deposition of microplastics in a remote mountain catchment, *Nat. Geosci.*, 12, 339–344, doi.org/10.1038/s41561-019-0335-5.
- Allen, S. et al. (2020), Examination of the ocean as a source for atmospheric microplastics, *PloS one*, 15, e0232746, doi.org/10.1371/journal.pone.0232746.
- Altieri, K. E., S. E. Fawcett & M. G. Hastings (2021), Reactive nitrogen cycling in the atmosphere and ocean, *Ann. Rev. Earth and Planet. Sci.*, 49, 523-550, doi.org/10.1146/annurev-earth-083120-052147.
- Baker, A. R. & T. D. Jickells (2006), Mineral particle size as a control on aerosol iron solubility. *Geophys. Res. Lett.*, 33,

L17608, doi.org/10.1029/2006GL026557.

- Baker, A. R. et al. (2017), Observation- and model-based estimates of particulate dry nitrogen deposition to the oceans, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8189-8210, doi.org/10.5194/acp-17-8189-2017.
- Baker, A. R. et al. (2021), Changing atmospheric acidity as a modulator of nutrient deposition and ocean biogeochemistry, *Sci. Adv.*, 7, 28, eabd8800, doi.org/ 10.1126/sciadv.abd8800.
- Berndt, T. et al. (2018), Accretion Product Formation from Selfand Cross-Reactions of RO2 Radicals in the Atmosphere, *Angew. Chem. Int. Edt.*, 57(14), 3820-3824, doi:10.1002/anie.201710989.
- Bigg, E. K. (1973), Ice nucleus concentrations in remote areas, J. Atmos. Sci., 30 (6), 1153-1157, doi.org/10.1175/1520-0469(1973)030<1153:INCIRA>2.0.CO;2.
- Bock, J. et al. (2018), Evaluation of ocean dimethylsulfide concentration and emission in CMIP6 models, *Biogeosciences*, 18, 3823–3860, doi.org/10.5194/bg-18-3823-2021.
- Boyd, P. W., D. S. Mackie & K. A. Hunter (2010), Aerosol iron deposition to the surface ocean-Modes of iron supply and biological responses, *Mar. Chem.*, 120, 128-143, doi.org/10.1016/j.marchem.2009.01.008.
- Browning, T. J., E. P. Achterberg, A. Engel & E. Mawji (2021), Manganese co-limitation of phytoplankton growth and major nutrient drawdown in the Southern Ocean, *Nat Commun.*, 12, 884, doi.org/10.1038/s41467-021-21122-6.
- Brüggemann, M., N. Hayeck & C. George (2018), Interfacial Photochemistry at the ocean surface is a global source of organic vapors and aerosols, *Nature Comm.*, 9, 1, 1-8, doi.org/10.1038/s41467-018-04528-7.
- Burrows, S. M., W. Elbert, M. G. Lawrence & U. Pöschl (2009), Bacteria in the global atmosphere– part 1: review and synthesis of literature data for different ecosystems., *Atmos. Chem. Phys.* 9, 9263–9280, doi.org/10.5194/acp-9-9263-2009.

- Charlson, R. J., J. E. Lovelock, M. O. Andreae & S. G. Warren (1987), Oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo and climate, *Nature*, 326, 655-661, doi.org/10.1038/326655a0.
- Conway, T. M. et al. (2019), Tracing and constraining anthropogenic aerosol iron fluxes to the North Atlantic Ocean using iron isotopes, *Nat. Commun.*, 10, 2628. doi.org/10.1038/s41467-019-10457-w.
- Covert, D. S., V. N. Kapustin, T. S. Bates & P. K. Quinn (1996), Physical properties of marine boundary layer aerosol particles of the Mid-pacific in relation to sources and meteorological transport, *J. Geophys. Res.*, 101, 6919-6930, doi.org/10.1029/95JD03068.
- Creamean, J. M. et al. (2019), Ice nucleating particles carried from below a phytoplankton bloom to the Arctic atmosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 46, 8572-8581, doi.org/10.1029/2019GL083039.
- Crutzen, P. J. & E. F. Stoermer (2000), The Anthropocene, *IGBP Global Change Newsl.*, 41, 17-18, http://www.igbp.net/download/18.316f1832132347017758 0001401/1376383088452/NL41.pdf.
- de Leeuw, G. et al. (2011), Production flux of sea spray aerosol, *Rev. Geophys.*, 49, RG2001, doi:10.1029/2010RG000349.
- Ding, J. et al. (2017), Intercomparison of NOx emission inventories over East Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 10125-10141, doi.org/10.5194/acp-17-10125-2017.
- DeMott, P. J. et al. (2016), Sea spray aerosol as a unique source of ice nucleating particles, *P. Nat. Acad. Sci. USA*, 113 (21), 5797–5803, doi.org/10.1073/pnas.1514034112.
- Dobashi, T. et al. (2022), Marine nitrogen fixation as a possible source of atmospheric water-soluble organic nitrogen aerosols in the subtropical North Pacific, submitted in.
- Duce, R. A. et al. (2008), Impacts of atmospheric anthropogenic nitrogen on the open ocean, *Science*, 320, 893-897.
- Duggen, S., P. Croot, U. Schacht & L. Hoffmann (2007), Subduction zone volcanic ash can fertilize the surface ocean and stimulate phytoplankton growth: Evidence from

biogeochemical experiments and satellite data, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L01612, doi:10.1029/2006GL027522.

