



Title	冷温帯林の森林植生に由来する大気エアロゾルと雲粒生成への影響
Author(s)	宮崎, 雄三
Citation	低温科学, 77, 17-25
Issue Date	2019-03-20
DOI	10.14943/lowtemsci.77.17
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/73989
Type	bulletin (article)
File Information	05_p017-025.pdf



[Instructions for use](#)

冷温帯林の森林植生に由来する大気エアロゾルと雲粒生成への影響

宮崎 雄三¹⁾

2018年11月21日受付, 2018年12月11日受理

大気エアロゾル中の有機物は陸域生態系に巨大な自然発生源をもち、気候変動や生物地球化学的な炭素・窒素循環に深く関わる。特に森林生態系においては、エアロゾルを介した大気-植生間の相互作用の定量的理解が必要である。本稿では、気候変化に対する応答感度が高い冷温帯林での森林植生に由来する大気有機エアロゾルの起源、およびエアロゾルの気候影響の評価において重要な有機物の雲粒生成への影響に関し、筆者らが行ってきた観測研究の成果について解説する。

Atmospheric aerosols originated from cool-temperate forest vegetation and their effects on the formation of cloud particles

Yuzo Miyazaki¹

It is crucial to quantitatively understand the origin of biogenic organic aerosol in the atmosphere, because organics in atmospheric aerosol particles are closely linked to climate impact of aerosol as well as biogeochemical cycle of bioelements, such as nitrogen and carbon. Origin of natural organic aerosols and their effects on climate through the formation of cloud particles are discussed.

キーワード：大気エアロゾル, 森林植生, 有機物, 雲生成

Atmospheric aerosol, Forest vegetation, Organic matter, Cloud formation

1. はじめに

大気に浮かぶ微粒子（エアロゾル）は、太陽の光を効果的に散乱・吸収することで気温の変化をもたらす。さらに雲を構成する雲粒（個々の水滴や氷晶）ができる際の核（雲凝結核, Cloud Condensation Nuclei; CCN）として働くことで、雲や雨の量、雨の降り方に影響を与えるなど気候変動の重要な因子である。エアロゾルを構成する成分の中で最大 80~90%の質量割合を占める有機物

の多くは、陸上生態系に由来していると考えられている。しかし、温暖化など気候変化の影響を受けやすい寒冷域において、生態系に由来する有機物の「種類」と「量」の違いがエアロゾルや雲の生成に与える影響については未解明な点が多く、気候に影響する因子のなかで最も不確かなものの一つと考えられている。気候変動のメカニズムの解明において、生態系由来の大気エアロゾルによる放射収支や雲・降水過程への影響をより正確に理解することは大きな課題として残されている。

生態系に由来する大気エアロゾルには、大気に放出される揮発性有機化合物（Volatile Organic Compounds; VOCs）を前駆体として生成する生物起源二次有機エアロゾル（Biogenic Secondary Organic Aerosol; BSOA）が含まれる。Hallquist et al. (2009) による見積もりでは、炭素換算で有機エアロゾルの放出生成の半分を超える 88TgC yr^{-1} が BSOA として供給されていると推定されており、BSOA は全球の有機エアロゾルの多くの割合を占めると考えられる。大きい存在量が推定される BSOA

連絡先

宮崎 雄三

北海道大学 低温科学研究所

〒060-0819 札幌市北区北 19 条西 8 丁目

Tel. 011-706-7448

e-mail : yuzom@lowtem.hokudai.ac.jp

1) 北海道大学 低温科学研究所

Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, Sapporo, Japan

の雲生成への影響を理解することは、陸上生態系と気候の相互作用 (Kulmala et al., 2004) の視点を含め、近年の地球温暖化や長期の気候変動を理解する上で重要である。また、大気エアロゾルは放出生成されるのみならず、地表面への沈着過程を通して陸上生態系に汚染物質などを負荷することで、生物地球化学的な循環に影響を及ぼす。この生物地球化学的なプロセスに伴うエアロゾルの放射影響は、 $-0.5 \pm 0.4 \text{ Wm}^{-2}$ もの放射強制力に匹敵するという見積もりもなされている (Mahowald, 2011)。

陸域生態系の中でも、森林域は大気エアロゾルの重要な発生源および消失源である。森林における植生の光合成と植物からの揮発性有機化合物の放出、及び有機物を中心とするエアロゾル生成は密接に関連しており、大気と陸面の生物地球化学的な相互作用を考える上で重要なプロセスである (図1)。森林域の中でも、高緯度帯に広がる北方林は世界の森林の約三割を占めている。寒冷圏の森林植生活動は気温の変化に対する応答感度が高く、森林を中心とする自然起源のエアロゾルの数濃度は、寒冷圏の大気境界層内において気温の上昇に伴って増加することが明らかになっている (Paasonen et al., 2013)。これは主に、気温上昇に伴って植生起源の VOCs (Biogenic VOCs; BVOCs) の放出量が増大し、生成する BSOA の数が増加するためである。これにより、雲凝結核として働くエアロゾルの数も増加し、結果として雲粒

