

## 「大気化学の将来構想検討2022-2032」パブリックコメント及び著者回答

コアテーマ名	ページ	行番号	パブリックコメント	氏名 所属	著者回答
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	1	6	アブストラクト: 将来の課題が必要として書かれている点が多いので、能動的な研究開発の方向性を感じさせるように文を少し変えるとよいかもしれません。表1にあるような要素；とくに政策の有効性を評価するシステム、北極圏や地の利のあるアジアなど、注目に値する地域などを具体的に強調するのも有効かもしれません。	海洋研究開発機構 金谷有剛	ご提案を考慮し、アブストラクトに加筆するとともに、改めてアブストラクト全体を整理しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	1	36	「将来予測」に対応する計画内容として、現況で評価できるプロセス研究に加え、地球システムモデルとの協業についても、陸域の章を引用するような形で書き加えるとよいかもしれません。（陸・海のCO2吸収フラックス変化とも連動するため）	海洋研究開発機構 金谷有剛	ご提案にもとづき、陸域の章を引用しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	4	32	に対抗する -> に伍する or を上回る成果を上げる とするのはいかがでしょうか。	海洋研究開発機構 金谷有剛	ご提案にしたがって「に伍する」と修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	6	64	最新の状況として、グローバルメタンブレッヂについて少し書き加えるとよいかもしれません。	海洋研究開発機構 金谷有剛	ご提案にしたがい、グローバルメタンブレッヂについて加筆しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	4	44	突発的な事象からの信号の検出可能性向上は、社会が注目するポイントの一つだと思います（新型コロナウイルス感染症蔓延防止による排出低下の信号や、大規模火災の信号など）。観測・モデル両面での、自然変動幅と対応させて検出性を議論する手法や、今後必要な取組を加えられるとよいかもしれません。	海洋研究開発機構 金谷有剛	ご提案を考慮し、該当段落で関連論文を新たに引用しながら加筆しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質			本文に書き込みました。	森本真司 東北大院理	多くの修正のご提案をありがとうございます。一つ一つのご指摘に個別に対応し反映させております。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	10	25	OCO-3、TanSatの記述が必要と思います。		TanSatとOCO-3についての記述を追加しました。さらに、「衛星データの検証」という観点（衛星検証はこれらのネットワークの本来の目的の一部に過ぎませんが）で地上観測ネットワークについて記載しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質			GHGの地上リモートセンシングであるTCCON、COCCON、NDACC IRWG等の記述があれば良いかと思います。		上記コメントをご参照ください。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	12	42	都市域、火発などのGHGの排出量推定の研究。衛星だけでなく、地上観測も組み合わせ、WRFやSYLITでインバージョン解析されようとしている。次は、CH4、牧畜、廃棄、水田、メタンガス田、油田。		本コメントについて、本特集号の別原稿である金谷ら「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」において対応しております。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	1	8	「大気中での化学反応を」 --> 「大気中での輸送ならびに化学反応を」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案通りに修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	1	36-37	「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」 --> 「これらの排出削減対策に有効となる精度での大気中微量気体の将来にわたる濃度予測は」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案の意図は理解いたしますが、冒頭では簡潔な表現に留める方が良いと考え、原文のままとしています。ご提案の修正に含まれる内容は次節以降に含まれると考えています。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	1	40-41	「多様で複雑な大気との交換過程」 --> 「大気と他のリザーバーとの多様で複雑な交換過程」	町田敏暢 国立環境研究所	ご指摘の通りわかりにくい表現であったため、「これらと大気との多様で複雑な交換過程」と修正しました。「リザーバー」という言葉は説明のための加筆を要すると考えたため、含めませんでした。

1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	2	21	「大気中の濃度変化」 -->「大気中濃度の時空間分布」または「大気中の濃度変化や空間分布」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案をもとに、「大気中濃度の時間変化や空間分布」と修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	3	15	「気象庁の観測船」のreferenceはありませんでしょうか。	町田敏暢 国立環境研究所	新たにHitota et al. [1991]を引用しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	3	27-28	「地域スケールや都市域スケールでの地表フラックス推定も視野に入れた」 -->「地域スケールや都市域スケールでの人為排出を含めたフラックス推定も視野に入れた」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案を受け、「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」と修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	4	38-30	「排出削減」と「排出量削減」は意図して使い分けていますでしょうか。	町田敏暢 国立環境研究所	原文では特に意識して使い分けていなかったため、「排出削減」に統一しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	4	70	「天然ガスの輸送など」 -->「天然ガスの漏洩など」	町田敏暢 国立環境研究所	天然ガスも化石燃料に含まれることを考慮し、文を修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	5	4	「主なCH4の消失はOHによる酸化であり、全消失の約90%を占め、大部分が対流圏で生じる。」ではいかがでしょうか。	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案を参考に、「大気からのCH4の消失の約90%はOHによる酸化であり、大部分が対流圏で生じる。」と修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	5	39	「Machida et al, 2008」 -->「Terao et al., 2011」の方がCH4スケールについてわずかに詳しく記述されています。	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案の通り、Terao et al. (2011)を引用することとしました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	6	8	「入力として」 -->「先験情報として」の方がより適していると思います。	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案の通り修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	7	60-61	「安定同位体比観測はフラックス観測に比べると」 -->「安定同位体比観測によるフラックス推定はフラックスの直接観測に比べると」	町田敏暢 国立環境研究所	濃度観測に基づく「フラックスの直接観測」と、「安定同位体比観測によるフラックス推定」は質の異なる（注）ものであるため、ここでは安定同位体比を利用した発生源の特徴づけ（キャラクタリゼーション）について述べたつもりでした。表現を改めました。 (注) 二つ前の段落の冒頭で述べたように、各々の発生源の同位体比の特徴と消失過程における同位体分別と大気中N2Oの同位体比を比べることで、各発生源の相対寄与率を推定することができます。すなわち比較的大きな空間スケール（通常全球規模）で「フラックス推定」を行うこととなります。一方、個々の発生源の観測においては、濃度観測ではフラックス推定ができませんが、同位体比観測では不可能です。（例えば、発生源の同位体比が偶然大気中N2Oと同じ値である場合には、フラックスの大小にかかわらず同位体比が全く変化せず、フラックス=0と判断しかねないこととなります）
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	7	66	「高時間分解能のモニタリングも」 -->「高時間分解能のモニタリングに基づいたフラックス推定も」と修正しても間違いではないでしょうか。本パラグラフはフラックスについて記述していますので、本文もフラックスに関係する記述であった方が読みやすいです。	町田敏暢 国立環境研究所	ここでも、フラックス（量）の変化をとらえるためのモニタリングではなく、発生源の質（どのようなプロセスで生成しているか、発生源から大気へ放出されるまでの過程で生成と消失のバランスはどうなっているか）を知るためのモニタリングを指したつもりでした。この段落は発生源について記述したものとご理解ください。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	8	43-47	成層圏と対流圏の対比について、焦点がやや曖昧に感じます。成層圏では鉛直方向の濃度差が大きいのでモデルで再現しやすいという点の本質でしょうか。これに対応する形で対流圏について記述するなら、「濃度の時空間変動が小さいのでそれをモデルで再現するだけの発生源情報の精度が足りない」ということになるでしょうか。	町田敏暢 国立環境研究所	ご指摘の濃度差（あるいは時空間変動）の大小に加えて、生成・消失過程の定量化における不確実性の大小の2点が本質と考えます。表現を改めました。

1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	9	3	「研究事例を」 -->「研究事例と今後の課題を」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案の通りに修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	9	7	「その工業的な消費量は」 -->「その工業的な生産量は」または「その消費量は」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案の通り、「その消費量は」と修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	9	74	最後の文にreferenceはありませんでしょうか。	町田敏暢 国立環境研究所	referenceを追記しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	11	37-38	「CH4は放出源からの放出と大気輸送の両方の影響を受けているため」と記述されていますが、CH4以外の成分も放出（吸収）と大気輸送の両方の影響を受けています。	町田敏暢 国立環境研究所	ご指摘を受け、本文を修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	11	66	「地表だけでなく」を削除した方が読みやすくなります。	町田敏暢 国立環境研究所	ご指摘の通り修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	12	9	「より細かい濃度の高度情報が」 -->「濃度のより細かい高度情報が」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案を参考に、「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」と修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	13	表1 「この10年での・・・」の3つめの「・」	「行われた」 -->「行われ始めた」	町田敏暢 国立環境研究所	既に報告されている研究結果も多く研究の初期段階とはもはや言えませんが、現在も継続的に研究が展開されています。そのため「行われている」としました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	13	表1 「この10年での・・・」の4つめの「・」	「継続的な」 -->「継続的で高品質な」	町田敏暢 国立環境研究所	ご提案の通りに修正しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	17	67	Ishijima et al.はin revisionですが、Journal名は記載できませんでしょうか。	町田敏暢 国立環境研究所	該当論文は出版されたため、情報を追記しました。
1：温室効果気体とオゾン層破壊物質	21	67	Yokohata et al.のJournal名が正しくありません。	町田敏暢 国立環境研究所	欠落していたJournal名を追記しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	1	10	物質名の下付き表示が徹底されていない印象です。例として、初出のPM <sub>2.5</sub> を挙げましたが、それ以外にもNO <sub>x</sub> 、NO <sub>2</sub> 、N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> なども表記がおかしいところがあると思います。		気づいた範囲で修正しました。NO <sub>x</sub> のxは最近の「大気化学研究」誌に倣い、小文字（下付きなし、イタリックなし）としました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	17	34-35	エアロゾルの個別成分の直接的な衛星観測は難しいですが、例えば、大気組成の衛星観測結果から、Liらは高精度な航空機観測で拘束されたブラックカーボンの鉛直コラム量の推定した例があります。（Li et al., Sci Rep., 2017）このような拘束条件となるデータが現状不足していることから、フォロワーは少ないですが、重要な先行研究と考えます。	宮川拓真 海洋研究開発機構	Li et al. のsBC*は推定値でしかなく、かえって実態の理解を損なう懸念があり、排出量評価の文脈に合いません。一方、固体状の硝酸アンモニウムでは赤外域での直接的な計測がありますので、以下のように修正します。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
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	20	18	静止 → 静止衛星軌道？		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	27	表2	世界で使用されている大気質指数の一覧 → 世界で使用されている大気質指数の一例とすべきではないでしょうか。（文中との整合性、他にも各国独自の指数を持つ国もあるので。（シンガポール、インドなど））		世界で使用されている大気質指数の例 としました。

2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	2	4	ここでの炭化水素は、メタンを含まないと思いますが、あえて非メタン炭化水素や揮発性有機化合物といった表記にされないのでしょうか。3ページにも文脈は異なるものの「炭化水素」の記載があり、表現を工夫されるべきかと思いました。		非メタン揮発性有機化合物としました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	4	45	植物起源揮発性化合物 → 植物起源揮発性有機化合物		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	6	図5	細かいですが、R8でHNO <sub>3</sub> が生成される矢印の記載がない。		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	2	11	「1ppt」の部分、数字と単位の間スペース開けるべきと思います。他にも同種の表記がありましたので、修正すべきと思います。		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	2	36	この部分のみ、単位に日本語表記（個/cm <sup>3</sup> ）があります。他の箇所と同様にmolecules cm <sup>-3</sup> とすべきかと思います。		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	13	2	「対流圏オゾンは質量非依存同位体分別効果を示し」→「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には」	角皆 潤 名古屋大学大学院 環境学研究科	改訂案ありがとうございます。そのように修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	13	5	応用先は硫酸イオンや硝酸イオンに限定されない。「硫酸イオンや硝酸イオンの生成経路でのオゾンの関与度を評価できるトレーサー」→「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」	角皆 潤 名古屋大学大学院 環境学研究科	改訂案ありがとうございます。そのように修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	13	14	「NO <sub>2</sub> +OH 反応とN <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 経由等の寄与が、定量的に分離評価された[角皆と中川、2016]」→「大気中のHNO <sub>3</sub> 生成反応に占めるNO <sub>2</sub> +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., ACP, 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+RO <sub>2</sub> 反応で生成したNO <sub>2</sub> がHNO <sub>3</sub> 生成により大きく寄与していることを見出した[Nelson et al., ACP, 2018]。」	角皆 潤 名古屋大学大学院 環境学研究科	改訂案ありがとうございます。そのように修正しました。

2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	3	39	オゾンそのものに関する近年の観測研究の動向が欠落しているように思いますが、これは意図的なものでしょうか？私は専門という訳ではありませんが、SLCFとしての重要性もあるので、（モデルでは無く）観測の重要性にもこの節の中で言及が欲しい印象です。またその際、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[Vicars et al., RCM, 2012; Xu et al., RCM, 2021等]、特に（観測ベースでの）成層圏オゾンの対流圏混合比定量化の有用なツールとなりそうなので、もし言及する場合は、これも是非加えて下さい。	角皆 潤 名古屋大学大学院 環境学研究科	2.4節を対流圏オゾンの化学プロセス理解の強化と改題し、対流圏オゾンについて、全球・アジア・都市の3つのスケールの視点で、プロセス研究の現状と課題についてまとめることとしました。2.1節から、海洋ハロゲンがオゾンに与える影響の記述、4.1節にあったアジア視点での研究課題を本節に移動しました。それに伴い、観測面や開発面についても記述を増やしました。同位体によるプロセス解明は、前回の内容をいただいたコメントに沿って修正した形とし、その節の最後に入れてあります。また、ご指摘の論文についても記述しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	7	38	NO3ラジカルによる酸化についても、短くてよいが書くとよい。	海洋研究開発機構 金谷有剛	2.3節に追加しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	8	3	チャンパーが専門外の方にわかりにくいとすれば、室内実験の章を引用するとよい。	海洋研究開発機構 金谷有剛	修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P3	図3	VOC → VOCs		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P4	L4-5	エアロゾル（硫酸塩、硝酸塩、二次有機エアロゾルなど）		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P6	図5	Figure CaptionにR#と本文の式との関係を示すと親切		化学反応(R5-10)については本文中を参照のこと。とキャプションに追記しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P7	L12	X,XO → X, XO		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P7	L52-53	「長寿命温室効果ガス」でよい？		メタン (CH4), HCFC, HFCなどや大気汚染物質 (CO, NMVOCなど) の除去、と言い換えます。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P7	L58	オゾン (O3) or 光化学オキシダント (Ox)		オゾンにします。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	P12	L41	いもの → いるもの (?)		修正しました。

2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P13	L1	フォントを他の節のものと合わせる		修正しました。(2.4節のタイトルも変更しました)
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P13	L14-15	NO2及びN2O5の数字を下付きに		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P13	L34	不確定性→不確実性 排出インベントリでは通常「不確実性」が使用される(例、日本国温室効果ガスインベントリ報告書)。(排出インベントリに関する誤差は、主には確定していないことを推定することによる誤差ではなく、確定しているものの推定時に生じる誤差が原因のため、「不確定性」は適さない。)		詳細にコメントいただき、ありがとうございます。ご指摘のとおり「不確実性」に訂正いたしました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P13	L42	削減率→減少率 削減率は発生源対策によって削減された率とみるのが自然であり、その場合トップダウン推計による排出量の削減率という表現は誤解を生む可能性がある。(トップダウン法により、対策によって削減した効果を直接抽出評価できると読める)		詳細にコメントいただき、ありがとうございます。ご指摘のとおり削減率は誤解招く表現でしたので、「減少率」に訂正いたしました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P15	L61-62	「二酸化窒素(NO2)大気汚染」は一般的？		大気汚染を削除しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P16	L17	積み上げ型(ボトムアップ型)→ボトムアップ法？(P13 L31-32の表現定義に合わせる？)		ボトムアップ法としました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P16	L27	tbd → TBD or 検討中		検討中としました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P17	L10	評価向上 → 評価の向上		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P17	L18	SLCF → SLCFs		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P17	L4-5	GHGと大気汚染 → GHGsとSLCFs or 気候変動と大気汚染 or 地球温暖化と大気汚染		GHGsとSLCFsに修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P18	L13	SLCF → SLFCs		修正しました。