- Elguindi, N. et al. (2020), Intercomparison of magnitudes and trends in anthropogenic surface emissions from bottom-up inventories, top-down estimates, and emission scenarios, *Earth's Future*, 8, e2020EF001520, doi.org/10.1029/2020EF001520.
- 江波進一,石塚紳之介,羽馬哲也,猪俣敏(2022),
   大気化学の将来構想 2022-2032:各論第1集,未
   来の大気化学のための室内実験,大気化学研 究,47(本号),047A04.
- Evangeliou, N. et al. (2020), Atmospheric transport is a major pathway of microplastics to remote regions, *Nat. Commun.*, 11, 3381, doi.org/10.1038/s41467-020-17201-9.
- Fröhlich-Nowoisky, J. et al. (2016), Bioaerosols in the Earth system: Climate, health, and ecosystem interactions, *Atmos. Res.*, 182, 346-376, doi.org/10.1016/j.atmosres.2016.07.018.
- Fung, K. M. et al. (2022), Exploring DMS oxidation and implications for global aerosol radiative forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, accepted.
- Ganguly, M. & P. A. Ariya (2019), Ice nucleation of model nanomicro plastics: a novel synthetic protocol and the influence of particle capping at diverse atmospheric environments, *ACS Earth Sp. Chem.*, 3, 1729-1739, doi.org/10.1021/acsearthspacechem.9b00132.
- Gantt, B. & N. Meskhidze (2013), The physical and chemical characteristics of marine primary organic aerosol: a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(8), 3979-3996, doi.org/10.5194/acp-13-3979-2013.
- GESMPA (2018), The Magnitude and Impacts of Anthropogenic Atmospheric Nitrogen Inputs to the Ocean, WMO, available at http://www.gesamp.org/publications/themagnitude-and-impacts-of-anthropogenic-atmosphericnitrogen-inputs-to-the-ocean.
- GESMPA (2021), The Changing Acidity of the Global Atmosphere and Ocean and its Impact on Air/Sea Chemical

Exchange, WMO, available at https://library.wmo.int/index.php?lvl=notice\_display&id= 22078.

- Gong, S., L. A. Barrie & J-P. Blanchet (1997), Modeling sea salt aerosols in the atmosphere. 1: Model development, J. Geophys. Res, 102, 3805-3818, doi.org/10.1029/96JD02953.
- Guo, H. et al. (2017), Fine particle pH and gas–particle phase partitioning of inorganic species in Pasadena, California, during the 2010 CalNex campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 5703–5719, doi.org/10.5194/acp-17-5703-2017.
- Hamasaki, K. et al. (2019), Microbial community dynamics in sea surface microlayer and sea spray aerosols observed in coastal inlets of Japan, *SOLAS Open Science Conference*.
- Hamme, R. C. et al. (2010), Volcanic ash fuels anomalous plankton bloom in subarctic northeast Pacific, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L19604, doi:10.1029/2010GL044629.
- Hamilton, D. S. et al. (2022), Earth, Wind, Fire, and Pollution: Aerosol nutrient sources and impacts on ocean biogeochemistry, *Annu. Rev. Mar. Sci.*, 14:1, 303-330, doi.org/10.1146/annurev-marine-031921-013612.
- Harrison, P. J. et al. (1999), Comparison of factors controlling phytoplankton productivity in the NE and NW subarctic Pacific gyres, *Progr. Oceanogr.*, 43, 205-234.
- Han, Y. et al. (2020), Asian inland wildfires driven by glacialinterglacial climate change, *Proc. Natl Acad. Sci.*, 117, 5184-5189, doi.org/10.1073/pnas.1822035117.
- Hu, W. et al. (2017), Concentration and viability of airborne bacteria over the Kuroshio extension region in the northwestern Pacific Ocean: Data from three cruises, J. Geophys. Res. Atmos., 122, 12892-12905, doi:10.1002/2017JD027287.
- 飯塚芳徳, 的場澄人, 宮崎雄三 (2021), アイスコアー極域海 氷ー海洋エアロゾル研究の新展開, *大気化学研究*, 44, 044A01.
- 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 cold air outbreak in early winter, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2021GL094646, doi.org/10.1029/2021GL094646.

