



Title	広範なエアロゾル種の雲核・氷晶核能
Author(s)	田尻, 拓也; 山下, 克也; 村上, 正隆
Description	I. 雲凝結核・氷晶核特性の測定とモデル化
Citation	低温科学, 29-39
Issue Date	2014-03-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/55015
Type	departmental bulletin paper
File Information	LTS72_005.pdf



広範なエアロゾル種の雲核・氷晶核能

田尻 拓也¹⁾, 山下 克也¹⁾, 村上 正隆¹⁾

多様なエアロゾル種を対象に、雲の発生環境場において雲核あるいは氷晶核として有効に働くエアロゾル種の同定を進めている。大気中エアロゾル粒子の物理化学生物特性と雲核・氷晶核能との関連性および雲生成過程への関与を的確かつ定量的に表現することは、メソ数値予報モデルや数値気候モデルの精度向上にとって重要な課題である。エアロゾル-雲-降水相互作用に関する知見の取得や気候影響評価におけるエアロゾル間接効果の不確定性の低減を目指して、MRI 雲生成チェンバー等の実験的手法に基づくエアロゾル・雲・降水を統一的に取扱う新たなパラメタリゼーションの構築に取り組んでいる。本稿では、雲生成チェンバー実験の概要と特定エアロゾル粒子を用いた実験結果について述べる。

Investigation of CCN and IN abilities of various aerosol types by using MRI cloud simulation chamber

Takuya Tajiri¹, Katsuya Yamashita¹, Masataka Murakami¹

A variety of aerosol species has an inherent ability to act as CCN and/or IN, and some of them actually activate under conditions relevant to the atmosphere. An accurate and quantitative description of the relation between physicochemical and biological properties of aerosol particles and their activity and potential role in cloud formation is a crucial subject for improvement of numerical cloud simulation and weather/climate prediction models. To overcome the current lack of understanding of aerosol-cloud-precipitation interactions and to reduce the uncertainty in estimates of the aerosol indirect effects, we are attempting to propose novel incorporate parameterizations that link aerosol particles and cloud particles from the experimental approaches. This article focuses on the MRI dynamic cloud chamber experiments in progress and shows results of various types of specific particles.

1. はじめに

雲発生環境下、雲核 (CCN) あるいは氷晶核 (IN) として高い活性化能力を有するエアロゾル粒子の多寡により、雲の微物理構造が変化し、光学的特性や降水機構に差異が生じると考えられる。中緯度域の雲・降水システムの大部分は、氷相過程を含んでいる。氷晶発生過程は、混合雲・氷晶雲の微物理構造を決定するだけではなく、雲の寿命や雲量、さらには、降水粒子の形成へと連鎖する重要な要素であるため、その定量的理解は高解像度非静力学モデルによる降水予測の精度向上に不可欠である。

大気中エアロゾルの雲システムへの影響、特に雲・降水粒子の成長過程への寄与 (第2種間接効果) に関するこれまでの知見の多くは、水雲を研究対象としたものである (Albrecht 1989; Stevens and Feingold 2009)。雲の放射特性や降水能率は、雲粒粒径分布だけではなく、氷点下における過冷却雲粒と氷晶との水物質の分配にも依存する (Baker 1997; Baker and Peter 2008; Lohmann and Feichter 2005; Stephens et al. 1990)。エアロゾル粒子により氷晶を含む深い対流雲の内部構造が影響を受けること (Rosenfeld et al. 2008) や、エアロゾル粒子が雲・放射過程および降水機構を通じて雲の分布・ライフタイム・降水能率に影響を及ぼす一連の過程を数値モデルにより再現する試み (Khain et al., 2008; Lohmann and Hoose, 2009) などの報告はあるが、氷晶をも含んだ雲・降水過程が、大気中の水・エネルギー循環に作用し、雲量や降雨量の変化となって、気候へ影響を与える効果を定量的に評価するには、多分に未知な部分が残されている。全球数値気候モデルで上層雲・中層雲の放射・降水特性を的確に表現するためにも、また、数