の生成量が増加する。その結果、大気の冷却効果が働くという負のフィードバックが、エアロゾルを介して陸上生態系と大気の間で働く可能性を示している (図1)。

大気中において BVOCs の酸化反応等により生成される BSOA は、極性の官能基をもつことから水溶性の有機エアロゾルと密接に関係している。逆に言うと、有機エアロゾルがもつ「水への溶けやすさ」という化学的性質は、官能基や分子構造を通して粒子の生成履歴を示している。また、水 (水蒸気) は普遍的に存在する大気成分であり、粒子の化学的性質が凝結する水分量を決定づけるなど、エアロゾルの吸湿特性と密接に関係する。さらに近年では、エアロゾル中の「水」を媒体にした反応が、BSOA 生成に重要な役割を果たすことが指摘されている。したがって有機エアロゾルの水溶性特性は、その生成過程や化学・物理特性を理解する上で重要な指標である (宮崎, 2012)。

雲凝結核の活性度を制御する主要な因子はエアロゾル粒子の水溶性と吸湿特性であり、これらは化学組成の関数である (McFiggans et al., 2006)。ここで、雲粒の生成ポテンシャルを示すパラメーター κ は主に溶質濃度の大小によるエアロゾル粒子の吸湿性の違いを表し、エアロゾルの雲凝結核活性への化学組成の影響を表現する (Petters and Kreidenweis, 2007; 持田, 2014)。有機物と同様にエアロゾルの主要成分である硫酸塩は、雲凝結核

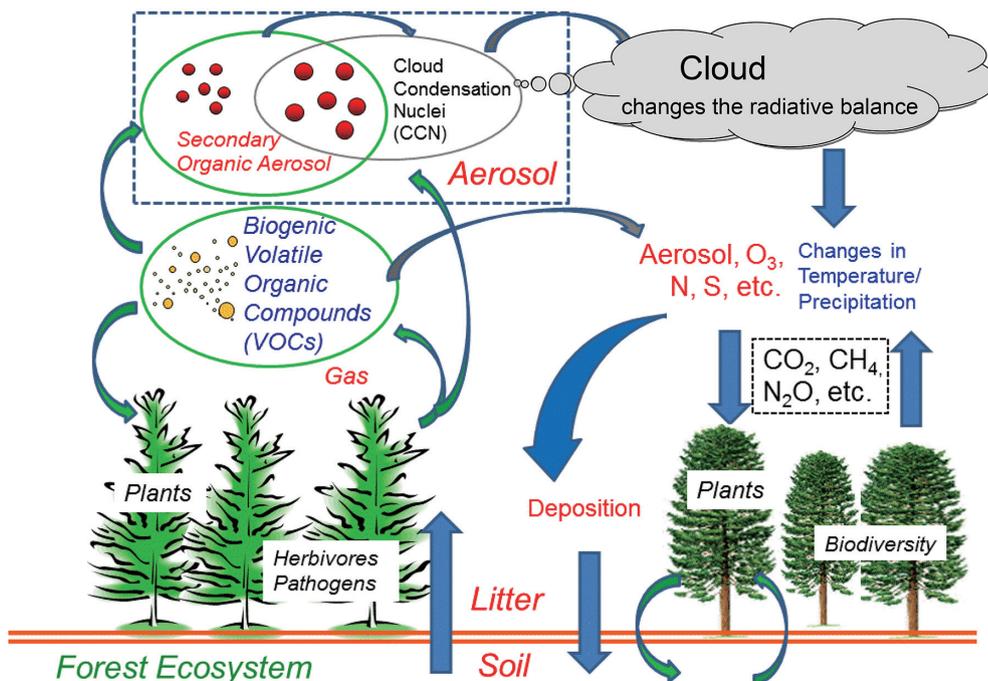


図1：有機エアロゾルを介した森林生態系と大気の相互作用の模式図。気温上昇に伴い森林生態系が有機化合物をより多く放出し、エアロゾル成長と雲粒子濃度を増大させることで放射バランスと森林生態系へ影響を与えるフィードバックを示す。

の活性に最も効果的な成分であり、 κ 値は 0.6 より大きい値を示す。一方、有機物の κ 値は一般的に小さく、BSOA の κ の典型値は 0.3 より低い。植生起源の影響を強く受ける森林大気のエアロゾルにおいて、有機物は粒子の大きな質量割合を占め、その多くはイソプレンやモノテルペン（主に α -ピネン）のような BVOCs から酸化生成される BSOA から成る。一方、植生から直接放出される一次生物起源エアロゾル（Primary Biological Aerosol Particles; PBAPs）もまた、有機エアロゾルの重要な起源となる。図 2 に植生から放出される BVOCs と BSOA、および PBAPs のトレーサーとなる有機化合物の一例を示す。これら植生起源の有機エアロゾルの大半は水溶性を示す（Kanakidou et al., 2005）。植生起源有機物と硫酸塩の相対量は、エアロゾルの雲凝結核活性を変化させるため重要であると考えられている。