- Itahashi, S., H. Hayami, I. Uno, X. Pan & M. Uematsu (2016), Importance of coarse-mode nitrate produced via sea salt as atmospheric input to East Asian oceans, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 5483- 5491, doi:10.1002/2016GL068722.
- Ito, A. & M. Kawamiya (2010), Potential impact of ocean ecosystem changes due to global warming on marine organic carbon aerosols, *Global Biogeochem. Cycles*, 24, GB1012. doi.org/10.1029/2009GB003559.
- Ito, A., G. Lin & J. E. Penner (2014), Reconciling modeled and observed atmospheric deposition of soluble organic nitrogen at coastal locations, *Global Biogeochem. Cycles*, 28, 617-630, doi.org/10.1002/2013GB004721.
- Ito, A. et al. (2019), Pyrogenic iron: The missing link to high iron solubility in aerosols, *Sci. Adv.*, 5, eaau7671, doi.org/10.1126/sciadv.aau7671.
- Ito, A., Y. Ye, A. Yamamoto, M. Watanabe & M. N. Aita (2020a), Responses of ocean biogeochemistry to atmospheric supply of lithogenic and pyrogenic iron-containing aerosols, *Geol. Mag.*, 157, 741-756, doi.org/10.1017/S0016756819001080.
- Ito, A. et al. (2020b), Evaluation of aerosol iron solubility over Australian coastal regions based on inverse modeling: Implications of bushfires on bioaccessible iron concentrations in the Southern Hemisphere, *Prog. Earth Planet. Sci.*, 7, 42, doi.org/10.1186/s40645-020-00357-9.
- Ito, A., Y. Ye, C. Baldo & Z. Shi (2021), Ocean fertilization by pyrogenic aerosol iron, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 4, 30, doi.org/10.1038/s41612-021-00185-8.
- 岩本洋子 (2014),「波の花」に含まれる有機物を測る, 2014 年度日本地球化学会第61回年会講演要旨集, doi.org/10.14862/geochemproc.61.0\_276.
- Iwamoto, Y. et al. (2011), Biogeochemical implications of increased mineral particle concentrations in surface waters of the northwestern North Pacific during an Asian dust event, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L01604,

doi.org/10.1029/2010GL045906.

- 岩本洋子ら (2021),海洋学の10年展望2021: 大気海洋境界, *海の研究*, 30, 199-225.
- Iwata, A. & A. Matsuki (2018), Characterization of individual ice residual particles by the single droplet freezing method: a case study in the Asian dust outflow region, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 1785-1804, doi.org/10.5194/acp-18-1785-2018.
- Jahn, L. G. et al. (2020), Biomass combustion produces iceactive minerals in biomass-burning aerosol and bottom ash, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, 117 (36) 21928-21937, doi.org/10.1073/pnas.1922128117.
- Jickells, T. D. et al. (2005), Global iron connections between desert dust, ocean biogeochemistry, and climate, *Science*, 308(5718), 67-71, doi.org/10.1126/science.1105959.
- Jickells, T. D., et al. (2017), A reevaluation of the magnitude and impacts of anthropogenic atmospheric nitrogen inputs on the ocean, *Global Biogeochem. Cycles*, 31, 289-305, doi:10.1002/2016GB005586.
- 金谷有剛, 竹谷文一, 宮川拓真 (2019), 大気中蛍光性バイ オエアロゾル粒子のオンライン計測, *地球環境*, 24(1), 53-61.
- Kanji, Z. A. et al. (2017), Overview of ice nucleating particles, *Meteorol. Monogr.*, 58, 1.1–1.33, doi.org/10.1175/AMSMONOGRAPHS-D-16-0006.1.
- Kawai, H. et al. (2019), Significant improvement of cloud representation in the global climate model MRI-ESM2, *Geosci. Model Dev.*, 12, 2875–2897, doi.org/10.5194/gmd-12-2875-2019.
- Kawamiya, M., T. Hajima, K. Tachiiri, S. Watanabe & T. Yokohata (2020), Two decades of Earth system modeling with an emphasis on Model for Interdisciplinary Research on Climate (MIROC). *Prog. Earth Planet. Sci.*, 7, 64, doi.org/10.1186/s40645-020-00369-5.
- Kawana, K., K. Matsumoto, F. Taketani, T. Miyakawa & Y. Kanaya (2021), Fluorescent biological aerosol particles over the central Pacific Ocean: covariation with oceansurface biological activity indicators, *Atmos. Chem. Phys.*

21, 15969-15983, doi.org/10.5194/acp-21-15969-2021.

- Krishnamurthy, A. et al. (2009), Impacts of increasing anthropogenic soluble iron and nitrogen deposition on ocean biogeochemistry, *Global Biogeochem. Cycles*, 23, GB3016, doi.org/10.1029/2008GB003440.
- 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.org/10.5194/acp-21-16027-2021.
- 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.org/10.5194/acp-20-12761-2020.
- Lamb, K. D. et al. (2021), Global-scale constraints on lightabsorbing anthropogenic iron oxide aerosols, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 4, 15. doi.org/10.1038/s41612-021-00171-0.
- Mahowald, N. M. et al. (2018), Aerosol trace metal leaching and impacts on marine microorganisms, *Nat. Commun.*, 9, 2614, doi.org/10.1038/s41467-018-04970-7.
- Maki, T. et al. (2018), Long-range-transported bioaerosols captured in snow cover on Mount Tateyama, Japan: impacts of Asian-dust events on airborne bacterial dynamics relating to ice-nucleation activities, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 8155-8171, doi.org/10.5194/acp-18-8155-2018.
- Martin, J. H. (1990a), Glacial-interglacial CO<sub>2</sub> change: The iron hypothesis, *Paleoceanography*, 5(1), 1-13, doi.org/10.1029/PA005i001p00001.
- Martin, J. H. (1990b), A new iron age, or a ferric fantasy, US JGOFS Newsl., 1(4), 5-6.
- Martin, J., R. Gordon & S. Fitzwater (1990), Iron in Antarctic waters, *Nature*, 345, 156-158, doi.org/10.1038/345156a0.
- McCluskey, C. S. et al. (2018), Observations of ice nucleating particles over Southern Ocean waters, *Geophys. Res. Lett.*, 45, 11,989-11,997, doi.org/10.1029/2018GL079981.
- McFarquhar, G. M. et al. (2020), Observations of Clouds, Aerosols, Precipitation, and Surface Radiation over the

Southern Ocean: An Overview of CAPRICORN, MARCUS, MICRE and SOCRATES. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 2020, 1, 1-92, doi.org/10.1175/BAMS-D-20-0132.1.