2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P20	L63	2021/2022 → 2021/2022年		最新情報に基づき、2027年に修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P21	L17-18	謳われて…雖も → 難読漢字は避けるべき？		掲げられているといえども、と修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P23	L5	力学場駆動 → 力学場を駆動		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P23	L69	(オキシダント) → (光化学オキシダント)		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P24	L2	特集 → 特集号		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P24	L5	排出量を → 排出量の		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P24	L27	東・東南アジア → 北東・東南アジア or 東アジア (注. EANETでは東アジア=北東アジア+東南アジア)		北東・東南アジアとしました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P24	L28	…南鳥島)や、 → 「や」は不要？		「や」を削除しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P24	L30	オゾンゾンデデータは → オゾンゾンデデータなどは		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P24	L39	2019など], → 2019など]が,		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	P26	L46	勘弁 → 簡便		ありがとうございます。修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	18	20	都市域、火発などのGHGの排出量推定の研究。衛星だけでなく、地上観測も組み合わせ、WRFやSYLITでインバージョン解析されようとしている。次は、CH4、牧畜、廃棄、水田、メタンガス田、油田。		全球から都市などの大規模排出源まで、と記載します。3.3節に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。と追記しました。メタンの発生源については3.4節の記述のままとしました。

2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	3	図3	左下の図は地図が見えにくく、わかりにくく感じました。		中国、アメリカ、欧州、日本、北極の地名を加えました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	7	47以降	化学成分名と化学式の対応は、初出のところで行うなど統一した方がよいと思います。		初出箇所での和名(化学式)を書く形で極力統一しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	9	図8	横軸1.28のところに「CCM」と記入すると、より理解しやすいと思いました。		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	9	20	「考えられる」=>「考えられる」		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	9	36	「光解離定数」=>「光解離速度」でしょうか？		光解離速度定数（J値）としました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	13	2.4章	このセクションは説明が少ないまま話が移っていくため、わかりにくいと思いました。もう少し詳しく記載されるとよいと思います。また、タイトルが太字になっていません。14-15行目の数字が下付きになっていません。		2.4節を対流圏オゾンの化学プロセス理解の強化と改題し、対流圏オゾンについて、全球・アジア・都市の3つのスケールの視点で、プロセス研究の現状と課題についてまとめることとしました。2.1節から、海洋ハロゲンがオゾンに与える影響の記述、4.1節にあったアジア視点での研究課題を本節に移動しました。同位体によるプロセス説明は、前回の内容を改訂しつつ、その節の最後に入れるようにしました。ご指摘の編集的修正も行いました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	19-23	3.4章	分量が多く、話の道筋（段落間の関係）がわかりにくいように思います。接続詞や構成を調整されるとよいと思います。		3.5節 他の衛星ミッション検討と方向性を新設し、前回の3.4節の後半を分離しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	20	18	「静止」=>「静止衛星」		静止衛星軌道としました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	21	19	「雖も」はひらがながよさそうです。		修正しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響説明	23	5	「力学場駆動」=>「力学場を駆動」でしょうか？		修正しました。



2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	11~12		HO2, RO2 の不均一消失の重要性はもちろん理解できますが、そのほか、RO2 + NO から有機硝酸ができるパスも HOx サイクルを議論する上で無視できない可能性もあると思いますが、いかがでしょうか。		2.3節の終わりに、「不均一反応のほか、RO2 + 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。」と記述しました。
2：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクとSLCFsとしての気候・健康影響解明	65	61	「CRAW仮説」は「CLAW仮説」の誤植と思われる。この部分では特段の説明なく使用されていますが、p95やp97では若干の説明が加えられて説明されているようですので、初出のp65の段階で少し説明があるといいように思いました。	板橋秀一 (一財)電力中央研究所	3章で対応します。
コアテーマ1, 2			上記同じコメントを書いたのは、どちらかに入っていれば良いかと思ったからです。あるいは、「温室効果気体とオゾン層破壊物質」のリモセンを全て、「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」に入れて、整理しても良いかと思いました。		TANSO-3/GOSAT-GWについての言及部分では、全球から都市などの大規模排出源まで、と記載します。3.3節に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と追記しました。メタンの発生源については3.4節の記述のままとしました。
3：未来の大気化学のための室内実験	1	6	表2にあるような、将来実施したい研究のキーワードを具体的に少し記述していただくとよいと思います。	海洋研究開発機構 金谷有剛	コメントありがとうございます。以下、回答させていただきます。Page 1, abstを以下のように改訂しました。「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、既成概念にとられない斬新な研究が期待される。」
3：未来の大気化学のための室内実験	1	22	専門外の方のためにも、酸化剤(OH, オゾン、NO3など)と具体的にするのはいかがでしょうか。	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Page 1、「気相の酸化剤(OH, O3, NO3, Clなど)」
3：未来の大気化学のための室内実験	1	23	放射強制力(気候変動を引き起こす影響度)とするのはどうでしょうか？	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Page 1、「放射強制力(気候変動を引き起こす影響度)」
3：未来の大気化学のための室内実験	1	35	生成率->生成速度 のほうがよいでしょうか？	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Page 1、「年間生成量」
3：未来の大気化学のための室内実験	1	29	関連する大気中のマクロ的な現象論で、現在の物理化学プロセス表現では定量的に記述できていないけれども、本章に記述する、新たな過程の表現により説明がつく可能性のある事象(仮説レベルでも)を、ある程度具体的に例示することはできますでしょうか。化学が専門外である気象分野の方や健康分野の方は、十分に理解が追いつかないかもしれませんが、その一助になればと思います。たとえば有機エアロゾルのモデル過小評価問題、エアロゾル-雲相互作用の定量化の問題、PM2.5成分別の健康影響などの課題と「具体的に」結びつけることはできるのでしょうか。表2の「現在の重要なギャップ」の項目にも、そのような記述(例：○○問題に関連した(を解明するための)物理化学的プロセス理解)があると理解しやすいかと思います。	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Page 1、「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。」Pages 13-14, 「「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パ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。」
3：未来の大気化学のための室内実験	2	22	ペロキシルラジカルRO2については、専門外の方には難しいので、SLCFの章の図1, 6などを参照してもらえるとよいかもしれません。	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Page 2、「(RO2の大気中での役割に関しては「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」の章を参照)」

3：未来の大気化学のための室内実験	2	22	気相・液相ともに、RO2の反応実験などでは、RO2の実大気濃度レベルでの評価が進んでいるといえるでしょうか。	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Pages 2、「従来の想定では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なら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、それに伴うエアロゾル生成が重要になるだろう。」
3：未来の大気化学のための室内実験	3	44	二重結合に	海洋研究開発機構 金谷有剛	そのように改訂しました。
3：未来の大気化学のための室内実験	4	22	理論計算の助け について少し具体的に書けますでしょうか。(p.7, L50も同様)	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように改訂しました。Page 4、「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測することで、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。」Page 8、「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 $k, \gamma$ 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。」
3：未来の大気化学のための室内実験	9	7	(page 9, L18も) チャンバーの話が出てきますが、屋内(屋外も?)チャンバーそのものの必要性を5節(あるいは1~5節全体)を俯瞰して述べることはできるでしょうか?場合に雲チャンバーまで視野に入れて(エアロゾル・雲・放射の章次第)。SLCFの章からの参照先にもできればよいと考えています。	海洋研究開発機構 金谷有剛	光化学チャンバーと雲チャンバーについて概説した文章を加えました。Pages 10-11、「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 m3)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 m3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。

					<p>雲凝結核のエアロゾルの吸湿性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ことで、エアロゾル-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)チャンパーやKarlsruhe Institute of TechnologyのAIDA (Aerosol Interaction and Dynamics in the Atmosphere)チャンパーなどがあり、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 Multiphase Atmospheric Simulation Chamber) チャンパーは、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]。」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	9	17	専門外の人への理解促進のため、二次生成「有機物」粒子とするのはいかがでしょうか。	海洋研究開発機構 金谷有剛	そのように改訂しました。
3：未来の大気化学のための室内実験	12	1	表2: key questionの4ボツ目：microscopic	海洋研究開発機構 金谷有剛	そのように改訂しました。
3：未来の大気化学のための室内実験			<p>3章全体についてのコメントです。大気に関連する化学のための将来構想なら、HOM、クリーギー中間体、オリゴマー、硫酸エステル、界面反応、液相反応等は、興味ある研究テーマだと思います。しかし、大気化学の将来構想なので、大気分野への応用の観点や大気モデルへの変数提供の観点から行う室内実験について、短く議論しても良いのではないかと思います。</p> <p>①大気での重要性の観点や、大気モデル開発のための必要性の観点から特に力を入れるべき研究対象について、最後の方に議論できませんでしょうか。2章には、SLCFであるオキシダント生成の反応過程に関する室内実験の議論があります。3章の内容にふさわしいものとして、SLCFであるエアロゾルの形成・変質や雲核としての働きに対して、</p>	佐藤圭 国立環境研究所	<p>コメントありがとうございます。以下のように改訂しました。Page 5、「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。」</p> <p>Page 7、「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。」 Pages</p>

			<p>HOM、クリーギー中間体、オリゴマー、硫酸エステル、界面反応、液相反応等が果たす役割やそれらの実大気中での重要性を議論し、今後、室内実験として特に何に注力して解明すると大気化学としての理解がより進むのか明確化できないでしょうか。（支配的な物がないから全部調べなければならないのかもしれませんが、それならぶっちゃけそう説明するのも良いかもしれません。）</p> <p>②また、SLCFとしてのエアロゾルの評価として、エアロゾル表面における化学反応以外の物理学的過程（蒸発・凝集、粒子または表面の吸湿、粒子の相状態の変化、溶解等）について、室内実験として今後検討すべきことがあるかどうか議論するのも重要だと思います。</p> <p>①、②を議論すれば、2章～4章をつなぐ役割にもなるのではないかと思います。ご検討ください。国内でそのような研究を今後担いそうな人がいないのでしたらあまり無理して書かなくても良いですが、大気化学モデルやエアロゾル物理を研究している人は国内にもいると思います。意見を聞けるのではないのでしょうか。</p>		<p>13-14、「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パ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。」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	1	6-7	<p>本文では、「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」とあり、要旨でもこの点を明確にされてはいいかがでしょうか。</p>		<p>以下のように改訂しました。Page 1、「室内実験技術について議論する」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	1	54-58	<p>引用の表記は[谷本ほか, 2016]となるでしょうか。</p>		<p>そのように改訂しました。</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	2	27	<p>「C10」はこの表記になじみのない読者にもわかるように「炭素数が10」と書かれてはいいかがでしょうか。</p>		<p>そのように改訂しました。</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	8	31-69	<p>説明されている質量分析技術や光学技術が、どの相の物質を対象とする技術であるのか、明示した方が良いと思います。</p>		<p>以下のように改訂しました。Page 9、「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。」 「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。」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	9	45-47	<p>「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で起こる光化学反応を研究するため」とありますが、雲粒における反応は対象とならないでしょうか。</p>		<p>以下のように改訂しました。Page 11、「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」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	12	表2	<p>まとめの表の中で、エアロゾルに関する記述はありますが、雲粒に関して明示的な記述がありません。本文中では、エアロゾルと雲粒を合わせて記述している箇所が複数あり、まとめでも記述が要るように思います。また、究極のゴールのひとつに「大気中で起こるすべての物理化学過程の理解」とありますが、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積雪中の反応は、ここでの大気化学の範疇には含まれないでしょうか。</p>		<p>まとめの表に以下の項目を加えました。「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。」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	3	44	<p>「二重結合の」--&gt;「二重結合に」</p>		<p>そのように改訂しました。</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	2	23	<p>他の章と用語を統一した方がよいかもしれません。「ペロキシラジカル」=&gt;「アルキルペロキシラジカル」や「有機過酸化ラジカル」でしょうか？</p>		<p>「アルキルペロキシラジカル」としました。</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	2	49	<p>「Fate」は「消失過程」など日本語にした方がよい気がします。</p>		<p>そのように改訂しました。</p>

3：未来の大気化学のための室内実験	2	60	「逐次反動的に追跡」=>「逐次反応の1ステップ毎に」などの方がよいかもかもしれません。		そのように改訂しました。
3：未来の大気化学のための室内実験	3	43-56	反応経路図があった方がわかりやすいように思いました。		反応経路図を図1として新たに加えました。
3：未来の大気化学のための室内実験	9	50	LIF-CRDSで、CRDSでは何を測定するのか（ここではカルボン酸を想定されているのでしょうか？）の説明があるとよいと思います。		以下のように改訂しました。Page 11、「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。」
3：未来の大気化学のための室内実験	10	43	LIF-CRDSで、どのように、速度定数や量子収率が測定できるのかの説明があるとよいと思います。		上記参照。
3：未来の大気化学のための室内実験	10	7	「太陽光の光反応効率」=>「太陽光による光反応効率」でしょうか？		そのように改訂しました。
3：未来の大気化学のための室内実験	11	表1	図とした方がよいかもかもしれません。		そのように改訂しました。
3：未来の大気化学のための室内実験	2		RO2 反応の分岐比を議論するにあたり、RO2 + NO から有機硝酸ができるパスも重要と思われる。特に C10 以上の RO2 について述べられていますが、(種類にもよるとは思います)有機硝酸に進む分岐比は無視できないと思います (20% 以上?)		以下のように改訂しました。Page 2、「従来の想定では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、それに伴うエアロゾル生成が重要になるだろう。」
3：未来の大気化学のための室内実験	2-3	2ページ22行~3ページ32行	2.1と2.2の両方に関係して、モノテルペンなどに由来する複雑な構造を持ったRO2やクリーギー中間体の反応速度、反応機構を調べるために、有機化学との連携が必要ではないかと思えます。ある特定の構造を持つRO2やクリーギー中間体の反応を調べるためには、それに合った前駆物質を用いることが必要ですが、構造が複雑になると、市販されておらず入手困難なものがほとんどです。有機合成でこのような前駆物質を調製することで、特定の構造を持ったラジカルの反応実験が可能となり、異性体による反応性の違いなどを明らかにできることが期待されます。また、室内実験のカテゴリーから外れるかもしれませんが、実大気エアロゾル中の有機成分の同定や濃度決定においても、標準物質として入手ができない有機化合物が多数あり、これらの合成も有機エアロゾルの組成分析や二次有機エアロゾルの生成過程解明にとって有益であると考えられます。有機化学との連携をどこかに入れていただければと思います。	廣川淳 北海道大学地球環境科学研究院	コメントありがとうございます。以下のように改訂しました。Page 4、「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(e.g., [Barber et al., 2018; Kenseth et al., 2020])。』

3：未来の大気化学のための室内実験	7	40-53	<p>溶媒・溶質の極微小な不均一性は分子科学研究において興味深い対象であるとは思いますが、大気化学のモデルでこれを考慮に入れる必要があるのか、疑問です。もしこのような不均一性が反応速度に影響するならば、界面反応だけでなく、バルク液相反応の速度も再評価する必要が生じるのではないのでしょうか。実験的に得られている反応速度定数はこのような不均一性を時間的、空間的に平均化したものと解釈でき、大気モデルではそれを用いることで十分ではないかと思えます。一方で、界面反応では深さ方向の濃度の不均一性や、実大気エアロゾル表面のように局所的に吸着種に覆われることによる面方向の不均一性があることは事実で、これを考慮した界面反応速度の表現は今後、必要であると考えられます。しかしその場合も、界面状態を制御した条件で巨視的なkやガンマを測定して、そのデータを系統的に集めることがまずやるべきことであると思えます（そのためには5.5に書かれているような測定技術の進歩が必須でしょう）。表面のおかれた状態に対するkやガンマの依存性が得られれば、それをモデルに応用できるのではないのでしょうか（実験結果の蓄積を通して、新しい反応パラメーターを定義する必要が生じるかもしれませんが）。</p>	<p>廣川淳 北海道大学地球環境科学研究所</p>	<p>以下のように改訂しました。Page 6、「たとえば、<math>\alpha</math>-ピネンのオゾン酸化で生成する<math>\alpha</math>-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、水のモル分率を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[Qiu et al., 2020]。これは<math>\alpha</math>-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。<math>\beta</math>-カリオフィレンのオゾン酸化で生成する<math>\alpha</math>-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]。」Page 7、「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。」</p>
3：未来の大気化学のための室内実験	65 (p3)	61	<p>「CRAW仮説」は「CLAW仮説」の誤植と思われる。この部分では特段の説明なく使用されていますが、p95やp97では若干の説明が加えられて説明されているようですので、初出のp65の段階で少し説明があるといいように思いました。</p>	<p>板橋秀一 (一財)電力中央研究所</p>	<p>コメントありがとうございます。以下のように改訂しました。Page 4、「(「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、」</p>