大気エアロゾルがどのような起源からどのように生成されたかを知る上で鍵となる因子は、粒子の大きさと化学組成であり、ここでは主に寒冷圏の森林大気エアロゾルにおける水溶性有機炭素（Water-Soluble Organic Carbon; WSOC）の起源と雲粒生成への影響について述べる。本稿の筆者らは植生に由来するエアロゾルについて、その起源や雲粒の生成に果たす役割を明らかにするため、2009 年から国内の数カ所の森林観測サイトで長期（数年スケール）・短期（数週間スケール）の大気観測を行ってきた（Miyazaki et al., 2012a; 2012b; Jung et al.,

2013; Miyazaki et al., 2014; Mochizuki et al., 2015; Müller et al., 2017）。そのなかでも本稿では、冷温帯林の代表的な植生を有する北海道大学・苫小牧研究林および森林総合研究所・北海道支所演習林で行ってきた植生起源の有機エアロゾルと雲粒生成への影響に関する研究について解説する。

2. 森林大気エアロゾル試料の採取および化学分析と雲粒生成ポテンシャルの測定

大気エアロゾル試料の取得は森林総合研究所・北海道支所演習林（42°59'N, 141°23'E）内、及び北海道大学・苫小牧研究林（42°43'N, 141°36'E）内の各観測タワーにおいて、それぞれ通年で行った。森林総合研究所・北海道支所演習林の主要構成種はシラカンバ、ミズナラなどの落葉広葉樹であるが、周囲には常緑針葉樹も存在する。林床植生はササで、地表面を広く覆っており、森林内のキャノピー平均高度は約 20 m である（Nakai et al., 2003）。大気エアロゾル試料は 2009 年 6 月 - 2010 年 12 月の期間、約 1 週間ごとにハイボリウムエアサンプラーを用いてエアロゾル全量（Total Suspended Particles; TSP）を石英繊維フィルター上に連続的に取得した。

北海道大学・苫小牧研究林では粒径（粒子の直径）ごとに分けた大気エアロゾルの採取と雲粒生成ポテンシ

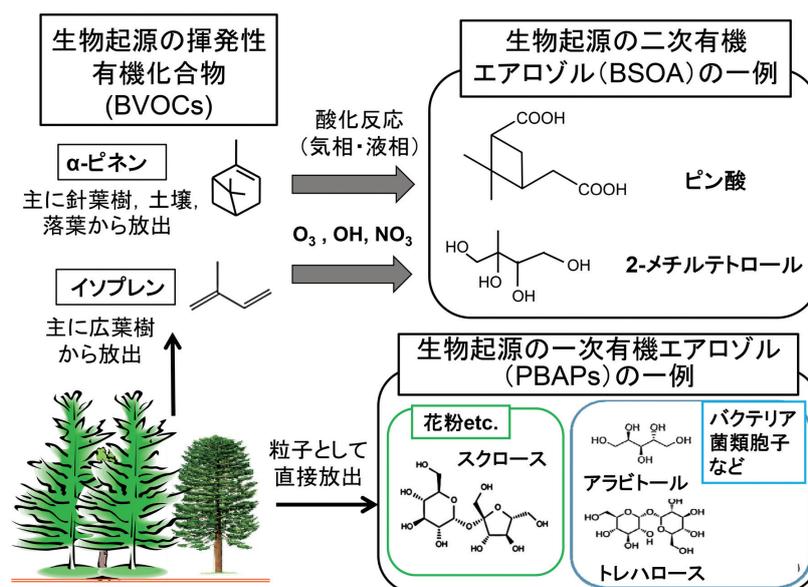


図 2：植生から放出される BVOCs (Biogenic Volatile Organic Compounds) と大気中での反応で生成する BSOA (Biogenic Secondary Organic Aerosol)、および植生等から直接大気へ放出される PBAPs (Primary Biological Aerosol Particles) の代表的な有機化合物。

WSOC 質量に寄与していると考えられる。特に秋の WSOC 濃度増大は、落葉等に伴う微生物等の大気への飛散および BVOCs の放出が WSOC 濃度に寄与していることを示唆している。一方、イソプレンに由来する BSOA は盛夏（7月-8月）にピークを示すなど、 α -ピネンに由来する BSOA とは異なる季節性を示し、この時期の WSOC 濃度の約 4 割を占めている。この季節性は、主に光合成が最も活発になる盛夏において、気温と光強度に依存するイソプレン放出量と大気の酸化能が最大となることに起因する。 α -ピネンに由来する BSOA と併せ、盛夏の WSOC にはイソプレンに由来する BSOA 生成が支配的に寄与している。このように森林大気エアロゾル中の有機物の量は、植生の活動度に強く影響を受けて季節的に大きく変動している。