- Meskhidze, N. et al. (2019), Perspective on identifying and characterizing the processes controlling iron speciation and residence time at the atmosphere-ocean interface, *Mar. Chem.*, 217, 103704, doi.org/10.1016/j.marchem.2019.103704.
- Misumi, K. et al. (2021), Slowly sinking particles underlie dissolved iron transport across the Pacific Ocean, *Glob. Biogeochem. Cycle*, 21115, doi.org/10.1029/2020GB006823.
- Miyakawa, T. et al. (2015), Ground-based measurement of fluorescent aerosol particles in Tokyo in the spring of 2013: Potential Impacts of non-biological materials on autofluorescence measurements of airborne particles, J. Geophys. Res. Atmos. 120, 1171-1185, doi:10.1002/2014JD022189.
- Miyakawa, T. et al. (2022), Shipborne measurements of aerosol particles over the Southern Ocean in the late Austral summer of 2017: Insights into cloud formation, in preparation.
- Miyazaki, Y. et al. (2018), Chemical transfer of dissolved organic matter from surface seawater to sea spray watersoluble organic aerosol in the marine atmosphere, *Sci. Rep.*, 8, 14861, doi:10.1038/s41598-018-32864-7.
- Miyazaki, Y. et al. (2020), New index of organic mass enrichment in sea spray aerosols linked with senescent status in marine phytoplankton, *Sci. Rep.*, 10, 17042, doi: 10.1038/s41598-020-73718-5.
- 宮崎雄三 (2020),海洋表層の生物生産が駆動する海洋大 気有機エアロゾルの生成,*エアロゾル研究*,35(3),183-191.
- 持田陸宏,伊藤昭彦,松田和秀,谷晃(2022),大気化学の将来構想 2022-2032:各論第1集,陸域生態系と大気化学,大気化学研究,47(本号),047A05.
- Monahan, E. C., D. E. Spiel & K. L. Davidson (1986), A model

of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption, in *Oceanic Whitecaps and Their Role in Air-Sea Exchange Processes*, edited by E. C. Monahan and G. MacNiocaill, pp. 167-174, Reidel, Dordrecht, Netherlands.

- Moore, R. A. et al. (2021), Wildland fire as an atmospheric source of viable microbial aerosols and biological ice nucleating particles, *ISME J.*, 15, 461-472, doi.org/10.1038/s41396-020-00788-8.
- Moteki, N. et al. (2017), Anthropogenic iron oxide aerosols enhance atmospheric heating, *Nat. Commun.*, 8, 15329, doi.org/10.1038/ncomms15329.
- 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. Radiat. Transfer*, 243, 106811, doi.org/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(13), 20688-20714, doi.org/10.1364/OE.423175.
- Mülmenstädt, J. et al. (2021), An underestimated negative cloud feedback from cloud lifetime changes. *Nat. Clim. Chang.*, 11, 508-513, doi.org/10.1038/s41558-021-01038-1.
- Myriokefalitakis, S. et al. (2018), Reviews and syntheses: the GESAMP atmospheric iron deposition model intercomparison study, *Biogeosciences*, 15, 6659-6684, doi.org/10.5194/bg-15-6659-2018.
- Myriokefalitakis, S., M. Gröger, J. Hieronymus & R. Döscher (2020), An explicit estimate of the atmospheric nutrient impact on global oceanic productivity, *Ocean Sci.*, 16, 1183-1205, doi.org/10.5194/os-16-1183-2020.
- Nakane, M., T. Ajioka & Y. Yamashita (2017), Distribution and Sources of Dissolved Black Carbon in Surface Waters of the Chukchi Sea, Bering Sea, and the North Pacific Ocean, *Front. Earth Sci.*, 5, 34, doi: 10.3389/feart.2017.00034.
- Nishino, S. et al. (2011), Enhancement/reduction of biological

pump depends on ocean circulation in the sea-ice reduction regions of the Arctic Ocean, *J. Oceanogr.*, 67, 305-314, doi.org/10.1007/s10872-011-0030-7.