4：陸域生態系と大気化学	4	46 大気から沈着する硝酸イオンは、陸域生態系内で生成される硝酸イオンとは三酸素同位体異常 ( $\Delta^{17}\text{O}$ 値) が大きく異なる上に、 $\Delta^{17}\text{O}$ 値は生態系内の分解・消費過程で変化しないので、陸域生態系内の硝酸イオンやそこから流出するの硝酸イオンの $\Delta^{17}\text{O}$ 値を指標に、大気から沈着する硝酸イオンと陸域生態系の相互作用を定量化したり、大気沈着由来の硝酸イオンが一次生産に占める割合を定量化することが出来ます [Michalski et al., EST, 2004; Tsunogai et al., ACP, 2010; Tsunogai et al., Biogeoscience, 2014; Nakagawa et al., Biogeosciences, 2018; Inoue et al., JGR, 2021]。さらに同じ方法論は、水圏生態系との相互作用に対しても応用されています [Tsunogai et al., Biogeoscience, 2011; Tsunogai et al., Limnol. Oceanogr., 2018 等]。後者は4節では無く5節の方が良いのかも知れませんが (個人的には4節にまとめた方が良い気がします)、いずれにしても、日本が先導する新しい方向性なので、是非言及して欲しいです。	角皆 潤 名古屋大学大学院 環境学研究所	沈着後の陸域生態系内での動態を理解するうえで極めて有益な手法と考えます。3.2項の最後に、Tsunogai et al. (2010)とTsunogai et al. (2011)を引用しつつ、ご指摘のアプローチに言及しました。
4：陸域生態系と大気化学	全体	4つのテーマを軸に、長寿命・短寿命大気成分の陸域生態系における収支、大気-森林生態交換メカニズム等について、国内外の研究動向を含むレビューとして大変分かりやすくまとめられていると思います。一方で、レビューから将来展望に至るまで4つのテーマは各々ほぼ独立して記述されていますが、「大気-陸域生態系」を1つのシステムとして捉え、そのシステムとして何を理解すべきかの「究極のゴール」についても言及されたほうが良いかと思いました。	宮崎雄三 北海道大学低温科学研究所	新たに6節を設け、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旨を記述しました。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ことや、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、未発見のプロセス解明や物質収支の定量性の向上につなげることを記載しました。表1にもこれらに関わる項目を追加しました。
4：陸域生態系と大気化学	全体	上記のコメントに関係し、P.7、L.53以降にCO <sub>2</sub> , GPP, BVOC, BSOAのリンクについて記述されているように、4つのテーマの相互関係の観点からも将来展望についてもう少し記述があるとよいかと思えます。例えば窒素等の沈着による生態系の富栄養化は、生物多様性への影響のみならず、NEPの変化などCO <sub>2</sub> 収支に及ぼす影響評価などの研究もあると理解しています。	宮崎雄三 北海道大学低温科学研究所	ご指摘のように窒素沈着は、森林への施肥効果となって正味CO <sub>2</sub> 吸収の一因となっている可能性があります。1ページ15行目で言及されていますが、将来展望についても表1に追記しました。
4：陸域生態系と大気化学	6	46 「新規BVOC測定・分析手法の開発」とありますが、「既知のBVOC」を測定する新たな手法の開発なのか、「未知のBVOC」を新たに測定する手法の開発なのか、誤解を避ける表現にされた方がよいかと思えます (前者の意味と理解しています)。また、新しい測定手法が必要とされる根拠について、単に安価であることが求められているのか、測定精度上の問題なのか、汎用性の問題なのか、未知のVOCが存在するのかなど、現状の問題点をもう少し具体的に言及された方がよいかと思えました。	宮崎雄三 北海道大学低温科学研究所	「BVOCの新規測定・分析手法の開発」へ改めました。 リアルタイムあるいは短時間で分析でき、精度が従来法と同等あるいはそれ以上であればよいと考えます。そのように加筆しました。 (P.7, L.38-40)

4：陸域生態系と大気化学	7-9		BSOAについての記述が中心ですが、PBAPsの位置づけ・理解における問題点なども、もう少し明確に記述されるとよいかと思いません。反応メカニズムの理解だけであればBSOA中心の記述でよいのかもしれませんが、図4に示されている気候影響とフィードバックの理解の上ではBSOAだけでなくPBAPs（+氷晶核能）も含めたメカニズム・収支の定量的理解が必要となると思います。	宮崎雄三 北海道大学低温科学研究所	バイオエアロゾルの氷晶核としての働きに関わる内容を中心に、5.2～5.4項のそれぞれで、記述を追加しました。
4：陸域生態系と大気化学	8	29	「他のタイプのアロゾル」の意味がやや不明瞭かと思えます。「他の起源のアロゾル」という意味でしょうか。それとも「粒子組成、物性が異なるアロゾル」という意味でしょうか。	宮崎雄三 北海道大学低温科学研究所	「他の起源のアロゾル」の表現に修正しました。
4：陸域生態系と大気化学	5	36	フラックス計測を濃度計測と合わせ、残りの濃度変化項である排出や移流項などを確実に定量化する方向性は重要と考えます。とくに乾性沈着の計測を普及させるうえでポトルネックとなっているのは、各種物質の高速の計測法、高速が難しければ渦緩和集積法でも正確に評価する方法かと考え、何かそうした計測法の開発についても触れるべきかと思いました。	海洋研究開発機構 金谷有剛	測定法の開発は極めて重要な課題であり、項目として抜けていました。3.4項に、大気化学成分へ渦相関法を適用するための開発、その代替法としての緩和渦集積法の適用性について明記しました。
4：陸域生態系と大気化学	6	44	地球温暖化の進む中でBVOCがもたらすフィードバックがグローバルに正なのか負なのか（オゾンとエアロゾルの効果両方を含め）、その地域性を明らかにすることも重要な課題かと思いました。（IPCC AR6 Chapter 6）	海洋研究開発機構 金谷有剛	以下のように加筆しました。 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。
4：陸域生態系と大気化学	10	7	key questionの最後：、人為起源のことも含めた総合的視点で、陸域生態系・人為起源を含む全有機物の存在量・生成量やフラックス・特性について、定量的な予測可能性を向上させる。といった記述を加えるのはいかがでしょうか。	海洋研究開発機構 金谷有剛	新しく設けた6節で地球表層システム・人間社会に関わる統合的理解について取り上げ、その中で全有機物の予測可能性の向上についても触れるようにしました。表1のkey question・作業仮説のところにも記述を加えました。
4：陸域生態系と大気化学			・オゾンの植生・農作物への影響という観点も必要ではないでしょうか？ <a href="https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1161030118301606">https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1161030118301606</a>	須藤健悟 名古屋大学	重要な観点だと考えます。3.3項に、オゾンの植物影響について森林と農作物を取り上げて言及しました。既存の文章と繋ぐため、日本における硫黄・窒素沈着量およびオゾンのトレンドを述べて、上記の植物影響に繋げました。
4：陸域生態系と大気化学			・BVOCsについては、その発生量について、OMI/TROPOMI等のHCHO観測による推定（データ同化含む）についても、言及があった方がよいように感じます。	須藤健悟 名古屋大学	以下のように加筆修正しました（P7, L19-22）。 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。
4：陸域生態系と大気化学			・窒素等沈着については、以下のような全球モデル研究にも言及してはどうでしょうか？ <a href="https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2005GB002672">https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1029/2005GB002672</a>	須藤健悟 名古屋大学	3.1項、最後の沈着速度モデル間比較の部分に、化学輸送モデル間比較も加えました。ご紹介いただいた全球モデルの事例とともに、東アジアの事例も加え、沈着速度モデルと化学輸送モデルの区別がつくよう、それぞれに文献を加えました。



4：陸域生態系と大気化学			全般的に、それぞれの皆様の専門範囲に関して、手際よくまとめられていると思いました。他の章も拝見させていただければと思いますがあまり余裕がなくて、年末年始に余裕があれば拝見させていただきます。		コメントありがとうございます。皆様からのご指摘に基づき、改訂を進めました。
4：陸域生態系と大気化学	1	abstract	供給源→供給・消失源？		次の文の記述を、「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。」と改めました。また、「はじめに」の中で、「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。」と書きました。
4：陸域生態系と大気化学	1	14	「十分に解明されていない」：論文でも書く表現ではあるのですが、他の分野（環境科学以外）からするとどこまで解明すれば十分なのか？ というところが気になるころではあります。(2,60; 3,34なども同様) 大体はわかっているという見方もあります。		3ページ34行目に対する指摘事項に関して、当該箇所にて記述を加えました。ここでの表現は、「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。」と改めました。
4：陸域生態系と大気化学	2	35	一部では一部だけなのでしょう		ニュアンスが難しくなるので「一部では」を削除しました。
4：陸域生態系と大気化学	3	34	陸域の不確実性提言：環境科学ではよく用いられる表現ですが、できればこちらあたりの解説は定量的な説明があると説得力があるかと思えます。		不確実性をどこまで減らせれば十分かは判断が難しいところです。定量的な説明のベースとなりそうな例です。Global Carbon ProjectによるグローバルなCO <sub>2</sub> 収支分析によると、2019年の収支に対する不確実性幅（観測とモデルの両方を使用）は、大気CO <sub>2</sub> 増加は0.2ギガトン、海洋フラックスは0.6ギガトン、それに対し陸は1.2ギガトンでした。陸については海洋並みに不確実性幅を半減することが1つの目標になるでしょう。将来予測についてはCMIP6の分析例から、CO <sub>2</sub> 倍増実験における温度上昇に対する炭素循環フィードバックについて、海洋と陸域のモデル推定幅はそれぞれ、2.9ギガトン/°C、38.4ギガトン/°Cと陸域の不確実性は1ケタ大きくなっています（CO <sub>2</sub> 濃度上昇へのフィードバックも同様）。よって海洋並みに不確実性幅を1/10以下に押さえ込むことが目標になるでしょう。当該箇所に、陸域と海洋の比較に関する簡単な記述を加えました。
4：陸域生態系と大気化学	3	65	沈着現象から少しはなれるかのしれませんが、corregationについても定量的にわかっているのかどうか疑問だと思いました		"corregation"の意味を理解することができず、対応する修正は行いませんでした。本原稿では、大気と陸域生態系の関係を大気化学の視点で捉える上で重要と思われる要素を各節に分けて整理しています。
4：陸域生態系と大気化学	6	40	全くそうだと思います。分析機械が高すぎて、BVOCの研究は多くの研究者が手掛けられません。日本の教育予算は減り続けているので、この傾向は強まっています。将来的に大きな発展性のあるテーマとして提示できると思います。そのため、分析・測定に関する方法論や進歩による低コスト化が必要な点を記載されていいかと思えます。		以下のように加筆しました。 新規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。

4：陸域生態系と大気化学	5	22	アメリカ大陸のようにNH3の土壌への直接注入を行うことはアジア域の農業ではないので、どの程度NH3が放出されているかは少ないかと思いました。ただし、家畜施設は人為管理でも管理して評価が大気側から必要だと考えられますが。		ご指摘のように施肥よりも家畜施設からの排出に注視すべきと考えます。3.3章に、日本のNH3排出の60%以上は畜産によるものであることを明記し、その排出量推計の精緻化を課題として言及しました。
4：陸域生態系と大気化学	5	6 4	究極的には「群落レベル」も含まれるのでは		群落レベル を加筆しました
4：陸域生態系と大気化学	6	40	左記箇所および表1 全くそうだと思います。分析機械が高すぎて、BVOCの研究は多くの研究者が手掛けられません。将来的に大きな発展性のあるテーマとして提示できると思います。そのため、分析・測定に関する方法論や進歩による低コスト化が必要な点を記載されていいかと思います。		(上に回答しました)
4：陸域生態系と大気化学	1 0	表 1	(最初のabstractにも社会実装という用語もあるので) 大気化学としては、大気の化学成分に関するプロセスを解明しますが、future earthと呼ばれるように、人為的な影響やプロセスを入れ込むプロセスを入れ込む点を記述しておく方が、大気化学の将来発展可能性としてよいのではないかと思います。伝統的な大気化学者からはつまらないと認知されます(自分もそうです)が、これこれなになにの人間活動を行った場合、どの程度大気変質作用があるかの評価研究も重要です。環境総合モデルになるかとは思いますが。  →他の章：大気汚染物質群の排出・化学過程・濃度のリンクと SLCFs 気候・健康影響説明：大気化学理論と観測の刷新 で記載されているかと思うので、陸域生態系への人間影響イベントでの評価に関して		大気化学と生態系を導入した地球システムモデルで迫るべき課題と思われる。対流圏オゾン等の大気沈着による生態系影響とその大気へのフィードバックなどが挙げられます。新たに第6節「地球表層システム・人間社会に関わる統合的理解」を設け、関連する記述を加えました。また、表1においても、地球表層システムの統合的理解を目指す大気・陸域生態系研究について記載しました。
5：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	8	17-19	「主に人為起源～重要となる。」の部分ですが、ご指摘通りですが、海洋生態系にとって重要となるカウンターパートのアンモニウムイオンも同様に、オンラインでの現場観測が必要です。一般にフィルターなどに捕集されたエアロゾル試料は相当に慎重に処理されない限り、アンモニアによるコンタミは定期的起こるため、実時間で捕集・分析による計測が肝要だと思います。書き換えるとすれば、「微小エアロゾル粒子中の硝酸アンモニウムのオンライン計測が重要となる」ということかと思います。	宮川拓真 海洋研究開発機構	以下のように変更し、参考文献を追加しました。「主に人為起源由来の微小粒子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].」
5：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	8	19-21	「また、現場観測では～多く存在する。」の部分ですが、具体的にどのようなデータセットを指しているのでしょうか？乾性沈着の直接観測に関しては、湿性沈着と同様にそれほど密に存在しているように思えません。根拠となるデータセット名、参考文献など提示すべきではないでしょうか。	宮川拓真 海洋研究開発機構	乾性沈着の直接観測ではなく、エアロゾル観測を元に推定された乾性沈着のデータを意味します。以下のように変更し、参考文献を追加しました。「また、船舶観測では広範囲(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存在する[Baker et al., 2017].」