4. サブミクロンエアロゾルの雲粒生成ポテンシャルの季節変化

図 4a に苫小牧研究林にて 2013 年と 2015 年に得られたサブミクロン水溶性エアロゾルの κ の月平均値を示す。ここでの κ (0.26–0.56; 平均 0.44 \pm 0.07) は他の森林大気においてオンライン「その場」測定で得られた

値（典型値 0.3 以下）（e.g., Pöschl, U. et al., 2010; Fors et al., 2011）よりも平均的に大きい値を示した。これは純水抽出したエアロゾルの κ は水溶性成分を対象としているため、その場測定による非水溶性成分も含むエアロゾルと比べ、一般的に κ 値が高くなると解釈できる。 κ は夏（6月-8月）に最大となり、秋（9月-11月）に最小となる明瞭な季節変化を示している。この季節変化は 2013 年と 2015 年ともに見られ、再現性のある傾向であることがわかる。雲粒生成ポテンシャル κ の季節変化は測定された場所に依存するが、過去の研究でも森林大気エアロゾルの吸湿性が低くなる原因は有機物の割合が大きくなるため、その有機物は BVOC の放出増加とそれに伴う BSOA 生成に起因する、と推測されてきた。しかし、それを裏付けるエアロゾル化学組成の測定、特に通年で雲粒生成ポテンシャルと同時に測定した研究例は限られていた。

そこで上記の κ の時系列変動に対応した水溶性エアロゾル中の有機物と硫酸塩の質量割合の季節変化を図 4b に示す。平均すると夏には硫酸塩が支配的な成分でサブミクロン水溶性エアロゾルの約 60% を占め、 κ が最大となることに対応している。一方、秋に水溶性有機物の質量割合（ \sim 35%）が最大となる特徴が見取れ、 κ がこの

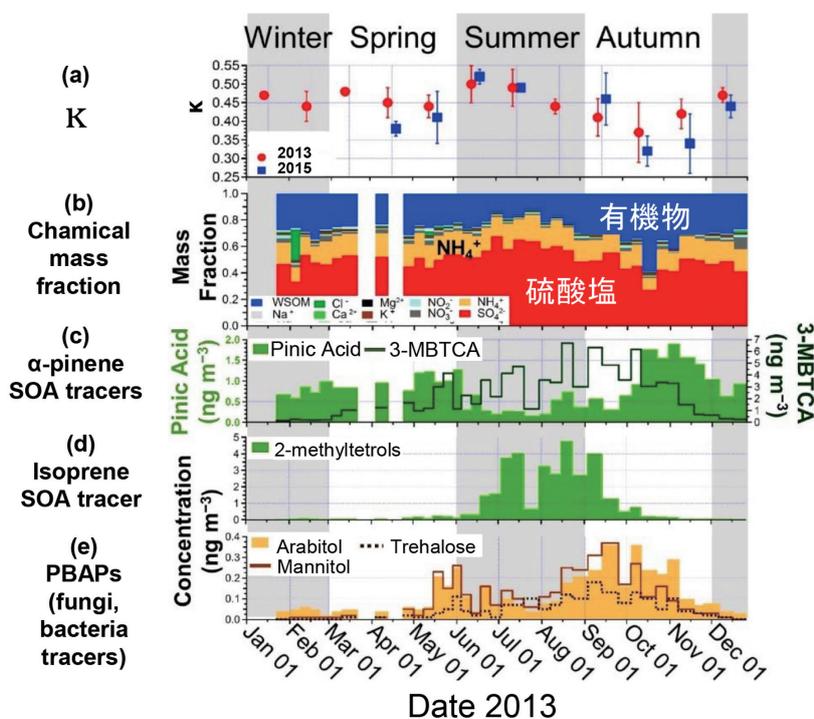


図 4：北海道大学・苫小牧研究林において、(a) 2013 年と 2015 年に得られたサブミクロン水溶性エアロゾルの κ の月平均値、2013 年に観測された (b) 水溶性エアロゾル中の WSOC と硫酸塩の質量割合の季節変化、および (c) α -ピネン SOA (3-MBTCA は α -ピネンの高次酸化生成物)、(d) イソプレン SOA、(e) PBAPs の各トレーサー化合物の季節変化。

Müller et al. (2017) の図を改訂。

季節に最小となることと対応する。図5に水溶性エアロゾルの κ と有機物/硫酸塩の比との相関図を示す。1年間のデータを通して κ 値は有機物/硫酸塩の比と負の相関を示した(全データ $R^2=0.60$; 月平均データ $R^2=0.66$)。相関係数 R^2 は2015年のデータでも0.79(全データ), 0.76(月平均データ)と高く, 有意な正の相関を示した。このことは, 硫酸塩に対する有機物の相対的な存在比がサブミクロン粒子の雲粒生成ポテンシャルを制御する重要な因子であることを示唆している。