- Nishioka, J. et al. (2021), A review: iron and nutrient supply in the subarctic Pacific and its impact on phytoplankton production, J. Oceanogr., 77, 561-587, doi.org/10.1007/s10872-021-00606-5.
- Novak, G. A. et al. (2021), Rapid cloud removal of dimethyl sulfide oxidation products limits SO<sub>2</sub> and cloud condensation nuclei production in the marine atmosphere, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A*, 118, e2110472118, doi.org/10.1073/pnas.2110472118.
- O'Dowd, C. D. et al. (2004), Biogenically driven organic contribution to marine aerosol, *Nature*, 431, 676-680, doi.org/10.1038/nature02959.
- O'Dowd, C. D. et al. (2008), A combined organic-inorganic seaspray source function, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L01801, doi:10.1029/2007GL030331.
- Ovadnevaite, J. et al. (2014), A sea spray aerosol flux parameterization encapsulating wave state, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1837-1852, doi.org/10.5194/acp-14-1837-2014.
- Prather, K. A. et al. (2013), Bringing the ocean into the laboratory to probe the chemical complexity of sea spray aerosol, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A*, 110, 7550-7555, doi.org/10.1073/pnas.1300262110.
- Quinn, P. & T. Bates (2011), The case against climate regulation via oceanic phytoplankton sulphur emissions, *Nature*, 480, 51-56, doi.org/10.1038/nature10580.
- Šantl-Temkiv, T. et al. (2020), Bioaerosol field measurements: Challenges and perspectives in outdoor studies, *Aerosol Science and Technology*, 54, 520-546, doi:10.1080/02786826.2019.1676395.
- Schmale, J. et al. (2019), Overview of the Antarctic Circumnavigation Expedition: Study of Preindustrial-like Aerosols and Their Climate Effects (ACE-SPACE), B. Am. Meteorol. Soc., 100, 2260-2283, doi.org/10.1175/BAMS-D-18-0187.1.

- Schmale, J., P. Zieger, & A. M. L. Ekman (2021), Aerosols in current and future Arctic climate, *Nat. Clim. Chang.*, 11, 95-105, doi.org/10.1038/s41558-020-00969-5.
- Sellegri, K., A. Nicosia, & E. Freney (2021), Surface ocean microbiota determine cloud precursors. *Sci. Rep.*, 11, 281, doi.org/10.1038/s41598-020-78097-5.
- Shi, J. et al. (2020), High productivity of soluble iron by aerosol acidification in fog, *Geophys. Res. Lett.*, e2019GL086124, doi.org/10.1029/2019GL086124.
- Sholkovitz, E. R., P. N. Sedwick, T. M. Church, A. R. Baker & C. F. Powell (2012), Fractional solubility of aerosol iron: Synthesis of a global-scale data set, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 89, 173-189, doi.org/10.1016/j.gca.2012.04.022.
- Somes, C. J., A. Landolfi, W. Koeve & A. Oschlies (2016), Limited impact of atmospheric nitrogen deposition on marine productivity due to biogeochemical feedbacks in a global ocean model, *Geophys. Res. Lett.*, 43, 4500-4509, doi.org/10.1002/2016GL068335.
- Steinke, I. et al. (2022), A numerical framework for simulating the atmospheric variability of supermicron marine biogenic ice nucleating particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 847-859, doi.org/10.5194/acp-22-847-2022.
- Takemura, T., T. Nakajima, A. Higurashi, S. Ohta, & N. Sugimoto (2003), Aerosol distributions and radiative forcing over the Asian Pacific region simulated by Spectral Radiation-Transport Model for Aerosol Species (SPRINTARS), J. Geophys. Res., 108, 8659, doi.org/10.1029/2002JD003210.
- Taketani, F. et al. (2013), Measurement of fluorescence spectra from atmospheric single submicron particle using laserinduced fluorescence technique, *Journal of Aerosol Science*, 58, 1-8, doi.org/10.1016/j.jaerosci.2012.12.002.
- Taketani, F. et al. (2018), Seasonal response of north western Pacific marine ecosystems to deposition of atmospheric inorganic nitrogen compounds from East Asia, *Sci. Rep.*, 8(1), 9324, doi.org/10.1038/s41598-018-27523-w.

- Tang, W. et al. (2021), Widespread phytoplankton blooms triggered by 2019–2020 Australian wildfires, *Nature*, 597, 370-375, doi.org/10.1038/s41586-021-03805-8.
- Tanimoto, H., S. Kameyama, T. Iwata, S. Inomata & Y. Omori (2014), Measurement of air-sea exchange of dimethyl sulfide and acetone by PTR-MS coupled with gradient flux technique, *Environ. Sci. Technol.* 2014, 48, 1, 526–533, doi.org/10.1021/es4032562.
- Thames, A. B. et al. (2020), Missing OH reactivity in the global marine boundary layer, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 4013-4029, https://doi.org/10.5194/acp-20-4013-2020.
- Tobo, Y. (2016), An improved approach for measuring immersion freezing in large droplets over a wide temperature range, *Sci. Rep.*, 6, 32930, doi: 10.1038/srep32930.
- Tobo, Y. et al. (2020), Seasonal trends of atmospheric ice nucleating particles over Tokyo, J. Geophys. Res. Atmos., 125, e2020JD033658, doi.org/10.1029/2020JD033658.
- 植松光夫 (2013), ―2009 年度日本海洋学会賞受賞記念論 文―大気圏を通して海洋に運ばれる化学物質に関する 研究, *海の研究*, 22(2), 35-45.
- Uetake, J. et al. (2020), Airborne bacteria confirm the pristine nature of the Southern Ocean boundary layer, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, 117 (24), 13275-13282, doi.org/ 10.1073/pnas.2000134117.
- Veres, P. R. et al. (2020), Global airborne sampling reveals a previously unobserved dimethyl sulfide oxidation mechanism in the marine atmosphere, *Proc. Natl. Acad. Sci.* USA., 117, 4505-4510, doi.org/10.1073/pnas.1919344117.
- Vergara-Temprado, J. et al. (2018), Strong control of Southern Ocean cloud reflectivity by ice-nucleating particles, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 115 (11), 2687-2692, doi.org/10.1073/pnas.1721627115.
- Welti, A. et al. (2020), Ship-based measurements of ice nuclei concentrations over the Arctic, Atlantic, Pacific and Southern oceans, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 15191-15206, doi.org/10.5194/acp-20-15191-2020.