5：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	4	64-73	水平風速以外にも海表面水温SST (Ovadnevaite et al., ACP, 2014; references therein) や海洋表層中の有機物量の指標としてのクロロフィルa濃度 (e.g., Gantt et al., ACP, 2011) なども、海水飛沫フラックスや海洋由来有機エアロゾル放出量のパラメタリゼーションに活用されている例があり、ここでも重要な既往研究として取り上げるべきではないかと思えます。	宮川拓真 海洋研究開発機構	この文章を2.1節へ移動し、2.1節で、重要な既往研究に関して、以下の文章へ改訂しました。「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、有機物を変数として取り入れられていない。」「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 and Kawamiya, 2010; Gantt and Meskhidze, 2013]。」
5：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	5	23	[Prather et al., 2013]。 → [Prather et al., 2013]。		ご指摘の通り、訂正しました。
5：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	10	8-10	「海洋微生物〜と考えられる。」とあります。確かに重要と考えますが、P5, L18-23において、同種の既往研究プロジェクトの簡単な紹介がありますが、ここで何が得られ、何が足りないのかに触れたうえで、さらに何をすべきなのかを示すべきと感じました。	宮川拓真 海洋研究開発機構	以下の文章を追記しました。「メソコスモ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。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。」
5：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	10	53	「同位体・多元素・鉱物組成などの観測データ」とありますが、大気中の観測でしょうか、それとも海水中の観測でしょうか、もしくは両方？より具体的な記載があると、今後の研究計画立案にとってありがたいです。上記と関連し、近年、大気中に浮遊するエアロゾル粒子と水などの液体中に懸濁する固体粒子 (ハイドロゾル粒子) を共通の手法で計測する機運が高まってきています。(例；レーザー有機白熱法による降水・積雪中のブラックカーボン分析) 中でも水中に懸濁する固体粒子を粒子種ごとに計数できる可能性を持つ、複素散乱振幅測定手法 (Moteki, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., 2019; Opt. Express, 2021) は海水懸濁粒子の分析にも応用可能であり、大気海洋間の物質移動を定量的に解析できるポテンシャルを秘めています。これらのような先進的な分析技術にも触れるべきではないでしょうか。	宮川拓真 海洋研究開発機構	以下のように変更しました。「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。」「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。」

5：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	1	9-10	「生物活動によるさまざまなフィードバック効果」とありますが、何へのフィードバックなのか読み取れませんでした。また、要旨の後半部分や原稿の本体では個々の過程の解明も重要な課題として主張されていると受け取りましたが、フィードバック効果と書かれると、システムとしての複雑さのみが強調されている印象を受けました。		「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。」と言い換えました。
5：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	2	1-37	記述の筋道がやや整っていない印象を持ちました。2行目のところで「…重要である。」という主張と「…相変化する。」という事実の文を「特に、」と繋げるのは適当でないと思います。また、6-8行目の「モデルの取り扱いにより異なる」という指摘は、前後のメカニズムの説明と繋がらず唐突に感じます。		以下のように、フィードバックに関して、より丁寧な解説を加えました。「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、氷雲から氷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。」
5：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	1-2	20-2	「気候フィードバック」がもたらされる旨の記述がありますが、人為的な環境変化は気候の変化だけでなく、生態系に影響する様々な物質の供給も含むのであれば、「気候フィードバック」の言葉でまとめてしまうのは論旨と十分にマッチしていないように思います。原稿のタイトルに対しても同様の印象を持ちました。		以下のようにタイトルを変更しました。「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」
5：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	2	39-42	「研究は、…研究が行われてきた」という文は、主語と述語の関係が成り立っていないように思います。		以下のように変更しました。「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]。」
5：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	2-3	73-6	こちらの文はより筋道が通るように、整理する必要があると思います。また、「個別研究から分野横断的研究へ移行する時期である。」というのが研究の趨勢の話なのか、著者らの提案なのか読み取れませんでした。		以下のように変更しました。「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。」

5：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	3	24-28	W-PASSが北太平洋亜寒帯域の物質循環の理解に寄与したことを主張されているでしょうか。SOLAS研究との繋がりが書かれており、当該段落の内容との関係が分かりませんでした。		略語を明記し、以下のように変更しました。「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ネージュ(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, <a href="https://solas.jp/english/">https://solas.jp/english/</a> )の発展において大きな原動力となった[植松, 2013]。」
5：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	3	29-52	当該段落の前半部分で理解が不十分である点が述べられているのに対して、後半では明らかになったことが述べられており、論旨が十分に整っていない印象を持ちました。		以下のように、理解が不十分であった時期の先行研究を明記しました。「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 and Kawamiya, 2010; Gantt and Meskhidze, 2013]。」
5：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	4	45-49	「CLAW仮説で提案された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。」ことが、なぜ「そのため、CLAW 仮説を構成する素過程については議論の余地がある。」と結びつくのか読み取ることができませんでした。		議論を要する素過程について、以下のように具体例を明記しました。「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; HOCH2SCHO) 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。」
5：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	1	図1	Nucleation&でspaceが入っていない。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、図1を修正しました。
5：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	2	13	栄養塩不足でエアロゾル供給で生物が増え、二酸化炭素吸収に影響というより、増えるとか明確に示してはどうでしょう	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	以下のように変更しました。「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。」
5：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	2	20	栄養塩供給「が増加し、負の」影響を与える。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	以下のように変更しました。「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。」
5：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	2	25	「そのため、」削除してはどうでしょう。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、削除しました。

5：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	2	35	影響「,」および	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、追記しました。
5：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	4	7	微小海塩粒子数よりも有機物粒子量が重要でしょうか。粒子数が決め手ではないでしょうか。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	以下のように、有機物粒子と新粒子生成との関連性を明記しました。「また、大気中の窒素を微生物が栄養塩として利用可能な窒素（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、その存在量は不確実性が大きい[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と比較し、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。」
5：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	4	42	「領域的」は海域的でしょうか。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、修正しました。
5：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	4	47	これまで確認されなかった？ Meskhidze, N. and A. Nenes (2006) Science, 314, 1419-1423.	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の研究結果は、観測データより3桁大きいイソプレン濃度をモデル計算に用いたために得られた結論であると、指摘されています(Wingenter, 2007)。本件は既往の総説で取り上げられているため、本稿で繰り返し記述することを避けました。Wingenter, O.W., 2007. Isoprene, cloud droplets, and phytoplankton. Science 317 (5834), 42–43.
5：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	7	30	「降下後」は、後で使われている「沈着後」でどうでしょう。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、修正しました。
5：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	8	5	「栄養輸送」は「栄養塩輸送」でもいいかと思えます。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、修正しました。
5：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	8	18	硝酸エアロゾルだけではなく、アンモニウム塩粒子もあるのではないのでしょうか。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	以下のように変更し、参考文献を追加しました。「主に人為起源由来の微小粒子の硝酸塩やアンモニウム塩は揮発性が高く、これらの定量的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]。」
5：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	9	46	火山灰による鉄の施肥効果の論文もいくつか出ているはずです。例えば、Hamme et al., GRL, 37(19):L19604	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	重要な既往研究に関して、参考文献[Duggen et al., 2007; Hamme et al., 2010]を追加しました。
5：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	11	表 1	「観測事実は確認されなかった」？	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	本件は既往の総説で取り上げられているため、この文章を削除しました。
5：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	11	表 1	連携相手にIMBeRも入るのではないのでしょうか。	植松 光夫 埼玉県環境科学国際センター	ご指摘の通り、追記しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用			本章は、タイトルにもあるようにエアロゾルの	原圭一郎 福岡大学	<p>コメントありがとうございます。「はじめに」では、放射と雲はほぼすべての場所で並列に扱っていて、雲に偏っている箇所はありません。また、今回は、この分野の研究を網羅的に記述することを目的とはしていません。著者の専門も活かしてある程度トピックを選択し、それを掘り下げて記述するスタイルをとっています（これは我々の判断で勝手にそうしているわけではなく、全体のとりまとめをされている金谷さん・持田さんなどと話をして決めたものです）。この点は「はじめに」の最初の段落で明確にしました。重複の箇所（2.1章と3.1章の重複）は減らすように修正しました。</p> <p>日本大気化学会将来構想WG（金谷・持田）より：詳細なコメントをいただき、ありがとうございます。本欄の回答にありますように、今回の将来構想の全体の作成方針において、網羅的で教科書的な記述よりは、今後、重点を置いて研究を進めるべきポイントが明確に見えるものを目指した経緯があり、全てに渡りバランスの取れた記述とはなっていない点について、ご理解いただけますと幸いです。なお、CCNについては「2.3 長期モニタリングと越境大気汚染」の方でまとまった記述があり、そちらで重点的に取り上げる方針とさせていただければと思います。</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		1.はじめに	光吸収性粒子や氷晶核が重要なのは間違いあり	原圭一郎 福岡大学	「はじめに」で行っていることは、各章への導入です。この章では、重要な項目をすべて挙げることは目的としていません。2段落目の最初で、放射特性、雲凝結核特性という用語を出していますが、ここではそれくらいで良いと考えています。また、最初の回答に示したように、本稿は網羅的な記述は目指しておりません。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		1.はじめに	雲過程という点では、IN (or INP) だけではな	原圭一郎 福岡大学	最初の回答のとおりです。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		1.はじめに	エアロゾル長期モニタリングと越境汚染・・・	原圭一郎 福岡大学	長期モニタリングや越境汚染は、エアロゾルの「動態」把握において重要ですので、本稿の範囲内の内容ということで選びました。長期観測についても、国内外のものを網羅的に記述するのではなく、日本の地理的な強みも活かした内容として記述しています。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		2.エアロゾルの動態	動態・・・に物理・化学特性が含まれますか	原圭一郎 福岡大学	<p>ご指摘をありがとうございます。「動態」を「動態（時空間分布や物理化学特性など）」と修正しました。</p> <p>ご指摘の通り、放射には散乱性・吸収性エアロゾルの両者が重要ですが、本将来構想では網羅的に記述することはしておらず（ある程度トピックに特化する形をとっており）、この章では特に光吸収性エアロゾルに着目しています。AODや光散乱性エアロゾルの放射影響については、モデル研究からの視点が主ではありますが、3章で触れられており、その内容にとどめています。扱う内容が網羅的ではないことを明確にするため、1章の導入部分の記述を修正しました。</p>

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	28	光吸収性を有するエアロゾル	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	38	煤粒子である 煤としてしまってもよいのか？ 厳密な定義ではBCはすすではないです。	原圭一郎 福岡大学	ご指摘を考慮し、「煤粒子」という表現を削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	73	現在のところ、上空で極めて濃度が低いBCの・・・	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	3	4	大気に放出された直後のBCは疎水性である・・・	原圭一郎 福岡大学	大気に放出された直後であっても、大気中を輸送される過程で他の成分と内部混合した後であっても、BC自体は疎水性のままであると考えています。（大気中での変質により、他の成分と内部混合した粒子全体（BC含有粒子）として見ると親水性を持っている。）BC含有粒子の記述を追加し、整理しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		2.1.1	BCの波長別光吸収特性の記載は必要ではないですか？（BrCでは記載があります）。	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、2.1.1節にBCの光吸収特性の波長依存性の記述を追加しました。また、2.1.4節に光吸収性エアロゾル全般の複素屈折率の報告値について記載しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	3	31-34	もう少しわかりやすい文章に書き換えられると思います。	原圭一郎 福岡大学	ご指摘頂いた部分の記述について、BCの動態に関する議論との関係性があまりないと判断し、削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	3	48	これ（↓）もあります。 Arienzo, M., McConnell, J., Murphy, L., Chellman, N., Das, S., Kipfstuhl, S., Mulvaney, R., 2017. Holocene black carbon in Antarctica paralleled Southern Hemisphere climate. Journal of Geophysical Research: Atmospheres. <a href="https://doi.org/10.1002/2017JD026599">https://doi.org/10.1002/2017JD026599</a>	原圭一郎 福岡大学	ご紹介頂いた文献を追加で引用しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	4	64	二次生成に由来するBrCは、	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	5	10	BrCの放射強制力・・・具体的な数値はどのくらいでしょうか？数値で示すと良いかと思えます。	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、数値（0.04-0.57 W/m <sup>2</sup> ）を追記しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	5	66-68	偏光OPCを用いた粒子形状（不定形）から鉱物ダスト量を推定する試みがあります。 References Kobayashi, H., Hayashi, M., Shiraishi, K., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Kaneyasu, N., 2014. Development of a polarization optical particle counter capable of aerosol type classification. Atmospheric Environment 97, 486-492. <a href="https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.006">https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.006</a>  鷹取 翔, 小林 拓, 松本 潔, 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, 2015, 30 巻, 4 号, p. 270-274  Pan, X., Uno, I., Hara, Y., Osada, K., Yamamoto, S., Wang, Zhe, Sugimoto, N., Kobayashi, H., Wang, Zifa, 2016. Polarization properties of aerosol particles over western Japan: classification, seasonal variation, and implications for air quality. Atmos Chem Phys 16, 9863-9873. <a href="https://doi.org/10.5194/acp-16-9863-2016">https://doi.org/10.5194/acp-16-9863-2016</a>	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、偏光OPCによる鉱物ダストの測定の試みについて記載し、ご紹介頂いた文献を引用しました。