ここで注目すべきは有機物/硫酸塩の比が同程度の値(0.62–0.64)を示すデータ群についても, κ 値が秋(0.41–0.42)と冬(0.44–0.47)で有意に異なるという事実である(図5)。これは, 水溶性エアロゾルの有機物の化学組成の違いが κ を変化させることを意味している。具体的には, 秋に観測された有機物は, 冬よりも吸湿性の低い成分を含むことを示唆している。有機物の起源とそれに伴う化学組成を明らかにするため, 図4c–4eにBSOAとPBAPsの代表的なトレーサー化合物濃度の季節変化を示す。秋には α -ピネンの低次酸化生成物

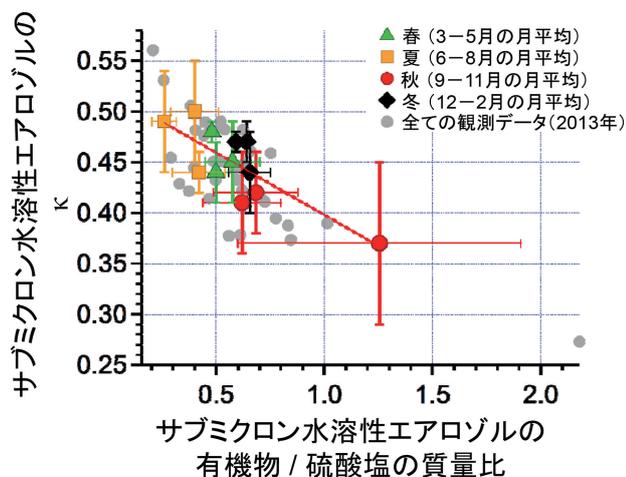


図5: サブミクロン水溶性エアロゾルの κ と有機物/硫酸塩の比との関係。Müller et al. (2017) の図を改訂。

であるピネンの濃度が最大となる(図4c)。さらに, アラビトールやトレハロース等の糖類化合物の濃度も同じ季節に最大値となった。これは前述の森林総研サイトでのTSP中の有機物の季節変化の傾向と類似している。秋の有機物の濃度増加は α -ピネン由来BSOAとPBAPs両方の濃度増大と関連していることを示している。近年は冷温帯林を含む高緯度帯の森林において, α -ピネンが根や落葉, 高い脱窒速度とともに土壌の微生物活動に伴って放出することが報告されている(Aaltonen et al., 2011; Faiola et al., 2014)。秋に観測されたエアロゾル中のピネン酸と糖類トレーサー化合物の濃度増加は, この季節のピネン酸生成前駆物質である α -ピネンが樹木の葉よりもむしろ林床に由来しており, さらにこれが κ の減少に関係していることを示唆している。一方, イソプレン由来BSOAのトレーサーである2-メチルテトラオール濃度は夏に最大となるが, これは森林総研サイトでの結果と同様, 気温と光強度が最大となるこの時期に, イソプレンの放出とBSOA生成量が最大となることに起因する。

図6にPMF解析によって計算された, 苫小牧研究林での各季節におけるサブミクロンエアロゾル中のWSOC質量への各起源の寄与を示す。秋はWSOC質量の75%が, α -ピネンに由来するBSOAおよび菌類やバクテリア由来の有機物に起因している。 α -ピネン由来BSOAの寄与は春にも顕著に大きく, 平均でWSOCの57%を占めた。前述の森林総研サイトでのTSPの結果とは異なり, サブミクロン粒子への花粉起源の寄与は小さく, 春や夏においても7%以下となった。これは花粉粒子が主にスーパーミクロン粒子に多く存在することと整合的である。夏には人為起源の硫酸塩起源がWSOC質量の多く(～57%)を占める一方, α -ピネンBSOAや菌類・バクテリア由来の有機物の寄与は小さい(～28%)という結果が得られている。エアロゾル中の硫酸塩濃度の増大は粒子の酸化状態を高め, 高水溶性の有機物の生

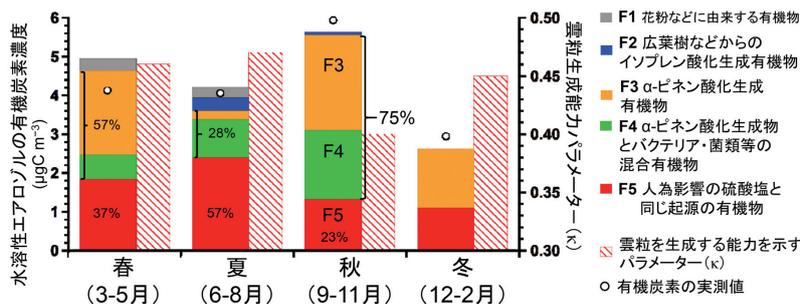


図6: PMF解析によって計算された, 各季節におけるWSOC質量への各起源の寄与と κ 平均値。Müller et al. (2017) の図を改訂。

成を促進し、高酸化有機物が夏の WSOC 質量に支配的に寄与していることを示唆している。対照的に、冬の WSOC 平均濃度は年間を通して最も低く、低酸化 α -ピネン BSOA や人為起源の硫酸塩の寄与が支配的である。これらの結果は、WSOC 質量に対し異なる起源の寄与が雲粒の生成ポテンシャルを制御する上で重要であることを示しており、特に秋の林床付近からの有機物放出が κ の減少の主な要因であることを示唆している。