- Wilson, T. W. et al. (2015), A marine biogenic source of atmospheric ice-nucleating particles, *Nature*, 525(7568), 234-238, doi.org/10.1038/nature14986.
- Yoshizue, M. et al. (2019), Individual particle analysis of marine aerosols collected during the north-south transect cruise in the Pacific Ocean and its marginal seas, *J. Oceanogr.*, 75, 513-524, doi.org/10.1007/s10872-019-00519-4.
- 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.org/10.1038/s41586-019-1638-9.
- Xiu, P. & F. Chai (2021), Impact of atmospheric deposition on carbon export to the deep ocean in the subtropical Northwest Pacific, *Geophys. Res. Lett.*, 48, e2020GL089640, doi.org/10.1029/2020GL089640.
- Zelinka, M. D. et al. (2020), Causes of higher climate sensitivity in CMIP6 models, *Geophys. Res. Lett.*, 47, e2019GL085782, doi.org/10.1029/2019GL085782.
- Zhang, C. et al. (2019), Fertilization of the Northwest Pacific Ocean by East Asia air pollutants, *Glob. Biogeochem. Cycle*, 33, doi.org/10.1029/2018GB006146.
- Zhuang, G., Z. Yi, R. A. Duce & P. R. Brown (1992), Link between iron and sulphur cycles suggested by detection of Fe(II) in remote marine aerosols, *Nature*, 355, 537-539, doi.org/10.1038/355537a0.
- Zhang, Y. et al. (2020), Atmospheric microplastics: A review on current status and perspectives, *Earth-Sci. Rev.*, 203, 103118, doi.org/10.1016/j.earscirev.2020.103118.
- Zhu, C. et al. (2020), Characterization of microplastics on filter substrates based on hyperspectral imaging: laboratory assessments, *Environ. Pollut.*, 263, 114296, doi.org/10.1016/j.envpol.2020.114296.

原稿受領日: 2022 年 4 月 4 日 掲載受理日: 2022 年 6 月 13 日

#### 著者所属:

- 1. 海洋研究開発機構 横浜研究所
- 2. 北海道大学 低温科学研究所
- 3. 広島大学 大学院統合生命科学研究科
- \* 責任著者:
- Akinori Ito < akinorii@jamstec.go.jp >

# 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<sup>1</sup>\*, 大畑祥<sup>2,3</sup>, 當房豊<sup>4,5</sup>, 松木篤<sup>6</sup>, 板橋秀一<sup>7</sup>, 大島長<sup>8</sup>, 鈴木健太郎<sup>9</sup>, 佐藤陽祐<sup>10,11</sup>

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]<sub>o</sub>

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<sup>-1</sup>と与えられたのに 対し, AR6では約2.1(5.8) TgCyear<sup>-1</sup>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<sup>-2</sup>(90%信頼区間は-0.20 ~ 0.42 W m<sup>-2</sup>)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<sup>-2</sup>)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[Kobavashi 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グ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; Šantl-Temkiv et al., 2019; Sanchez*Marroquin et al.*, 2020; *Inoue et al.*, 2021; *Carlsen & David*, 2022; *Creamean et al.*, 2022]<sub>o</sub>

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 SO<sub>2</sub> 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)SO<sub>2</sub>, (b)NOx, (c)NH<sub>3</sub>, (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<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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<sup>-</sup>)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<sup>+</sup>)が余剰となり, NO3<sup>-</sup>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 SO4<sup>2-</sup>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NH<sub>3</sub>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(NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>)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<sub>2.5</sub>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub>-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, NO<sub>3</sub>-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、SO4<sup>2-</sup> 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<sup>-2</sup>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<sup>-2</sup>, 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<sup>-2</sup> 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<sup>-2</sup>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) W m<sup>-2</sup>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<sup>-2</sup> と推定されており、 ERFari ( $-0.3\pm0.3$  W m<sup>-2</sup>)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<sup>-2</sup> であり[e.g., Kinne, 2019], モデルから推 定された IRFari ( $-0.2\pm0.2$  W m<sup>-2</sup>)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 SO<sub>2</sub> は SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>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 SO<sub>2</sub> 放出による ERF は-0.94±0.69 W m<sup>-2</sup> と推定されて おり, このうち, SO<sub>2</sub> による ERFari は-0.23 W m<sup>-2</sup>, ERFaci は-0.70 W m<sup>-2</sup> 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<sup>-2</sup> 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 カ(0.40[+0.05-+0.80] Wm<sup>-2</sup>)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<sup>-2</sup>)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<sup>-2</sup>)の内訳は, ERFari が 0.145 W m<sup>-2</sup>, ERFaci が-0.037 W m<sup>-2</sup> 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<sup>-2</sup>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<sup>-2</sup> と推定されており(図 3(a)) [Szopa et al., 2021;