連絡先

田尻 拓也

気象庁気象研究所

e-mail: ttajiri@mri-jma.go.jp

1) 気象庁気象研究所

Meteorological Research Institute, Japan Meteorological Agency

値気候モデルの予測精度向上, あるいは気候変動のメカニズム解明の視点からも氷晶発生過程の定量的理解は重要な課題である。

氷晶発生過程の研究は, 半世紀にわたって行われてきたが, CCN とは異なり氷晶発生には幾通りものメカニズムが存在し複雑なため (Vali 1985; Pruppacher and Klett 1997), 一次氷晶の発生機構でさえ定性的にも定量的にも未解明の部分がある。混合雲や氷晶雲を通じて IN として働くエアロゾル粒子が雲の特性や降水機構の変調に果たす役割を精度良く描出するには, 氷晶発生に関わる素過程の解明および定式化, 数値モデルへの的確な取込みを進展させることが必要である。

大気中エアロゾル粒子の CCN 能は, 粒径に強く依存し, 化学組成やその混合状態にも依存する。従来のケーラー理論に基づく水溶性物質を想定した溶液滴の CCN 特性を用いた研究アプローチから, 最近ではエアロゾル粒子の吸湿性に着目し, 不溶性粒子も適用可能な κ -ケーラー理論に基づくエアロゾル粒子の CCN 能に関する研究へと転じている。水溶性物質と不溶性粒子が雲発生環境下に共存する場合, 外部混合や内部混合の状態によって競合的に CCN 活性する粒子が決まり, 雲粒生成および初期雲粒粒径分布へと波及する。混合核として働く粒子は, 雲粒凍結へと導く前駆的現象として雲粒発生へ寄与するため, CCN 能の定量的把握が必須である。

このように, 最新の数値気候モデルやメソ数値予報モデルの精度評価において, 大きな不確定要素の 1 つである雲過程 (特に混合雲および氷晶雲) の効果を雲物理学の視点から詳細に調査するため, 実験的手法による大気中エアロゾル粒子の雲・降水過程への関与について基礎研究を進めている。気象研究所の低温実験施設におけるエアロゾル・CCN・IN 計測および雲生成チェンバー実験による結果を詳細雲微物理ボックスモデル数値実験に

より定量的に評価し, 非静力学モデルに組込むエアロゾル・雲・降水を統一的に取扱う新たなパラメタリゼーションの構築を目指している。対象とするエアロゾルは, ダスト (黄砂)・バイオエアロゾル・人為起源エアロゾルおよび, それらと吸湿性, 有機エアロゾルとの外部・内部混合粒子, 大気中エアロゾルと多種多様であり, その物理化学生物特性と CCN・IN 活性化特性との関連付けおよび各エアロゾル種の CCN 能・IN 能に応じた発生初期の雲粒粒径分布・氷晶数濃度を分析し, エアロゾル・雲過程の定式化またはモデル化を試みている (図 1)。

本稿では, 研究の概要と雲生成チェンバー実験を中心とした現在の取組みについて報告する。

2. 雲核・氷晶核として働くエアロゾルの計測

大気中エアロゾル粒子の CCN としての働きは, 乾燥粒径と臨界過飽和度に強く依存する。一般に, 環境場の過飽和度が高いほど CCN 濃度は高く, 試料空気中のエアロゾルが同種の場合, 乾燥粒径の大きな粒子ほど有意に活性化し雲粒を生成する。CCN 濃度の過飽和度依存性は, CCN スペクトルにより表され, 関係式として,

$$N_{ccn} = C \cdot SS_w^k$$

がよく用いられる。ここで, N_{ccn} は CCN 数濃度, SS_w は水に対する過飽和度 (%), C と k は定数であるが, C は過飽和度 1 % の場合の CCN 数濃度と定義されることが多い (Pruppacher and Klett, 1997)。大気中エアロゾルの素性や環境中における物理化学特性の変調によって, 空気塊の CCN 特性は変動するため, これらの定数は, 計測地域や大気環境条件によって異なる。多数の地域で CCN 観測が行われ, 海洋性や大陸性といった観測