6：エアロゾル-放射・雲相互作用	6	23	海洋生態系を活性化させ、大気中の・・・	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		2.2	氷晶核として・・・ 氷晶核の観測・研究・議論は今後なしていかなければならない課題なのは間違いない。エアロゾル雲相互作用という観点では、CCNの現状もレビューがべきです。氷晶核に関する研究と比較すると十分に行われている感はありますが、依然として、CCNの評価が海洋境界層では過小評価しているなど、課題が山積されています（CCNの記載に関しては、氷床各部の著者とは異なるかもしれませんが・・・文書上は対になってしかるべきです）。	原圭一郎 福岡大学	最初の回答のとおりです。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	6	31	異物質・・・ここでの異物質は固体物質のことでしょうか？異物質ではわかりにくいので、他の表現に変更してください。	原圭一郎 福岡大学	「異物質」を「固体物質」に変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	7	27	鉱物より高い温度でも・・・ 具体的な数値（のレンジ？）で示した方がわかりやすいです。	原圭一郎 福岡大学	以下のように編集しました。 「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°C以上高い温度でも氷形成を起こしやすい（つまりIN特性が高い）ことが示されている」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	7	29	また、微生物の中には・・・ 具体的な微生物の種類・・・バクテリア、菌類などくらいは・・・を示した方が良いでしょう。	原圭一郎 福岡大学	「細菌や真菌などの微生物」としました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	7	60-63	そもそもどうやって、INP（IN特性）の計測がされてきたかを示しておく必要があるのですか？その上で、何が問題だったかを示してほしい。	原圭一郎 福岡大学	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ことを追記しました。何が問題だったかの具体的な説明は、本総説の趣旨に沿わないためそう略しますが、興味のある読者のために、本パラグラフの最後に関連文献（Tobo,2016; DeMott et al., 2017, 2018）を例示しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	7	66	定量化する事項は計測精度ではなく、あくまでもIN特性ではないですか？IN特性を定量評価できるようになり、計測精度を相互比較できるようになった・・・ということでしょうか？	原圭一郎 福岡大学	以下のように書き直しました。 「以前に比べると、各計測技術によるIN特性の計測精度に関する客観的な評価ができるようになってきている」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	7	68	何を可視化している？定量化すること、計測精度を向上させることと可視化するというのは、全く意味が異なるのでは？	原圭一郎 福岡大学	「可視化できるようになってきている」との記載を削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	2.3	本章ではエアロゾルによる放射と雲相互作用が目的なはずで、モニタリングと越境汚染の表記だけだと対象がわかりにくいのですか？	原圭一郎 福岡大学	エアロゾルの動態（時空間分布や物理化学特性など）も対象としているので、十分に範囲内のトピックと考えています。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		2.3.1	恐らく、エアロゾル長期観測が行われている観測拠点で、光学特性・放射特性を計測している拠点、CCNを計測している拠点があるはずで、世界的な長期観測拠点を網羅するのは大変なので、それについては有名な拠点のみにしておき、国内の関係者が行っている長期観測拠点はちゃんと示すべきです。国内では、沖縄辺戸岬、福江、能登、季節限定ですが富士山頂など、海外では、北極・南極などがあり得るはずで、まず、その辺りをきっちり示してから、光学特性・放射特性の長期観測、CCNの長期観測を示すのが良いかと思います。	原圭一郎 福岡大学	ここですべてを網羅することは難しいですが、国内での主だった長期観測拠点について引用文献とともにリストアップしました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	41	測られるべき項目も多岐・・・ どのような項目なのかを示すべきです（代表的あるいは優先度の高い項目についてだけでも）	原圭一郎 福岡大学	長期観測が望ましい項目がリスト化されている（Table1.1）WMO/GAW Aerosol Measurement Proceduresを引用に加えしました。 Guidelines and Recommendations 2nd Edition 2016
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	28-30	エアロゾル-雲相互作用は重要な点なので、現状と課題整理は必要なのは確かですが、放射（光学特性を含む）はどこへ行ってしまったのでしょうか？後ろのセクションでAODの記述が出てきてはおりますが、全体としての統一感（流れ）が悪いです。	原圭一郎 福岡大学	最初の回答のとおりです。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	40	・・・報告するケースが中心だった	原圭一郎 福岡大学	修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	52	長期観測を同じ基準で・・・ 何を同じ基準とするのか？基準は何なのかを具体的に示したほうが良いです。	原圭一郎 福岡大学	統一的な観測条件（湿度、過飽和度の設定や測定原理）と記載しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	58	・・・用いられた	原圭一郎 福岡大学	修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	58-59	観測データとモデルの計算結果との比較から、	原圭一郎 福岡大学	修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	58-59	どういうモデルかも示しておくとも良いでしょうか。化学輸送モデル？	原圭一郎 福岡大学	大気循環モデルと化学輸送モデルの両方を記載しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	60-64	海洋境界層内のCCN推定も依然として過小評価していますが、こちらについては、新粒子生成・成長の影響や、そもそのエアロゾル中のCCN能を有するエアロゾルの粒径分布の取り扱いの問題などもあります。グローバルにはかなり効くはずなので、もう少しレビューをしておくとも良いはずですが。このような論文もあります  Xu, W., Ovadnevaite, J., Fossun, K.N., Lin, C., Huang, R.-J., Ceburnis, D., O'Dowd, C., 2022. Sea spray as an obscured source for marine cloud nuclei. Nat Geosci 15, 282-286. <a href="https://doi.org/10.1038/s41561-022-00917-2">https://doi.org/10.1038/s41561-022-00917-2</a>	原圭一郎 福岡大学	ご指摘ありがとうございます。論文を引用しつつ、微小な海洋性エアロゾルの過小評価についても記述しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	11	12	無機的な粒子・・・ 無機化合物で構成されたエアロゾル粒子のことを言っているのだと判断しますが、日本語で「無機的」と表現すると意味が変わります。筆者（ら）が意図する内容になるように他の単語を用いて修正してください。	原圭一郎 福岡大学	無機物主体の粒子表面に、... としました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	11	12	不均一反応の速度・・・	原圭一郎 福岡大学	修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	11	11-15	該当する内容について、先行研究の引用があると良いです。	原圭一郎 福岡大学	先行研究を引用しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	11	15-20	長期観測と短期集中観測を交えながら・・・ということも意図していると思います。今の記述に、厳選された基本項目を長期観測で抑えつつ、短期集中観測を展開して、・・・という内容も付け加えると良いのでは？	原圭一郎 福岡大学	先行研究を引用しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	11	31	κケーラー理論 前の方に同様の内容の記述があったが、はっきりと記載されていませんでしたので、前の方にも「κケーラー理論」を明記するほうが良いでしょう。	原圭一郎 福岡大学	前の単一吸湿性パラメータの説明のところでも明記しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用		2.3.1ほか	2.3.1やINPの記述部を通して、INP、CCNについて、様々な観測がなされてきていること、これまでの努力にもかかわらず、まだうまく評価できていないこと、今後の課題などが表記されています。INPにしる、CCNにしる、一番の根本的な問題が触れられていません。INP、CCNの観測の多くは、地上観測で行われていることです。物性に関する知識を得るには地上での観測でも非常に重要な知見が得られるのは間違いありませんが、実際に雲ができる領域（高度）と地上のエアロゾル特性・組成の違いがどうしても存在すること、空間分布と輸送過程をどう評価するか、それを解消するにはどうすべきか・・・も記述すべきではないですか？（わずかな記載はP.11 左側などがないわけではないですが、わかりにくい）。	原圭一郎 福岡大学	当該箇所少し記述を加えました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		2.3.2	越境輸送を議論するだけだと、本章の内容としては不足ではないですか？越境輸送とエアロゾル光学特性・放射特性、CCN能などの記述があるのかと期待していましたが、インベントリの経年変化と成分の内容のみになっています。また、東アジア域に話題が閉じてしまっていますが、他の地域にも越境輸送・拡散の影響があるので、そちらも触れるのもよいと思います（分量は軽くとも）。南米・アフリカからのバイオマス燃焼域からのOutflow、サハラからの鉱物ダスト流出、シベリアなどのバイオマス燃焼域からのOutflowなど。	原圭一郎 福岡大学	対象地域としてはわが国に特に影響の大きい東アジアに限定した話としたいと思います。ご指摘に従い、黄砂とシベリア森林火災の影響を冒頭部分に追記しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	13	9-10	NH3 都市域では、人間活動による放出の影響がかなり強いはずですが。大気汚染物質の一つと考えてもよいはずですか？	原圭一郎 福岡大学	記述が曖昧でしたので、ここではNH3に対して「大気環境基準の設定された汚染物質」と記述しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		3.1.1、 3.1.2	AODやエアロゾル光学特性の記載を先にして、放射強制力を後ろにしたほうが良くないですか？	原圭一郎 福岡大学	執筆当初に、AODや光学特性の記載を先にする順番を検討しましたが、大きな話題から細かい話題の順に記述した方が流れがよいと考え、放射強制力の記載が先になるように致しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	14	12-13	・・・による有効放射強制力（ERFari）	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、修正致しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	14	15	・・・による有効放射強制力（ERFaci）	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、修正致しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	14	28	ERFは-1.1 -1.1は平均ですか？	原圭一郎 福岡大学	平均値です。「平均値と5-95%レンジ」の記述を加えました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	14	44	IRFariの推定精度を向上させる・・・ Uncertaintyが大きい（Or大きくさせている）項目は何なのかを示すと良いのでは？	原圭一郎 福岡大学	個別に項目を挙げると煩雑になるため、(3.1.2章)を引用しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	14	48-50	硫酸塩の寄与が大きくなるのは量が多いこと	原圭一郎 福岡大学	「その放出量も多いため、」と加筆しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	16	18-19	衛星観測や地上放射観測のAODと比べて20～40%過小推定・・・  過小推定されている要因が特定・把握されているのであれば、示しておくともよいと思います。	原圭一郎 福岡大学	粗大粒子についてはダストの過小評価、微小粒子についてはバイオマス燃焼起源のエアロゾルの過小評価などが指摘されていますが、その他にも様々な要因が考えられ、特定されているわけではありませんので、本文中では記述しない方向で進めたいと思います。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	70	NO3の推定は・・・大きい 特に、NH4NO3の挙動が重要と思われるが、季節変化、高度分布、気温（温度）に対するモデルでの再現精度はいかがなんでしょうか？また、NH4NO3の混合状態が現実に即した条件に基づいて（Or想定して）モデルで表現されているのでしょうか？この辺りの説明があるとありがたい。	原圭一郎 福岡大学	「SO4, NH4と比べると地上観測や航空機観測の再現性も低い。」という記述を追加しました。「現実に即した条件」が何を想定されているか明確ではありませんが、内部混合状態を仮定し、複数の粒径モード（もしくは粒径ビン）を考慮したモデルはいくつか使用されているようです。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	18	12-15	AAODのうち・・・非常に大きい モデル間のばらつきの比較も興味深いです。が、観測ではどの程度のばらつきでしょう？	原圭一郎 福岡大学	観測のばらつきというのは装置間や研究間のばらつきということでしょうか。モデルのばらつきは全球平均・年平均のAAODを対象としていますが（この点は明示するようにしました）、同様のばらつきは観測では推定できません（ある特定の観測地点で、多数の装置の同時測定や複数の研究があればできるかもしれません・・・）。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	18	16	・・・あたりの光吸収断面積（MAC）	原圭一郎 福岡大学	2.1章でMACを使っているのですが、その前の記述は削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	19	2	～のBCをパラメータとして考慮した・・・  「陽に考慮した」だとわかりにくい人がいるかもしれません。	原圭一郎 福岡大学	「直接的に」と変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	19	38-48	エアロゾルによる放射影響を議論する際には、	原圭一郎 福岡大学	3.1.2.1章の第一段落の最後に「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」と加筆しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	19	59-63	CCN数濃度の推定・・・ CCN濃度推定において、新粒子生成・成長も含める必要があります。CCN数濃度はエアロゾル数濃度とも関係するはずなので、二次粒子の生成量に含めていたのかもしれませんが既存粒子上での凝結・二次生成と新粒子生成は分けて考えるべきではないでしょう	原圭一郎 福岡大学	二次生成は新粒子生成を想定していましたが、ご指摘のとおりわかりにくいかもしれませんので、もう少し明確になるように修正しました：「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」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	20	10-15	新粒子生成に寄与する前駆ガス、クラスター組成の観測が可能となっています。H2SO4だけでなく、HIO3, HIO2, アミンなどの寄与も明らかとなってきています。  References Brean, J., Dall'Osto, M., Simó, R., Shi, Z., Beddows, D.C.S., Harrison, R.M., 2021. Open ocean and coastal new particle formation from sulfuric acid and amines around the Antarctic Peninsula. Nat Geosci 14, 383–388. <a href="https://doi.org/10.1038/s41561-021-00751-y">https://doi.org/10.1038/s41561-021-00751-y</a>  Burrell, E., Kar, T., Hansen, J.C., 2019. Computational Study of the Thermodynamics of New Particle Formation Initiated by Complexes of H2SO4–H2O–NHx, CH3SO3H–H2O–NHx, and HO2–H2O–NHx. Acs Earth Space Chem 3, 1415–1425. <a href="https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.9b00120">https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.9b00120</a>  Dall'Osto, M., Ovadnevaite, J., Paglione, M., Beddows, D.C.S., Ceburnis, D., Cree, C.,	原圭一郎 福岡大学	コメントありがとうございます。ヨウ素やアミンが関わる核生成については、ここではあげていません。これらは極域や都市域などある特定の環境で重要になると思いますが、ここでは全球スケールで重要だと考えられるH2SO4をあげています。また、この箇所はもともと引用文献数が多すぎたので、他の箇所とのバランスも考え、かなり減らしています。

Cortés, P., Zamanillo, M., Nunes, S.O., Pérez, G.L., Ortega-Retuerta, E., Emelianov, M., Vaqué, D., Marrasé, C., Estrada, M., Sala, M.M., Vidal, M., Fitzsimons, M.F., Beale, R., Airs, R., Rinaldi, M., Decesari, S., Facchini, M.C., Harrison, R.M., O'Dowd, C., Simó, R., 2017. Antarctic sea ice region as a source of biogenic organic nitrogen in aerosols. *Scientific Reports* 7, 6047. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-06188-x>

Dall'Osto, M., Airs, R.L., Beale, R., Cree, C., Fitzsimons, M.F., Beddows, D., Harrison, R.M., Ceburnis, D., O'Dowd, C., Rinaldi, M., Paglione, M., Nenes, A., Decesari, S., Simó, R., 2019. Simultaneous Detection of Alkylamines in the Surface Ocean and Atmosphere of the Antarctic Sympagic Environment. *Acs Earth Space Chem* 3, 854–862. <https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.9b00028>

He, X.-C., Iyer, S., Sipilä, M., Ylisirniö, A., Peltola, M., Kontkanen, J., Baalbaki, R., Simon, M., Kürten, A., Tham, Y.J., Pesonen, J., Ahonen, L.R., Amanatidis, S., Amorim, A., Baccharini, A., Beck, L., Bianchi, F., Brilke, S., Chen, D., Chiu, R., Curtius, J., Dada, L., Dias, A., Dommen, J., Donahue, N.M., Duplissy, J., Haddad, I.E., Finkenzeller, H., Fischer, L., Heinritzi, M., Hofbauer, V., Kangasluoma, J., Kim, C., Koenig, T.K., Kubečka, J., Kvashnin, A., Lamkaddam, H., Lee, C.P., Leiminger, M., Li, Z., Makhmutov, V., Xiao, M., Marten, R., Nie, W., Onnela, A., Partoll, E., Petäjä, T., Salo, V.-T., Schuchmann, S., Steiner, G., Stolzenburg, D., Stozhkov, Y., Tauber, C., Tomé, A., Väisänen, O., Vazquez-Pufleau, M., Volkamer, R., Wagner, A.C., Wang, M., Wang, Y., Wimmer, D., Winkler, P.M., Worsnop, D.R., Wu, Y., Yan, C., Ye, Q., Lehtinen, K., Nieminen, T., Manninen, H.E., Rissanen, M., Schobesberger, S., Lehtipalo, K., Baltensperger, U., Hansel, A., Kerminen, V.-M., Flagan, R.C., Kirkby, J., Kurtén, T., Kulmala, M., 2020. Determination of the collision rate coefficient between charged iodine acid clusters and iodine acid using the appearance time method. *Aerosol Sci Tech* 55, 1–12. <https://doi.org/10.1080/02786826.2020.183>

He, X.-C., Tham, Y.J., Dada, L., Wang, M., Finkenzeller, H., Stolzenburg, D., Iyer, S., Simon, M., Kürten, A., Shen, J., Rörup, B., Rissanen, M., Schobesberger, S., Baalbaki, R., Wang, D.S., Koenig, T.K., Jokinen, T., Sarnela, N., Beck, L.J., Almeida, J., Amanatidis, S., Amorim, A., Ataei, F., Baccharini, A., Bertozzi, B., Bianchi, F., Brilke, S., Caudillo, L., Chen, D., Chiu, R., Chu, B., Dias, A., Ding, A., Dommen, J., Duplissy, J., Haddad, I.E., Carracedo, L.G., Granzin, M., Hansel, A., Heinritzi, M., Hofbauer, V., Junninen, H., Kangasluoma, J., Kemppainen, D., Kim, C., Kong, W., Krechmer, J.E., Kvashin, A., Laitinen, T., Lamkaddam, H., Lee, C.P., Lehtipalo, K., Leiminger, M., Li, Z., Makhmutov, V., Manninen, H.E., Marie, G., Marten, R., Mathot, S., Mauldin, R.L., Mentler, B., Möhler, O., Müller, T., Nie, W., Onnela, A., Petäjä, T., Pfeifer, J., Philippov, M., Ranjithkumar, A., Saiz-Lopez, A., Salma, I., Scholz, W., Schuchmann, S., Schulze, B., Steiner, G., Stozhkov, Y., Tauber, C., Tomé, A., Thakur, R.C., Väisänen, O., Vazquez-Pufleau, M., Wagner, A.C., Wang, Y., Weber, S.K., Winkler, P.M., Wu, Y., Xiao, M., Yan, C., Ye, Q., Ylisirniö, A., Zauner-Wieczorek, M., Zha, Q., Zhou, P., Flagan, R.C., Curtius, J., Baltensperger, U., Kulmala, M., Kerminen, V.-M., Kurtén, T., Donahue, N.M., Volkamer, R., Kirkby, J., Worsnop, D.R., Sipilä, M., 2021. Role of iodine oxoacids in atmospheric aerosol nucleation. *Science* 371, 589–595.

<https://doi.org/10.1126/science.abe0298>

Jen, C.N., Bachman, R., Zhao, J., McMurry, P.H., Hanson, D.R., 2016. Diamine-sulfuric acid reactions are a potent source of new particle formation. *Geophysical Research Letters* 43, 867–873.

<https://doi.org/10.1002/2015gl066958>

Jokinen, T., Sipilä, M., Kontkanen, J., Vakkari, V., Tisler, P., Duplissy, E.-M., Junninen, H., Kangasluoma, J., Manninen, H.E., Petäjä, T., Kulmala, M., Worsnop, D.R., Kirkby, J., Virkkula, A., Kerminen, V.-M., 2018. Ion-induced sulfuric acid–ammonia nucleation drives particle formation in coastal Antarctica. *Science Advances* 4,

eaat9744.