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 Chemistry Intercomparison 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、SO4<sup>2-</sup>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、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の推定は特にモデル間のばらつきが大 きく、SO<sub>4</sub><sup>2-や</sup>NH<sub>4</sub><sup>+</sup>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]。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>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 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>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 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>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, SO4<sup>2-</sup>, OA, NO3<sup>-</sup>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[Oi 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 (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)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H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>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, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 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、SO<sub>2</sub>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 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>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、SO4<sup>2-</sup>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<sup>-2</sup>(AR5[Boucher et al., 2013]による 1750-2011 年の値), -1.0 W m<sup>-2</sup>(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<sup>-2</sup>)から AR6 (-1.7 ~-0.3 W m<sup>-2</sup>)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 能を持っ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
究の強み	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
	した観測やモデル研究により,エアロゾルの放出・輸送・化学変化・沈着等の諸過程の
	知見が蓄積され, 越境大気汚染の影響やエアロゾルの放射強制力の推定が改善され
	てきている。
	・衛星観測・大循環気候モデル・全球雲解像モデルが相互に影響しながら発展し,エア
	ロゾルー雲相互作用の理解が進んできた。衛星観測では,能動型センサと受動型セン
	サの複合利用により,エアロゾル摂動に対する雲応答の観測的な理解が進んだ。京や
	富岳などの世界最高性能の大型計算機の活用により、日本は全球雲解像モデルによる
	エアロゾルー雲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は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字特性・時空間分布の推定も、依然としてモテル間のはら
	つきが大きい。
	・エアロソルの時空間分布,特に極攻や外洋攻や対流圏上層におけるエアロソルの動
	悲の把握と剱値セアルによる再現か个十分である。まに、「イベコ」分析に基づく適去
	のエノロノルの動態把握や数値でノルの使証が个下方である。
	・小 間核として働くエノロノル(INP)の人気仔仕里・ 凱恩, 小 間を形成 9 るメルーズムの 理敏が不上公である
	・欧州と比較して 相対的にアジア 南平 アフリカ オヤアーア シベリアの長期エータ
	「欧川と比較して、相対自動にアンア、田木、アンラル、オモアニア、シャラアの反対モニア
	・エアロゾル摂動に対する雪・降水系の広体の理解け不十分である、特に氷を含む雪
	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。
	・エアロゾル・雪・隆水に関わる素過程のモデル表現は観測によって十分に拘束されて
	waw.
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雲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
	か?
	・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-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・隆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?
	<ul> <li>・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?</li> </ul>
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<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub> 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<sub>x</sub> photooxidation in the presence and absence of SO<sub>2</sub>, *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<sub>x</sub> 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<sub>2.5</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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>

# 8



# 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<sup>1</sup>,山下陽介<sup>2</sup>,秋吉英治<sup>2</sup>,酒井哲<sup>3</sup>,長濱智生<sup>4</sup>,冨川喜弘<sup>5</sup>, 中島英彰<sup>2</sup>,杉田考史<sup>2</sup>,坂崎貴俊<sup>6</sup>,斉藤拓也<sup>2</sup>,水野亮<sup>4\*</sup>

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<sup>-1</sup>)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<sup>a</sup>[Haynes et al., 2021]や客観解析相互比 較プロジェクトS-RIP<sup>b</sup>[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

<sup>a</sup> https://www.sparc-climate.org/activities/satio-tcs/

<sup>c</sup> https://sower.ees.hokudai.ac.jp/jp/index.html

e https://www.rish.kyoto-u.ac.jp/mu/radar.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<sup>e</sup>, SHADOZ<sup>d</sup>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<sup>e</sup>,インドネシアの赤道大気 レーダー<sup>f</sup>,南極昭和基地のPANSY<sup>g</sup>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<sup>h</sup> 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 (CONTRAIL<sup>i</sup>, IAGOS-CARIBIC<sup>j</sup>)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

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

<sup>&</sup>lt;sup>b</sup> https://s-rip.ees.hokudai.ac.jp/

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

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, CH<sub>2</sub>Br<sub>2</sub>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 SF<sub>6</sub>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, CO<sub>2</sub> 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

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

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<sup>k</sup>]。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 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(CO<sub>2</sub>)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, 2005]、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(H<sub>2</sub>O),亜酸 化窒素(N<sub>2</sub>O),メタン(CH<sub>4</sub>),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。

N<sub>2</sub>O 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。NO<sub>x</sub>の増加は,成層圏にお ける NO<sub>x</sub> 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 ClONO<sub>2</sub>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<sub>x</sub> 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<sub>x</sub>と HO<sub>x</sub>との反応によって, 塩素酸化物(ClO<sub>x</sub>) ならびに NO<sub>x</sub> 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, NOx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 →O<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>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(SO<sub>2</sub>)や硫化水素(H<sub>2</sub>S)、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, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>S), H<sub>2</sub>S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 SO<sub>2</sub> 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 SO<sub>2</sub> (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)<sup>1</sup>や Interactive Stratospheric Aerosol Model Intercomparison (ISA-MIP)<sup>m</sup> 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。