5. 冷温帯林における雲粒生成の制御要因

エアロゾルの雲粒生成ポテンシャルの減少は、粒子中における表面活性有機物の増加に起因すると考えられる (Sorjamaa et al., 2004; Frosch et al., 2011)。前述の κ の減少のメカニズムを説明する一例として、Renbaum-Wolff et al. (2016) による最近の室内実験を例に挙げると、硫酸塩と α -ピネン酸化生成物に富む BSOA が内部混合した粒子で液相-液相分離が起きている。この研究例では、高い相対湿度の条件下で、エアロゾル粒子表面で α -ピネン由来の二次生成有機物の相、粒子の内部で水に富む相に分離することを見出しているが、この粒子表面の有機物に富んだ相は、粒子が雲凝結核として活性化することを阻害しうる。したがって、 α -ピネン由来の有機物が硫酸塩に対して相対的に多い秋において、このメカニズムがエアロゾルの雲粒生成ポテンシャルの低下を

一部説明できると考えられる。

以上をまとめると、筆者らの観測結果からは、低緯度地域と比ベインプレンの放出量が相対的に小さい冷温帯林において、秋におけるエアロゾル中の有機物の大部分（およそ 75%）は、森林内の地表付近で分解された有機物が土壌や落ち葉などから主に α -ピネンとして放出され、大気エアロゾルの生成後に雲粒生成ポテンシャルを低下させていることが示唆された。従来は、森林での BVOCs・エアロゾルの主な放出源は樹木の葉であるとの考えが一般的であり、特に本稿で重要性を述べた α -ピネンは、主に針葉樹の葉から放出されるというのが一般的な認識であった。また、これまでは雲粒の核として働く硫酸エアロゾルの数が多いほど、単純に雲粒の数が増えると考えられてきた。筆者らの研究結果からは、森林環境の中でも土壌や落ち葉など林床付近で分解され大気へ放出された有機物が、サブミクロンエアロゾルの雲粒生成能力を抑制しうる可能性をフィールド観測から初めて示した (図 7)。

6. 寒冷域植生からのエアロゾル・雲粒生成と生態系へのフィードバックのメカニズム解明に向けて

近年、冷温帯を含む高緯度帯の森林において、地表付近から大気へ放出される有機物の量は、条件によっては葉から放出される有機物と同程度であることが指摘され

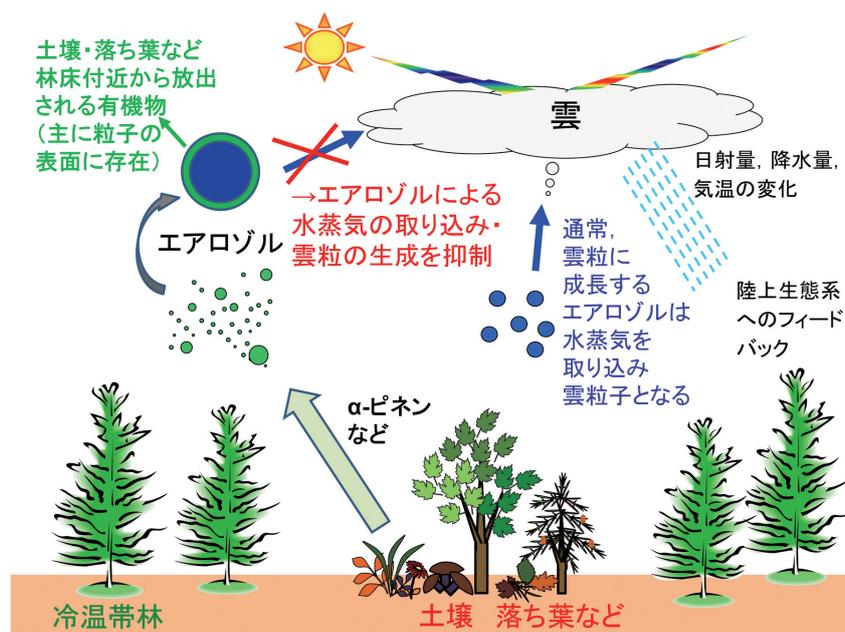


図 7: 本稿で紹介した筆者らの研究 (Müller et al., 2017) で提唱された、冷温帯林の林床からの有機物放出がエアロゾルの雲粒生成ポテンシャルを抑制することを示す模式図。