<https://doi.org/10.1126/sciadv.aat9744>

Rose, C., Zha, Q., Dada, L., Yan, C., Lehtipalo, K., Junninen, H., Mazon, S.B., Jokinen, T., Sarnela, N., Sipilä, M., Petäjä, T., Kerminen, V.-M., Bianchi, F., Kulmala, M., 2018. Observations of biogenic ion-induced cluster formation in the atmosphere. *Science Advances* 4, eaar5218. <https://doi.org/10.1126/sciadv.aar5218>

Shen, J., Xie, H.-B., Elm, J., Ma, F., Chen, J., Vehkamäki, H., 2019. Methanesulfonic Acid-driven New Particle Formation Enhanced by Monoethanolamine: A Computational Study. *Environ Sci Technol* 53, 14387–14397. <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b05306>

Sipilä, M., Sarnela, N., Jokinen, T., Henschel, H., Junninen, H., Kontkanen, J., Richters, S., Kangasluoma, J., Franchin, A., Peräkylä, O., Rissanen, M.P., Ehn, M., Vehkamäki, H., Kurten, T., Berndt, T., Petäjä, T., Worsnop, D., Ceburnis, D., Kerminen, V.-M., Kulmala, M., O'Dowd, C., 2016. Molecular-scale evidence of aerosol particle formation via sequential addition of HIO<sub>3</sub>. *Nature* 537, 532–534. <https://doi.org/10.1038/nature19314>

Wang, M., Xiao, M., Bertozzi, B., Marie, G., Rörup, B., Schulze, B., Bardakov, R., He, X.-C., Shen, J., Scholz, W., Marten, R., Dada, L., Baalbaki, R., Lopez, B., Lamkaddam, H., Manninen, H.E., Amorim, A., Ataei, F., Bogert, P., Brasseur, Z., Caudillo, L., Menezes, L.-P.D., Duplissy, J., Ekman, A.M.L., Finkenzeller, H., Carracedo, L.G., Granzin, M., Guida, R., Heinritzi, M., Hofbauer, V., Höhler, K., Korhonen, K., Krechmer, J.E., Kürten, A., Lehtipalo, K., Mahfouz, N.G.A., Makhmutov, V., Massabò, D., Mathot, S., Mauldin, R.L., Mentler, B., Müller, T., Onnela, A., Petäjä, T., Philippov, M., Piedehierro, A.A., Pozzer, A., Ranjithkumar, A., Schervish, M., Schobesberger, S., Simon, M., Stozhkov, Y., Tomé, A., Umo, N.S., Vogel, F., Wagner, R., Wang, D.S., Weber, S.K., Welti, A., Wu, Y., Zauner-Wieczorek, M., Sipilä, M., Winkler, P.M., Hansel, A., Baltensperger, U., Kulmala, M., Flagan, R.C., Curtius, J., Riipinen, I., Gordon, H., Lelieveld,

			<p>J., El-Haddad, I., Volkamer, R., Worsnop, D.R., Christoudias, T., Kirkby, J., Möhler, O., Donahue, N.M., 2022. Synergistic HNO<sub>3</sub>-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-NH<sub>3</sub> upper tropospheric particle formation. Nature 605, 483-489.  <a href="https://doi.org/10.1038/s41586-022-04605-4">https://doi.org/10.1038/s41586-022-04605-4</a></p> <p>Zhang, S., Li, S., Ning, A., Liu, L., Zhang, X., 2022. Iodous acid – a more efficient nucleation precursor than iodic acid. Phys Chem Chem Phys 24, 13651-13660.  <a href="https://doi.org/10.1039/d2cp00302c">https://doi.org/10.1039/d2cp00302c</a></p>		
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	20	3-33	新粒子生成の観測が行われた場所の記載や、	原圭一郎 福岡大学	特に重要になる領域（外洋域や自由対流圏）についてはすでに記述しています。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	21	21-24	<p>今後は・・・</p> <p>ここ（L. 21-24）では、エアロゾル観測の重要性を触れておりますが、前段の記述では、BCに特化されてしまっています。気候影響を推定する上で、BCを外せない成分なのは確かですが、他の成分のことも示すべきですね。</p>	原圭一郎 福岡大学	「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」と複数成分の必要性を明記しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	21	25-28	<p>近年の衛星観測では・・・</p> <p>BC, ダストによるアルベドの低下も指摘されておりますが、クリオコナイトによる暗色化の寄与が指摘されています。</p> <p>Reference :  Jun Uetake, Sota Tanaka, Takahiro Segawa, Nozomu Takeuchi, Naoko Nagatsuka, Hideaki Motoyama, Teruo Aoki, Microbial community variation in cryoconite granules on Qaanaaq Glacier, NW Greenland, FEMS Microbiology Ecology, Volume 92, Issue 9, September 2016, fiw127,  <a href="https://doi.org/10.1093/femsec/fiw127">https://doi.org/10.1093/femsec/fiw127</a></p>	原圭一郎 福岡大学	「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].」と加筆しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	22	36	鉱物ダストの組成や鉱物種・・・	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	22	54	～減少しており、硫酸塩粒子などの生成が抑制	原圭一郎 福岡大学	「SO <sub>4</sub> 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」と修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	22	56-57	・・・進行すると、中・高緯度域で、より大規模	原圭一郎 福岡大学	ご指摘の通り、修正致しました。



6：エアロゾル-放射・雲相互作用	22	55-60	バイオマス燃焼由来物質の成層圏への流入について	原圭一郎 福岡大学	バイオマス燃焼由来物質の成層圏への流入は面白い現象ですが、稀なイベントですので、まとめの章には加筆しませんでした。IPCC AR6では、過去のエアロゾルの増大は、放射収支を変化させることで降水量を変化させること（e.g., 北半球と南半球の降水トレンドの違いやモンスーン循環の弱化など）が指摘されていますが、エアロゾル-放射相互作用の章でこの内容を記述していないことや、降水は次章の雲との関係性が強いので、エアロゾル-放射相互作用のまとめの章には加筆しませんでした。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	23	8	有効放射強制力 前の方のセクションで略字を使用していたので、表記を統一させたほうが良いです（略字にする？）	原圭一郎 福岡大学	前半部分と整合させるために、有効放射強制力の直後に(ERFaci)を追記しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	23	20	○○の気候感度の不確実性幅・・・ ○○に相当する言葉を示してください	原圭一郎 福岡大学	気候感度というのは、これ単独で「CO2濃度が倍増したときの全球平均気温の昇温幅」を意味する術語であるため、○○に相当する言葉はありません。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	23	24-26	もう少しわかりやすい記述にしたほうが良いです	原圭一郎 福岡大学	気候感度の用語の意味の説明も含めて、該当箇所を以下のように改訂しました。「このエアロゾル-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-雲相互作用による産業革命以来の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。」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用		3.2.2、3.2.3	「拘束」という表現が散見されますが、異なる	原圭一郎 福岡大学	これらの節では、「拘束」は基本的には同じ意味（モデルの雲・降水過程やそのエアロゾルとの相互作用プロセスの表現を拘束する、という意味）で用いています。他のコメントへの対応として、一部についてはその前後の表現を修正することで、意味の明確化を図りました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	25	66-71	もう少しわかりやすい文章に直してください	原圭一郎 福岡大学	この段落全体を次のように改訂しました。 「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-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-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。」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	26	12	モデル雲物理の高度化を・・・高度化とは具体的にどの素過程をどの様にするかを意味していますか？具体例があれば書いておくと分かりやすいはずです	原圭一郎 福岡大学	具体例を記述に含めて、該当箇所を以下のように改訂しました。「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。」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	26	36	雲・降水からエアロゾルへの方向の影響  具体的にはどのような過程のことを意図していますか？具体例を示してください。わかりにくいです。	原圭一郎 福岡大学	該当箇所を「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」と改訂しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	31		究極のゴール部で・・・エアロゾルの健康影響	原圭一郎 福岡大学	この箇所は削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	32		連携可能な学会として、日本エアロゾル学会	原圭一郎 福岡大学	追加しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	1	8-9	「全体として・・・地球温暖化を部分的に相殺する」は、何度も読み返せば言いたいことは理解できるのですが、一読しただけではとても読みにくいです。この将来構想は様々な人々に読んでもらいたいものですので、アブストラクトの文章は理解しやすい文法構造にしておいた方が良いと思います。		このような表現は、気候科学の分野では（IPCC報告書などでも）多様されていますので、それほど特殊な文章ではないと考えています。その後に「負の放射強制力をもつ」と説明もしていますので、現状のままとさせていただきます。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	5	53	ゲータイトとゲーサイトのどちらか一方に統一すべきかと思います。		ご指摘の通り、ゲーサイトに統一しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	6-8		Froyd et al. (2022), Dominant role of mineral dust in cirrus cloud formation revealed by global-scale measurements, Nat. Geosci, 15, 177-183.のような最近の論文は引用しなくてもよいでしょうか。		Floyd et al. (2022)は、Cirrus cloudsが発生するような-35°Cよりもはるかに低い温度域での氷形成過程について報告しています。一方、本総説では、それよりも科学的な知見が乏しく、近年研究コミュニティからの関心も高まっている-35°C以上での氷形成過程（混合相雲が発生する温度域）に話題を絞って解説していますので、Floyd et al. (2022)は引用していません。ただし、Cirrus cloudsの温度域での氷形成過程についても言及する為、以下のような記載を追加しました。 「また、-35°C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。」 その他にも、2022年に発表された最新の研究として、Carlsen and David (2022)と Creamean et al. (2022)を新たに引用しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	6	31-36	この説明ですと水蒸気から直接氷晶になる経路が存在しない、あるいはその経路にはINPは関係ないように読み取れてしまいます。		ご指摘の通り、今の文章では、昇華によって氷晶が形成される経路を除外してしまうような印象を与える恐れがあるため、「雲内に」との記載を「大気中に」へ変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	8	47-50	このパラグラフではINPの変動に関連しうるエアロゾルの計測について話をしてはいますが、「特に、エアロゾル・・・」の文章が示しているものがINPの計測のことなのかINPに関連しうるエアロゾルの計測のことなのか分かりません。また、鉱物ダストや微生物/有機物固体粒子の情報が不足しているから何を重点的に実施すべきなのか、この文章では読者に伝わりません。		ご指摘の文章について、以下のように書き直しました。 「特に、INPとして働くエアロゾルの有力な候補である鉱物ダスト、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）は極めて不足しているため、今後、重点的に実施されることが望まれる。」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	5-7	モデルはデータ同化システムの一部であって、観測データと同化されるのは第一推定値（=モデル予測値）です。なので「モデルは進歩しており、観測データとの同化が進んで精緻化する」という表現には違和感があります。「との」という表現の対象がモデルを指しているとした読み取りようがないからです。通常、データ同化によって精緻化するのには推定値であってモデル本体ではありません。この文章の主語や目的語を整理して、明示的に示すべきものは示し、曖昧な表現を排した方がよいかと思います。		ご指摘ありがとうございます。文言を整理し、修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	10	図1	キャプションの「モデル間の中央値と平均」という表現には違和感を覚えます（特に「間」という語）。「アンサンブルメンバーの中央値と平均」とされては如何でしょうか。		修正しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	11	12	無機粒子の表面に有機物がコーティングされる、というのは化学的にはどのような状態なんだろうね。疎水性表面上に親水性分子がファンデルワールス力を超える力で吸着することはあり得ないはずなのに、現実にはaging等と称される何らかの現象が大気中で起きているというのが不思議です。大気化学では疎水性表面上の親水性分子コーティングを分子論的に調べたりはしないのでしょうか？		大気化学では低湿度化での内部混合粒子の液液相分離 (Liquid-Liquid Phase Separation: LLPS) に関する研究がここ15年くらいに盛んに行われるようになり、一般的には無機物粒子を中心に周りを表面活性の強い有機物がコーティングして分離するコア=シェル構造が報告されています。O:C比が低いほどLLPSが起き易いと言われており、メカニズムに関するレビューがされていましたので当該箇所でも引用しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	12	5	Chiina -> China		修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	12	7	invebtory -> inventory		修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	12	34	日本の西側は言い過ぎかと思えます。琉球諸島も日本領です。		「西側」としました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	12	39	この原稿の中ではSO4の右肩に2+がまったく添えられていないことに違和感を感じますが (文字通り解釈するとSO4という記述ではラジカル分子になってしまう)、大気化学という分野ではそのような記述方法が一般的なのかなと思いつつ読んでいたところ、何故かアンモニウムイオンには右肩に+が添えられていて驚きました。化学的記述の正確性を保つのか、原稿中の記述を統一するのか、どちらかにすべきです。硝酸イオンの記述方法も同様です。		イオンの記述についてすべて添える形に統一しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	13	14-17	大幅に「何の」放出量が減少したのか、2019年比で数%程度「増えたのか・減ったのか・何がどうなったのか」がまったく分からないです。		記述が曖昧でしたので、「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」と修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	13	40-45	地上モニタリング網の維持や環境観測衛星の打ち上げなど、膨大な資金が必要な事業の必要性に対して「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必要不可欠なので風下で越境輸送の監視が必須」という理由説明は行政的に説得力が弱いと思う。越境輸送の監視をすると具体的にどのような政策提言ができるのか、なぜその提言は大気汚染対策と気候変動対策を両立できるのか、科学的かつ現実的な根拠を明示すべきかと思う。		越境輸送を把握するため、実大気の計測による監視がまず必要であるという意味や、モデルとの連携によって政策提言へとつながられる点など、該当箇所の説得力を増すように追記と構成の変更を行いました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	26	エアロゾルの推定のばらつき、と言われてもエアロゾルの何の推定のことなのか分からない。推定するのは「エアロゾル」という物体ではなく、それに関連する何らかの物理量のはず。		「自然起源エアロゾルの放出量や大気中量」に変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	28	「・・・多いが、」の「が」は逆接を表しているのでしょうか？本来ならばAODへの寄与は微小粒子の方が大きいはずだけれど、それを凌駕するほど粗大粒子の数が多という意図でしょうか？もしそうだとしたら、この文章だけでは専門外の人間にはその意図が伝わらないと思います。		「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」に変更しました