<sup>1</sup> https://www.ndaccdemo.org/

<sup>&</sup>lt;sup>m</sup> 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<sub>x</sub>)や水酸化物 (HO<sub>x</sub>)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<sub>x</sub>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<sub>x</sub>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<sub>x</sub> 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<sub>x</sub>, HO<sub>x</sub> 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<sup>14</sup>C や <sup>10</sup>Be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<sup>14</sup>C 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<sup>n</sup>。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(CHF<sub>3</sub>) 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 (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O) 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]。

<sup>&</sup>lt;sup>n</sup> 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(O<sub>3</sub>),硝酸 (HNO<sub>3</sub>), 塩化水素(HCl), フッ化水素(HF), 硝酸 塩素(ClONO<sub>2</sub>)の他に,主に対流圏に分布するメタ ン(CH<sub>4</sub>), 亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O), 一酸化炭素(CO), ア ンモニア(NH<sub>3</sub>), 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 NH<sub>3</sub> 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 CH<sub>4</sub> 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, ClONO<sub>2</sub>, 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)CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, 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, CH<sub>4</sub>, 対流圏 O<sub>3</sub>, 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, H<sub>2</sub>CO, CH<sub>3</sub>OH, 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 (N<sub>2</sub>O), 硝酸 (HNO<sub>3</sub>)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 H<sub>2</sub>O 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(O<sub>3</sub>),水蒸気(H<sub>2</sub>O),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「O<sub>3</sub>と微量気体」である。測定すべき化学種 としては O<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O, CO, NO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O の 6 つであ り, 各々1km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, N<sub>2</sub>O, 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 N<sub>2</sub>O, 低濃度 HNO<sub>3</sub>, 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 NO<sub>2</sub>(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 <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O, CO, NO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O (可能であれば Cl <sub>y</sub> , NO <sub>y</sub> , SO <sub>2</sub> 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 出 来 る の 版 液 物 で が の の の の の の の の の の の の の の 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<sup>-1</sup>)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 (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub>)やオゾン化学に関連す る成分(O<sub>3</sub>, CFC-11, CFC-12, CH<sub>3</sub>Cl 等),同位体 (H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CO, CH<sub>4</sub>, 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 <sub>2</sub> O	5%	$15\sim 50$
CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>	5%	$10\sim 50$
CH <sub>4</sub>	10%	$10\sim 50$
HCI	8%	$15\sim 50$
NO, NO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O, HF, CO	10%	$15\sim 50$
NO <sub>2</sub>	10%	$15\sim 50$
HF, CO	10%	$15\sim 50$
HNO <sub>3</sub>	15%	$15\sim40$
CFC-11, CFC-12	15%	$15\sim 30$
Temperature	2K	$10\sim 50$
CIONO <sub>2</sub>	20%	$15\sim40$
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	20%	$20 \sim 40$
PAN, SF <sub>6</sub> , HDO, H <sub>2</sub> <sup>18</sup> 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, O<sub>3</sub>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 <sub>3</sub>	15-60 km 60-100 km	<1% <50%
0	100-120 km 120-160	<20 % <10%
H <sub>2</sub> O	15-70 km 70-100 km	<2% <10%
ОН	30-80 km	<10%
HO <sub>2</sub>	40-80 km	<10%
HNO <sub>3</sub>	15-40 km	<20%
NO	30-50 km 70-100 km	<50% <10%
NO <sub>2</sub>	30-50 km	<50% <20%
N <sub>2</sub> 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

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字影響の埋解と人為起源エア
	ロゾルの成層圏への寄与および流人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
	侯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感度の超伝導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(一中間圏)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
	を解像できる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(気象場と様々な微量成分輸送
	との間の整合的な理解),等価実効成層圏塩素(EESC)や反応性窒素酸化物(NOy)等の量
	の推定に支障をきたす可能性がある。
それらを踏ま	・微量成分,特に短寿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はどれぐらいか?
の研究をドライ	・GHG の増加に伴い水蒸気な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
ブする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 CO2 増加による
question or 作	成層圏冷却効果が今後も支配的だが、国際的な規制に反し、HFC 等の濃度が増えた場合
業仮説	は下部成層圏において気温上昇に作用し,冷却効果を部分的に抑える可能性もあり得る。
	これら気温構造の変化による中高緯度における大気循環はどのようになるのか?
	・太陽活動や磁気圏活動,宇宙線などによる地球大気へのエネルギー流入はどの程度グロ
	ーバルな環境に影響を与えるのか? また,そうした影響は対流圏まで伝播するのか?
主な連携相手	SPARC, NDACC, SCOSTEP

## 9. 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(大気年齡)
- 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

ODS:Ozone Depleting Substance(オゾン層破壊物質)

Model(非静力学全球大気モデル)

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(成層圏準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(成層圈-対流圈間物質交換)
- 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

## 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 SF<sub>6</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and N<sub>2</sub>O 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 CO<sub>2</sub> 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, O<sub>3</sub>, CO,

and N<sub>2</sub>O 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<sub>x</sub>/NO<sub>x</sub> 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<sub>x</sub> and CO<sub>2</sub> 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, ClONO<sub>2</sub>, 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 CO<sub>2</sub> 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<sub>x</sub> 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 SO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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 (N<sub>2</sub>O): The dominant ozone-depleting substance emitted in the 21<sup>st</sup> 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 H<sub>2</sub>O and O<sub>3</sub> 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<sub>y</sub> 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>