ている (Faiola et al., 2014). 森林植生は気温変化や日照量、降水の変化など気候影響を受けるだけの「受け身」ではなく、大気の組成を変化させることで気候の変化に深く関与している。寒冷域における陸域植生の種類の違い、特に地表付近から発生する生態系由来の有機物が雲の生成抑制に与えるグローバルな影響を把握するには、高緯度帯での異なる植生を有する他の森林域での観測データも必要となる。

また、エアロゾル中の液相もしくは固相において、本稿で紹介した有機成分が具体的にどのようなメカニズムで雲粒への成長を阻害しているのか、他の植生由来の有機成分と比べ成長の阻害要因として何が違うのかなど、分子レベルの室内実験や理論計算により、本稿で紹介した研究結果の裏付け、マクロスケールの影響を理解するためのミクロスケールのメカニズムの定量的理解が必要となる。さらに、より広範に高緯度帯全域スケールでの気候影響や生態系へのフィードバックなども今後解明すべき課題である。ここで解説した研究は、温暖化などに起因する寒冷域の植生・土地利用の変化に伴う「有機物の種類と量の変化」が、大気を介して引き起こす将来的な気候影響を精度よく評価する上での、新たな知見となることが期待される。

謝辞

本稿で解説した研究成果は、引用元の原著論文の共著者など、多くの方々の協力により得られました。研究は文部科学省科研費、住友財団、鉄鋼環境基金、アサヒグループ学術振興財団、ノーステック財団および北海道大学低温科学研究所の助成を受けて行われました。この場を借りて、深謝の意を表します。

参考文献

- Aaltonen, H., J. Pumpanen, M. Pihlatie, H. Hakola, H. Hellén, L. Kulmala, T. Vesala and J. Bäck (2011) Boreal pine forest floor biogenic volatile organic compound emissions peak in early summer and autumn. *Agric. For. Meteorol.*, **151**, 682–691.
- Faiola, C. L., G. S. Vanderschelden, M. Wen, F. C. Elloy, D. R. Cobos, R. J. Watts, B. T. Jobson and T. M. Vanreken (2014) SOA formation potential of emissions from soil and leaf litter. *Environ. Sci. Technol.*, **8**, 2, 938–946.
- Fors, E. O., E. Swietlicki, B. Svenningsson, A. Kristensson, G. P. Frank and M. Sporre (2011) Hygroscopic properties of the ambient aerosol in southern Sweden - a two year study. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 8343–8361.
- Frosch, M., N. L. Prisle, M. Bilde, Z. Varga and G. Kiss (2011) Joint effect of organic acids and inorganic salts on cloud droplet activation. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 3895–3911.
- Hallquist, M., J. C. Wenger, U. Baltensperger, Y. Rudich, D. Simpson, M. Claeys, J. Dommen, N. M. Donahue, C. George, A. H. Goldstein, J. F. Hamilton, H. Herrmann, T. Hoffmann, Y. Iinuma, M. Jang, M. E. Jenkin, J. L. Jimenez, A. Kiendler-Scharr, W. Maenhaut, G. McFiggans, T. F. Mentel, A. Monod, A. S. H. Prévôt, J. H. Seinfeld, J. D. Surratt, R. Szmigielski and J. Wildt (2009) The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 5155–5236.
- Jung, J., Y. Miyazaki and K. Kawamura (2013) Different characteristics of new particle formation between urban and deciduous forest sites in northern Japan during the summers of 2010–2011. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 51–68.
- Kanakidou, M., J. H. Seinfeld, S. N. Pandis, I. Barnes, F. J. Dentener, M. C. Facchini, R. Van Dingenen, B. Ervens, A. Nenes, C. J. Nielsen, E. Swietlicki, J. P. Putaud, Y. Balkanski, S. Fuzzi, J. Horth, G. K. Moortgat, R. Winterhalter, C. E. L. Myhre, K. Tsigaridis, E. Vignati, E. G. Stephanou and J. Wilson (2005) Organic aerosol and global climate modelling: a review. *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 1053–1123.
- Kulmala, M., T. Suni, K. E. J. Lehtinen, M. Dal Maso, M. Boy, A. Reissell, Ü. Rannik, P. Aalto, P. Keronen, H. Hakola, J. Bäck, T. Hoffmann, T. Vesala and P. Hari (2004) A new feedback mechanism linking forests, aerosols, and climate. *Atmos. Chem. Phys.*, **4**, 557–562.
- Mahowald, N. (2011) Aerosol Indirect Effect on Biogeochemical Cycles and Climate. *Science*, **334**, 794–796.
- McFiggans, G., P. Artaxo, U. Baltensperger, H. Coe, M. C. Facchini, G. Feingold, S. Fuzzi, M. Gysel, A. Laaksonen, U. Lohmann, T. F. Mentel, D. M. Murphy, C. D. O'Dowd, J. R. Snider and E. Weingartner (2006) The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 2593–2649.
- 宮崎雄三 (2012) 水溶性有機エアロゾルの化学組成と二次生成プロセスのレビュー. エアロゾル研究, **27** (1), 24–33.
- Miyazaki, Y., P. Fu, K. Kawamura, Y. Mizoguchi and K. Yamanoi (2012a) Seasonal variations of stable carbon isotopic composition and biogenic tracer compounds of water-soluble organic aerosols in a deciduous forest. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 1367–1376.
- Miyazaki, Y., J. Jung, P. Fu, Y. Mizoguchi, K. Yamanoi and K. Kawamura (2012b) Evidence of formation of submicrometer water-soluble organic aerosols at a deciduous forest site in northern Japan in summer. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **117**, D19213, doi:10.1029/2012JD018250.
- Miyazaki, Y., P. Fu, K. Ono, E. Tachibana and K. Kawamura (2014) Seasonal cycles of water-soluble organic nitrogen aerosols in a deciduous broadleaf forest in northern Japan. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **119**, 1440–1454, doi: 10.