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	33-39	放出量は不確実性が大きいけれど完全に外部強制項としてモデルに入力できるのでモデラーとしてはその不確実性に責任を持つ必要がない、ということをお願いしたいのだと思いますが、専門外の読者には「同一の放出量を容易にモデルに与えることができ、それで何？」と思われてしまわないでしょうか。		「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」を追記しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	40	海塩や鉱物ダストの放出量が気温に強く依存するというのは本当でしょうか。もし気象場という単語の説明として「風速や気温」と述べているのだとしたら誤解を招く表現ですので気温を削除した方が良いと思います。		海塩の放出は気温に依存します。たとえば、 <a href="https://www.pnas.org/doi/10.1073/pnas.2020583118">https://www.pnas.org/doi/10.1073/pnas.2020583118</a>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	52	「エアロゾルの不確実性」という語を文字通り解釈するとその存在そのものの不確実性やエアロゾルの組成がかなりの程度不明かのような印象を与えます。しかしここで著者が言いたいのは放射効果の不確実性や雲との相互作用の不確実性のことだろうと思います。それならばそう明記しないと狭い専門分野の外の人には伝わらないです。		「放出量と大気中量」を追加しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	58	エアロゾルの量や性質や放射効果を観測によって制約する、という言い方はモデラー以外にはとても分かりにくい表現だと思います。専門外の人間にも理解できる表現や説明を心掛けて欲しい。		「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実性・・・」と変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	19	10	「観測による制約」：同上。観測というのは第一義に観測という行為のことであって観測した値という意味は（日本語においては）第二義だと思う。また、「観測値による制約」としたとしても、日本語として不自然です。観測値とその偏差を拘束条件にしてモデルの挙動を制約することを言いたいのだと思いますが、モデラー以外にはとても分かりにくい文章です。		「観測との比較によって、乾性沈着過程の不確実性を減らすこと」に変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	19	38	「上記」の記と「述べた」の述は文章では同義語だと思います。「上で述べた」あるいは「上記の」とした方が良いでしょう。		この段落は削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	22	14	17、19頁と同様。「制約可能」という語は同業者には意味が通じますが、モデルの中のエアロゾルの挙動を制約することだと明示しないと日本語としては意味不明だと思います。		「不確実性を減らすことが可能な」に変更しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	23	20-26	放射強制力が冷却側に大きな値をとる可能性が「高い気候感度の可能性」ということでしょうか？20世紀の気温変化を説明しうる、とありますがどのような気温変化を想定されていますでしょうか？「これと整合的に」というのは放射強制力の冷却側に伸びた不確実性と整合的にという意味だとすると、20世紀のどのような気温変化について読者に事前知識を求めていますでしょうか？この文章は長すぎるだけでなく構文が複雑で極めて読みにくいです。書き換えることをお勧めします。		気候科学の分野外の読者にはわかりづらい記述になっていたと思われれますので、ご指摘を受けて該当箇所を次のように改訂しました。 「このエアロゾル-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-雲相互作用による産業革命以来の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。」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	25	56	「パラメータ化に含まれる不確実性を拘束する」という言い回しが分かりにくいです。同業者なら言いたいことを汲み取ってくれるとは思いますが、文法的には「不確実性って拘束できるものなの？拘束してどうするの？」という疑問が沸きます。		「不確実性を拘束する」を「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」に修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	25	65, 69	勉強不足で申し訳ないのですが、この自由度というのは力学や統計学でいうところの自由度のことなのでしょうか。それとも単に経験的パラメータ化によって診断的に導出していると（予報変数として導出するよりも）状態の変化に対して柔軟性が低くなるということを行っているだけなのでしょうか。26頁6行目を読むと、なんとなく後者を表しているように思われます。しかし自由度という単語が理系の文章に出てくると、まずは力学や統計学の用語ではないかと考えてしまいます。もしこの文章でも力学や統計学の用語として使っているのなら、診断変数化によって何の自由度がどのように制約されるのか興味が沸きます。		これは査読者の言われる後者の意味で使っています。この点を明確にするために、「モデルが現実の雲物理過程を表現する自由度」と修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	26	39-43	「雲からの降雨生成を」という表現は奇妙に感じます。「雲からの降雨」という現象の生成を意図しているのかもしれませんが、通常は「雲からの降雨生成」と読み取れてしまいます。「衛星観測から拘束する」という表現も文法的に助詞の使い方に問題があると思います。もし「降雨生成を衛星観測によって拘束する」だとしても17頁、19頁と同様に同業者以外には分かりにくいです。「モデルの降雨生成プロセスを衛星観測の情報で拘束する」ならば理解できます。		ご提案の表現に修正しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	27	図5	<p>キャプションに出てくる「BAC」とは何の略でしょうか。</p> <p>また、キャプションを読んだだけではGCMが2種類使われていることが分かりません。</p> <p>GCMの線が図中に1本しかないとは勘違いさせてしまう「青線」という表現ではなく「藍色と水色」などのように分かりやすく記述してはどうでしょうか。</p>	<p>ご指摘ありがとうございます。BACはタイプミスです。BC（本文中に正式名称は示されています）と書くのが正しいです。また、青線と水色線の記述を追記するとともに、この計算の結果が全てNICAMによるものであることも同時に追記しております。次の次のコメント（28頁に対するコメント）に対する回答でも説明させていただいた通り、「雲解像」という言葉は「空間的に雲を直接表現する」という意味と「雲の効果を雲微物理モデルによって取り込む」という意味の二つがあり、ここでの意味は本文中の他の多くの箇所と同じように後者（「雲の効果を雲微物理モデルによって取り込む」）です。青色と水色の結果はともにNICAMの結果ではありますが、大規模凝結と積雲パラメタリゼーションで雲の効果を取り込んでいるので雲解像ではないという考え方です。そのことがはっきりするように図5のキャプションを修正しました。改訂版の図5のキャプションをご確認ください。</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	28	16-17	<p>26頁と同じく「雲からの降雨の生成」は文法的に奇妙に感じますが、ひょっとして雲の中での降雨生成のことは眼中になく、雲から落下した後の雨滴だけに焦点を当てているのでしょうか。</p>	<p>雲の中での降雨生成も含む意味で書いておりましたが、ご指摘を受けて、「雲による降雨生成」に修正しました。</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	28		<p>NICAMなどが研究コミュニティで雲解像モデルと呼ばれていることは否定しませんし、28頁35行目以降において「現状のNICAMでは真の雲解像には解像度が足りない」ことも吐露されていますが、27頁だけを読むとまるで水平解像度14kmや7kmでも雲解像モデルとしてかなりのパフォーマンスを見せているかのように書かれていることに違和感を憶えます。普段メソモデルを使っている人間から見ると、水平解像度3.5kmですら陽に雲を表現するには物足りないと感じます。その辺りの課題を28頁40行目以降で「次のターゲット」として述べていることには賛同しますが、付け足しのような文章で物足りません。この総説の主題は将来構想検討ですから、これまでに成し遂げたことを羅列するよりも将来の課題の提示を文章の重点に置いた方が良いのではないかと思います。</p>	<p>ご指摘の点は「雲解像」という言葉の捉え方の問題かと思います。現在において「雲解像」という言葉は、「雲ひとつひとつを空間的に直接表現する」という意味で用いられることが圧倒的に多いです。コメントをいただいた方も、「水平解像度3.5kmですら陽に雲を表現するには物足りないと感じます」という指摘をされていることから、雲解像という言葉も、雲を「空間的に直接解像する」と捉えられているのではないかと思います。一方で、モデルの設定という観点で見ると、「雲解像」という言葉の意味するところは「雲の効果を雲微物理モデルによって表現する」という意味になります。NICAMが雲解像モデルと呼ばれているのは、積雲パラメタリゼーションや部分凝結スキーム、大規模凝結スキームを使わずに雲微物理モデルによって雲を表現しているからです。雲微物理モデルの一つの暗黙の仮定として、「ある程度の高解像度であること」があるので（または高解像度の計算向けに主に雲微物理モデルが開発されてきた経緯があるため、雲微物理モデルが高解像度で利用されることが多く）、「雲解像」＝「空間的に直接解像できる空間解像度での計算」と捉えられることは多いです。</p>

				<p>し、両者は独立ではないのでこれらの意味の違いを認識している方は多くないと思います。しかし、今回の原稿で記載された成果においては、「雲微物理モデルによって雲を表現する」という意味合いでの雲解像という意味の方がむしろ大きいです。要するに経験的なパラメタリゼーションなどは異なり、雲の微物理過程を（さまざまな仮定や近似はあるとはいえ）できるだけ原理的に物理法則に基づいて解いていることで、パラメタリゼーションなどでは表現できなかったエアロゾルの変化に対する雲への応答が表現できるようになったということです。一方で改訂前の原稿の28頁40行目以降の記述では、次のターゲットに「空間的に雲を直接解像できるようになる」という意味も含めております。改訂前の原稿に「その意味では」と追記したのはそのためです。</p> <p>しかしながら「空間的に直接解像すること」と「雲微物理モデルによって直接表現すること」の違いはコメントをいただいた方も含めて一般的に十分に認識されていないと思われるので、この点に解説を加えさせていただきます。</p> <p>改訂版の28ページをご覧ください。</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	26-29		<p>日本の気象研究者・気候研究者が他国に比べて潤沢な計算機資源を使うことができ、それによって世界の気候研究の最先端に立つことができているのはそのとおりだと思います。そのアドバンテージを維持しようと呼びかけるこの文章に賛同します。ただし、京や富岳のような計算機を日本の研究者が10年後も使えているかどうかは全く分かりません。日本の国力が衰える中、10年後にも世界最先端の計算機が自由に使えるようにするにはどうすべきか、という観点も「将来構想検討」には必要だと思います。</p>	<p>大変重要なご指摘ありがとうございます。仰る通り10年後にも世界最先端の計算機が使えるという保証はありません。その点に関しては、「1、そもそも日本として最先端の計算機を維持することができるのか?」という問題と「2、日本において今後10年でも最先端の計算機があったとして、果たしてそれを気象・気候のコミュニティが使えるか」という2つの軸での議論が必要かと思えます。そのどちらにおいても気象・気候分野において潤沢な計算機を使って世界最先端の成果を上げることが重要です。</p> <p>1点目に関しては国の戦略とも関係するもので、はっきりとした解決策を提示するのは難しいですが、少なくとも最先端の計算機がなければ上げることができない成果を気候・気象の分野で上げ続けることにより、最先端の大型計算機の持ち続ける必要性を、国や国民に訴えることが重要かと思えます。</p> <p>2つ目に関して重要なのは、「日本が最先端の計算機を維持する」という選択を少なくとも10年前後先にしたとして、新しい大型計算機を設計する段階で、さまざまな専門分野で実績のある研究者を集め、共同して、新しい大型計算機の設計を行います（例えば、<a href="https://www.mext.go.jp/b_menu/boshu/detail/mext_00229.html">https://www.mext.go.jp/b_menu/boshu/detail/mext_00229.html</a>）。このような新しい計算機の設計に提言ができるような実績を気象・気候分野として上げるとともに、このような設計に気象・気候分野の研究者が携わっていくというのが重要です。そのような記述を本文中（3.2.5章：まとめの最後の部分）に追記させていただきます。</p>



6：エアロゾル-放射・雲相互作用	29	32	<p>何度も述べていますが、観測情報によって拘束されるのはモデルの挙動であって不確実性ではないような気がします。モデルの挙動が拘束されることによってそのモデルの不確実性が低減する、というのが正しい日本語ではないでしょうか。</p>		<p>ご指摘ありがとうございます。ご指摘のような文章に修正いたしました。</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	31-32	表1	<p>この表で述べられていることには賛同します。その上で私見を述べさせて頂くと、単なる「展望」としてではなく「将来構想」として考えると目標の具体的な達成手段がほとんど書かれていないことが気になります。特にモデル改良に関しては、「観測情報によってモデルの挙動を拘束すべし」と何度も訴えています。どうやったら正しく拘束できるのか全く述べられていません（モデルの高解像度化を除く）。</p> <p>エアロゾルシミュレーションの難しさは第一原理的な方程式系を大気モデルで解くのはあまりにも計算量が多くなりすぎて（おそらく100年先でも）無理なことにあると思います。しかし完全な第一原理的計算は無理と分かりつつも、モデル精度を上げるためには量子化学や化学反応論に基づいた方程式系を大気モデルに組み込む努力が必要です（そのためには大気化学者や気象学者も物性化学の深い知識が不可欠です）。また、どんなにモデル解像度を上げて（あるいはサブグリッドネスティングを試みたとしても）雲をナノメートルやマイクロメートルの解像度で計算することなどできませんから、どこかで化学的計算をあきらめてマクロ的パラメタリゼーションに頼る必要があります。この問題は利用可能な計算機資源が今後も増え続けるとしても深刻な課題として残ります。</p> <p>私の知る限り、大気モデルに組み込まれた雲微物理過程はまだまだ（たとえ雲解像モデルでも）経験則的な取り扱いが多くて、量子化学や化学反応論といった物性化学にしっかり基づいているとは思えません。その状態で、観測情報による拘束をかけても所謂その場しのぎになってしまうことを危惧します。かといって、膨大な計算時間を投入して化学に基づいた計算を実施したからといってモデル精度が上がる保証もないです。ただし、その場合には観測情報によって方程式系に拘束をかける意味はあると思います。</p> <p>これだけの総説を書いて下さった労力は本当に尊敬しますが、10年以内に達成すべき研究構想としてはもう少し具体的な達成方法（科学的手法や衛星・計算機の調達方法）の見通しに関する記述を入れて頂けたら良かったかと思えます。</p>		<p>第一原理的な計算と計算速度の両立については、第一原理的な計算を機械学習によって模倣することで計算速度を損わずに高精度化を図る試みも始まっており、今後検討されるべきアプローチと考えられます。その記述を3.2.5節に加えしました。観測情報によるモデルの拘束については、複数の観測パラメータを組み合わせた解析によって、パラメータ間の関係性を規定している物理プロセスを逆推定し、それに対応するモデル統計を作って比較することで当該プロセスのモデル表現を評価・拘束する手法が近年一部のプロセスについて提案されています。これをエアロゾル・雲・降水に関わる様々なプロセスに拡張していくことで、モデル素過程の定式化そのものやそこに含まれる不確実なパラメータを拘束していくのが有効なアプローチとして考えられます。この点に関する記述を3.2.2節と3.2.5節および表1に加えしました。</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	13	44	<p>福江、辺戸、能登など、国内で力点を置いている拠点を具体的に示すとよいと思います。また、研究用航空機（今後、無人機なども含めて）での調査など、一般論としてでもよいので、科学的解明に資することは記述すべきだと思います。</p>	金谷有剛 海洋研究開発機構	<p>ご指摘の通り、国内の観測拠点と研究用航空機の記述を2.3.2章の該当箇所に追加しました。</p>

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	15	70	現在の原稿でも各所では触れられています が、化学物質・反応・官能基と、本テーマで述べられているエアロゾルの光学特性・CCN/IN特性との関係性を結びつける研究は、今後、モデル化の意味でも大事になる可能性があるのでは、今回の将来構想を横断する記述として、どこかに入れられませんかでしょうか。たとえば、p.15 L70などに「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解明することは重要な課題である。」などと改めてまとめて述べるのはいかがでしょうか？	金谷有剛 海洋研究開発機構	コメントいただきありがとうございます。 3.1.4章の最初の段落の最後に追加しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	8	OAの再現性はどの程度悪かったのが改善したのか、簡潔に半定量的にでも記述できませんでしょうか。(異分野の研究者が、問題の程度を理解できるように)	金谷有剛 海洋研究開発機構	「大きく過小推定」を「1桁程度過小推定」に変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	18	6	簡単な修正でよいので、2.1.1, 2.1.2との間の重複の整理(短くする方向)をお願いします。	金谷有剛 海洋研究開発機構	少しですが、重複を減らすように修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	26	ブラックカーボン(BC)やブラウンカーボン(OAの一部)、・・・としたほうが誤解が少ないかと思いました。		ご指摘の通り修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	44	簡単でよいので、放出量データの差がどのくらいか、記述できませんでしょうか。		ご指摘を考慮し、以下の記述を追加しました：「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) Tg C year <sup>-1</sup> となっている。」
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	9	43	能登半島の先端とありますが、具体的な施設名を挙げたほうが良いと思います。		施設名「金沢大学能登大気観測スーパーサイト珠洲測定局」を加えました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	12	13	全体を通じて、SO4 --> SO4 <sup>2-</sup> 、NO3 --> NO3 <sup>-</sup> (^は上付き) (IPCCAR6WG1Chapter6に準ずる)とするか、硫酸塩、硝酸塩で通すかのどちらかが望ましい(図4を修正するかどうかは悩ましいが)		イオンの記述についてすべて添える形に統一しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	13	16	数%以内		94行目のコメントに準じて、「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」と修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	13	38	温暖化と越境大気汚染には相互作用やフィードバックはあるのでしょうか？(研究対象となるのでしょうか?)		温暖化による気候変動で気圧配置などの気象場が影響を受ける場合には、越境輸送そのもののパターンが変化することが考えられ、温暖化と越境大気汚染には何かしらのリンクは働いてくるものと考えます。コメントをふまえ、2.3.2の最終段落に「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。」という記述を追記し、前後の文脈を修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	17	22	OA濃度とそれに占めるSOAの割合の観測再現性は乏しいとありますが、簡潔に、半定量的にでも、どの程度の差異なのか、記述できませんでしょうか。		「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」を追加しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	18	2	誤解を避けるために、全球モデル-->化学気候モデル などと限定できませんでしょうか。化学輸送モデルは硝酸塩をある程度プロセススペースで表現できているものも多いと思います。		「気候モデル」に変更しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	23	19	「気候感度」について、簡単に説明願います。		「気候感度」の直後に（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）という説明書きを加えました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	23	31	「限られた側面」とは何を意味するのか、やや分かりにくく感じました。		「限られた側面」の直前に「搭載センサが感度を持つ」という文言を加えました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	5	53-54	おそらく物質の多寡は論じていないと思いますので、「量」は正確には「係数」でしょうか。		ご指摘をありがとうございます。正確には「複素屈折率の虚部の値」でしたので、修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	31	表1	究極のゴールのところ、エアロゾルの諸特性と並んで人体の有害性の把握・予測が挙げられていますが、oxidative potentialのようなものがイメージされ、本文の論旨とずれがあるように思いました。		この箇所は削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	16	1	地上のリモート観測はpassiveのみが記載されていますが、activeのことも触れるべきではないでしょうか？モデル検証では高度分布が重要な項目ですし、衛星観測の検証のための重要なデータであると思います。		ライダー観測に関する記述「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」をこの段落の最後に加筆しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	1	1	in situの観測機器は詳しいが、衛星観測の記載は大雑把であり、アンバランスであると思います。他の観測手法を含めて、記述レベルのバランスを取る必要があると思います。		日本の大気化学のコミュニティでは、エアロゾルのin-situ観測をされている方も多いため、そのような内容がある程度詳しくなるのは自然かと思えます。また、本原稿はこの分野の研究を網羅的に記述することを目的とはしていません。著者の専門も活かしてある程度トピックを選択し、それを掘り下げて記述するスタイルをとっています。  コメント提供者より：コメントのみです。日本大気化学会はそれ程多くの人はいないと思いますが、他の学会には衛星や遠隔観測の研究者が少なからずおられると思います。日本大気化学会は、日本の大気化学コミュニティ