- 1029/2013JD020713.
- Mochizuki, T., Y. Miyazaki, K. Ono, R. Wada, Y. Takahashi, N. Saigusa, K. Kawamura and A. Tani (2015) Emissions of biogenic volatile organic compounds and subsequent formation of secondary organic aerosols in a *Larix kaempferi* forest. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 12029–12041, doi: 10.5194/acp-15-12029-2015.
- 持田陸宏 (2014) 大気エアロゾル粒子の吸湿性と雲凝結核活性: 理論, 測定および展望. *低温科学*, **72**, 41–48.
- Moore, R. H., A. Nenes and J. Medina (2010) Scanning Mobility CCN Analysis — A Method for Fast Measurements of Size-Resolved CCN Distributions and Activation Kinetics. *Aerosol Sci. Technol.*, **44**, 861–871.
- Müller, A., Y. Miyazaki, E. Tachibana, K. Kawamura and T. Hiura (2017) Evidence of a reduction in cloud condensation nuclei activity of water-soluble aerosols caused by biogenic emissions in a cool-temperate forest. *Sci. Rep.*, **7**, 8452, doi: 10.1038/s41598-017-08112-9.
- Nakai, Y., K. Kitamura, S. Suzuki and S. Abe (2003) Year-long carbon dioxide exchange above a broadleaf deciduous forest in Sapporo, Northern Japan. *Tellus*, **55B**, 305–312.
- Paasonen, P., A. Asmi, T. Petäjä, M. K. Kajos, M. Äijälä, H. Junninen, T. Holst, J. P. D. Abbatt, A. Arneth, W. Birmili, H. D. van der Gon, A. Hamed, A. Hoffer, L. Laakso, A. Laaksonen, W. R. Leaitch, C. Plass-Dülmer, S. C. Pryor, P. Räisänen, E. Swietlicki, A. Wiedensohler, D. R. Worsnop, V.-M. Kerminen and M. Kulmala (2013) Warming-induced increase in aerosol number concentration likely to moderate climate change. *Nature Geoscience*, **6**, 438–442.
- Paatero, P. and U. Tapper (1994) Positive matrix factorization: a nonnegative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics*, **5**, 111–126.
- Petters, M. D. and S. M. Kreidenweis (2007) A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 1961–1971.
- Pöschl, U., S. T. Martin, B. Sinha, Q. Chen, S. S. Gunthe, J. A. Huffman, S. Borrmann, D. K. Farmer, R. M. Garland, G. Helas, J. L. Jimenez, S. M. King, A. Manzi, E. Mikhailov, T. Pauliquevis, M. D. Petters, A. J. Prenni, P. Roldin, D. Rose, J. Schneider, H. Su, S. R. Zorn, P. Artaxo and M. O. Andreae (2010) Rainforest Aerosols as Biogenic Nuclei of Clouds and Precipitation in the Amazon. *Science*, **80**, 329, 1513–1516.
- Renbaum-Wolff, L., M. Song, C. Marcolli, Y. Zhang, P. F. Liu, J. W. Grayson, F. M. Geiger, S. T. Martin and A. K. Bertram (2016) Observations and implications of liquid-liquid phase separation at high relative humidities in secondary organic material produced by α -pinene ozonolysis without inorganic salts. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 7969–7979.
- Petters, M. D. and S. M. Kreidenweis (2007) A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 1961–1971.
- Sorjamaa, R., B. Svenningsson, T. Raatikainen, S. Henning, M. Bilde and A. Laaksonen (2004) The role of surfactants in Köhler theory reconsidered. *Atmos. Chem. Phys.*, **4**, 2107–2117.