					<p>の代表となるように育てて欲しいと思いますので、今回は、より幅広く将来の発展性がある分野もできるだけ入れるように考慮して執筆されることを願っています。また、企画の段階でその辺りがもっと議論されていたら良かったと思いました。将来構想の部分は、「著者の専門も活かしてある程度トピックを選択し、それを掘り下げて記述するスタイルをとっています。」は、申し訳ありませんがあまりよろしくないと思いました。</p> <p>日本大気化学会将来構想WG（金谷・持田）より：コメントをありがとうございます。日本大気化学会は他学会と比してまだ小規模のため全分野を網羅できない側面があり、今回は、編集側の方針として、対象を絞って目鼻を付けた形とする方針とさせていただいております。著者の回答は私たち編集側の方針に基づくものでしたので、ご理解いただければと思います。確かに、おっしゃるように、周辺分野を巻き込んでゆくことも将来的に大事ですので、次回の編集・執筆方針を検討する際には、ご意見を考慮させていただければ</p>
6：エアロゾル-放射・雲相互作用			折角執筆されて申し訳ありませんが、分量としては多すぎだと思います。原因は、上記コメント(他の原稿と比較して詳しくすぎるかも知れない)に関係するかも知れないと思います。記載内容を再考されるか、分割された方が良いように感じました。		今から大幅な変更は難しいので、現状の原稿の内容・分量でご了承ください。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	20	光吸収性エアロゾル全般について、最も基本的なパラメータである、複素屈折率の報告値についても簡単なレビューがあると良いです。レーザー誘起白熱法にも、BCコア測定粒径範囲、濃度上限、混合状態の測定粒径範囲等の制限、などといった技術的制約もあるので、熱光学法との相補的観点も述べてよいと思います。たぶんPileci et al. 2021 AMTなどが参考になります。BrCの測定法について、水などの溶媒に溶けるものについてはある程度確立された方法があると思いますので、測定法の説明があったほうが、BCとのバランスが良いです。また、海外研究のリファレンスをもう少し入れたほうがバランスが良いです。	茂木信宏 東京大学	ご指摘をありがとうございます。光吸収性エアロゾル全般の複素屈折率について、新たに2.1.4節を設けて簡単に述べました。また、レーザー誘起白熱法と熱光学法について、Pileci et al., 2021を参考に、以下の記述を2.1.1節に追加しました：「LII法と熱光学的手法は、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)。」さらに、BrCの測定法についての記述を2.1.2節に追加しました。これらの記述の追加により、海外研究の引用を増やしました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	2	50	難溶性BC (refractory BC; rBC) とありますが、rBCの日本語は、例えば、「高耐熱性BC」のほうが意味が原語に近い気がします。Tar ballはrBCほど耐熱性はありませんが、難溶性らしいです。参考： <a href="https://doi.org/10.1038/s41612-019-0069-5">https://doi.org/10.1038/s41612-019-0069-5</a>	茂木信宏 東京大学	ご指摘の通り、「高耐熱性BC」に修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	3	7	「発生直後の 裸に近い BC」⇒発生源によると思います。Wild fireでは発生直後から被覆されていることが多いはずです。	茂木信宏 東京大学	ご指摘を考慮し、「発生直後の裸に近いBC」という表現は削除しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	18	26	「BCは、燃料過程を通して一般的には被覆のない（または薄い）粒子として大気中に放出され」⇒燃料過程は燃焼過程の誤植？、Wild fireでは発生直後から被覆されていることが多いはずです。	茂木信宏 東京大学	ご指摘いただきありがとうございます。「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ことで、SO4, OA, NO3などによる被覆量が増大する。」に変更しました。

6：エアロゾル-放射・雲相互作用	18	37	「Moteki and Kondo, 2007」⇒「Moteki et al. 2007」	茂木信宏 東京大学	ご指摘のとおり修正しました。
6：エアロゾル-放射・雲相互作用	31		「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」⇒日本国内では、欧米に比べ、エアロゾル等の測定機器を正しく扱い目的に応じてハード・ソフトをリファクタリングできる技術スキルを持つ若手人材が不足しており、その育成は、モデルが必要とする観測の実施を長期的に可能にするうえで重要である。	茂木信宏 東京大学	コメントいただきありがとうございます。ご指摘のとおり、装置開発・観測に関わる人材の育成は重要な課題であり、3.1.3章にて言及しました。最後のサマリー表では、科学的な色の強い内容のみの記載とさせて頂きたいと思います。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	5	簡単な図を掲載できませんでしょうか。可能であれば、その図の中に、今後の課題についても多少記述できればベストです。	金谷有剛 海洋研究開発機構	図1として、文章の内容全体を包括する図を載せました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	1	27	late --> rate		修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	27	データの量が不足し、質も低い		他者からも類似の指摘を受け、「極めてデータの量が不足し、質も低く、不十分である。」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	4	62	データを解析する		修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	6	6	一方で、から始まる文を、少しわかりやすく修正していただけるとよいと思いました。		対応する文を整理して書き換えました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	8	57	成層圏の冷却は、から始まる文を、少しわかりやすく修正していただけるとよいと思いました。		「オゾンに関わる気相反応の温度依存性、特にO+O3→O2+O2の反応の温度依存性により」を付け加えました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	10	39	Miyoshi et al. をreferenceで見つけられませんでした。		Miyoshi et al.以外にも4章の参考文献がReferencesから落ちていました。再確認して、必要な追加と修正をしました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	11	67	キガリ		キガリに修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	14	41	対流圏オゾン成層圏オゾンと分離定量できるでしょうか。		FTIRによるオゾン解析では高度4～5層の分解能があるので、対流圏オゾンと成層圏オゾンの分離は可能です。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	14	44	モニタリングして何を明らかにするのでしょうか。		「モニタリングによる大気汚染の把握」と修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	16	43	SMILES		修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	17	65	MOSAIC（北極気候研究のための学際的漂流観測）における研究船舶搭載のライダー観測からも・・・		研究船舶搭載で正しいでしょうか？研究船舶搭載と重量性を排除してはどうか？
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	18	39	OMPS-Limb/JPSS-2はどうなっているのでしょうか。		JPSS-2のOMPS-LPについても追記しました。いかがでしょうか？
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	19	17	国内で提案されている		修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	21	6	SMILES		修正しました。p.22 L11にもスペルミスがありましたので修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	27	「圧倒的に」は一般的に勝っている様を表すと思いますので、「はるかに」、「極めて」といった表現を使われてはいかがでしょうか。		「極めて」に修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	25	「CCM」が初出ですので、スペルアウトが必要だと思います。		スペルアウトしました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	22	表4	「...磁気圏現象が与える影響とその気候影響の理解」の「与える影響」がどのようなものか言葉を加えてはいかがでしょうか。		「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、NOx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。」と修正しました。

7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	22	表4	「現在の重要なギャップ」のところで、観測手法に関わる課題点が述べられていますが、コアテーマに関する科学的理解についても、ギャップを示されてはいかがでしょうか。		<p>時空間分解能の不足は、単なる観測手法の課題より現象を理解し明らかにする上での根源的な課題です。さらにモデルに関する課題や衛星観測計画の停滞が生み出す問題を具体的に示して以下のように修正しました。</p> <p>「・対流圏-成層圏（-中間圏）の物質循環・相互作用を理解するためには、現状の観測データやモデルの時空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。</p> <p>・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。</p> <p>・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に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 (NO<sub>y</sub>)等の量の推定に支障をきたす可能性がある。」</p>
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	1	32	「その高度」を「対流圏界面高度」に		修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	27	「少なく、低いといった状況が存在する」を「不十分である」に		他者からも類似の指摘を受け、「極めてデータの量が不足し、質も低く、不十分である。」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	74	「波活動が」をトル		削除しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	15	「大気寿命」を「大気年齢」に		修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	22	「エルニーニョ、ラニーニャ・・・」の一文は、その前の文と統合しては？		「またエルニーニョ、ラニーニャによるSST条件の違いは、」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	49	「冬季に比べて相対的に・・・」の部分の意味を明確に。		「冬季に比べて相対的に」を省き「高水蒸気濃度の空気塊や」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	4	20	大気球実験の参照先は <a href="https://www.isas.jaxa.jp/missions/balloons/">https://www.isas.jaxa.jp/missions/balloons/</a>		URLを脚注に追記しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	4	41	UTLS領域の再現性に関する研究の引用文献として Bisht et al. (2021), <a href="https://doi.org/10.1029/2020JD033541">https://doi.org/10.1029/2020JD033541</a>		参考文献を追加しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題			SMILES, ODS, など、原稿最後の略語一覧に加えて、本文中で初出時にも説明があった方が読みやすい。		本文中のSMILES, ODS初出時にスペルアウトしました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	8	40	「N20は、フロンや・・・」の一文は、27行目に移動させては？		移動しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	12	24	日本のアクティビティなので、Nakazawa et al. (2002), Adv. Space Res., 30, 1349-1357. を引用しては？		Nakazawa et al. (2002)を引用し、参考文献にも追加しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	13	31	「委」を削除		削除しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	21	71	発生頻度「が」低い		修正しました。

7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	21	71	「数千万年のオーダー」の研究には、アイスコア（～80万年前まで）は使用できない		ご指摘の通りですので、誤解を招くため「アイスコア」は削除しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	1	1	著者の所属と脚注に両方数字が使われています。実質的には、分かるので問題ないと思いますが、今後引用される文章とするには、別のもの(アルファベット等)にするべきではないかと思えます。		脚注をアルファベットに変更しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	11-30	11行目以降は化学種に着目した対流圏界面について書かれており、化学種ベースで対流圏界面を決めるためには正確な濃度の観測が必要、というロジックだと思いますが、16行目の「また」以降の文章とその前の文章とのつながりがややわかりにくく感じました。		文意および繋がりを明確にするため、次のように改訂しました。「"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…」
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	16	「時間方向にも短期間に範囲は固定されていないが」は「短期間の観測でもよいが（空間方向に密に）」という意味でしょうか？		「範囲は固定されてもよいが」を省きました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	21-22	Limb観測だけでなく掩蔽観測は候補にならないのでしょうか？		「掩蔽観測」を追記し、より明確にするため「Limb（周縁）放射観測や掩蔽観測」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	2	36	受動型センサーでもNadirかLimbが掩蔽かで鉛直分解能は異なりますので、もう少し丁寧な記述（補足、追記）が必要かと思えます。		「受動型センサーのLimb観測では」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	25	5ページ目ではなく初出のこちらでCCMのスペルアウトを。		初出にスペルアウトをしました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	34-36	STEは…、対流圏界面近傍におけるSTE過程にも影響を与えている。STEがSTE過程に影響を与えるというのはどういうことでしょうか？		説明を補足しました。「"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」
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	3	48-51	夏季が冬季に比べて水蒸気が高濃度となっている＝対流圏からの流入が相対的に多い→汚染物質等も流入している、ということでしょうか？		ご指摘の通り、上昇流が卓越する時期、場所なので、高濃度の水蒸気だけでなく汚染物質も流入するという点を記述したかったです。他者からの指摘もあり、「冬季に比べて相対的に」を省き「高水蒸気濃度の空気塊や」としました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	5	23-24	気温低下に伴うオゾン濃度の増加、について補足の説明は不要でしょうか？（オゾン消失反応の減速、など）		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、のように修正しました。
7：成層圏・中間圏の大気化学の諸問題	8	29-32	HNO3はPSCの成分でもありますが、NOxはリザポアであるCIONO2の生成に必要ですので、HNO3が多い＝オゾン破壊が進む、と書いてしまうと誤解を招かないでしょうか？		N2O増加→HNO3増加→PSC増加→オゾン破壊促進の可能性については極域下部成層圏春季に限られますので、その他の可能性という位置づけにしました。NOxが増加することにより、CIONO2の生成をとおしてClOxを封じ込める効果もあるかとは思いますが、オゾン全量に対する影響を考えた場合、オゾン量の多い下部成層圏ではかなり小さいと思われるので、30-40km付近ではClOx濃度が大きいので、この封じ込め効果もそれなりにあると思われるのですが、NOxの増加によってNOxのオゾン破壊触媒サイクルによるオゾン破壊が進む影響の方が大きいと思われるので (Ravishankara, 2009, Supporting material, Fig.S1)、このプロセスをメインにした記述にしました。
特定のコアテーマを対象とするコメントではありませんが、ご担当の原稿で対応の余地があるかご検討下さい。			全体を通じたギャップ：福島原発事故由来の放射性物質の挙動調査・モデルから得られた知見があった点をどこかで触れたほうがよい。		日本大気化学会将来構想WG（金谷・持田）より：各論部での具体的な記述には至りませんでした。概論の表1（大気化学研究の歩み）にて、放射性物質について記述しました。

<p>特定のコアテーマを対象とするコメントではありませんが、ご担当の原稿で対応の余地があるかご検討下さい。</p>	<p>ギャップの確認</p>	<p>各論のすべてを読ませていただきまして、大気化学の広い研究対象をほぼ網羅できていると思いました。ただ、私も執筆者の一人ですが、当初は各論の1テーマ10ページ程度という話があったのですが、十数ページのものとは50ページに及ぶものが混在し、前者のものでは網羅が十分でなかったり、詳細を説明できていなかったりになってしまっているかと、自己反省も踏まえ、思います。</p> <p>今回、加えるべきという意味で指摘するのではなく、網羅という観点から、私が気づいたところを下記に列挙します。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>①新しいエネルギーの大気への影響で、水素やアンモニア</li> <li>②小さい粒径の粒子の放出（GDI、航空機）の環境影響</li> <li>③エアロゾル成分（EC/OC以外で、金属、HULIS、マイクロプラスチック）と健康影響、健康影響関連で水銀</li> <li>④新粒子生成、特に既存粒子存在下でも起きる強い新粒子生成</li> <li>⑤雷の影響</li> </ul> <p>言葉として出てきているものもありますが、テーマをまたいだ内容のモノの場合、その整理の仕方の問題かと思えます。</p>	<p>日本大気化学会将来構想WG（金谷・持田）より：取りまとめ側の力不足により、ボリュームや網羅性を十分に揃えるに至らず申し訳ありません。次回の参考として申し送りたいと思います。①~⑤についてもご指摘通り、横断的な記述や整理が十分にできませんでしたが、このご意見と回答を公開することをもって、これらの項目について言及があったことの記録とさせていただきます。</p>
---	----------------	--	--