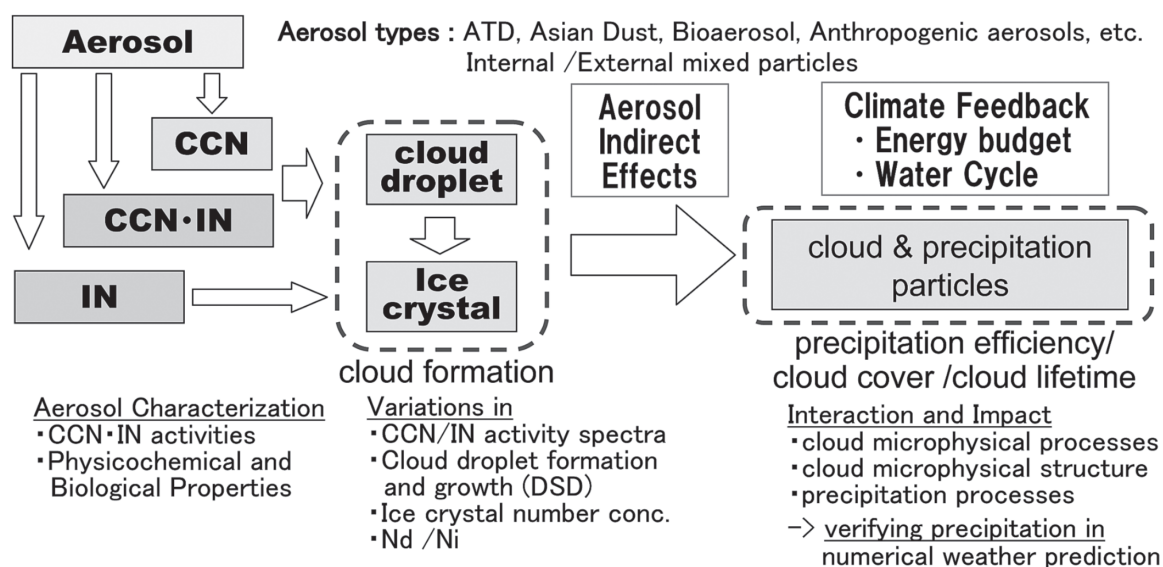


図 1 : エアロゾル-雲-降水相互作用に関する研究概念図。

Fig. 1 : Schematic diagram of aerosol-cloud-precipitation interactions and the experimental study design.

点の大気質の特徴付けや季節変化などが C や k を用いて示されている。CCN スペクトルは、技術確立された各種 CCN 計を用いて測定される (Hudson and Yum 2002; Roberts et al. 2006; Rose et al. 2010; Snider and Brenguier 2000)。

自然大気中には、多様なエアロゾル種が存在し、それぞれ異なる乾燥粒径と多様な化学特性を持ち、外部混合・内部混合の割合も様々である。CCN 活性化特性を過飽和度依存性だけでなく、大気中エアロゾルの粒径分布や吸湿性、混合の度合いと関連させて議論するため、最近では Petters and Kreidenweis (2007) の κ -ケーラー理論に基づく研究が広く進められている。詳細は本号Ⅲ章の山下ほかにも譲るが、この理論では純粋な化学組成を持つ粒子は特定の吸湿特性を有するため、粒径に依らず単一の“吸湿度”を示すと考えられる。逆に、粒子の物理化学量が未知であったとしても、吸湿度を計測することにより、エアロゾル種の推定や CCN 特性の解析が可能であり、吸湿度という一つのパラメーターを用いて粒子の凝結成長過程を計算できる大きな利点がある。後述するように、吸湿度は実験的に求めることができ、多様なエアロゾル種について調査がなされている。

氷晶発生メカニズムは、液滴からの均質核形成 (homogeneous nucleation) と IN として働くエアロゾル粒子の表面における不均質核形成 (heterogeneous nucleation) に大きく分類される (図 2)。自然大気中で起こる均質核形成は、水滴直径に若干依存するが、約 -45°C までに全ての水滴が凍結する。一般的には、雲の温度がこの程度まで低下するよりも先に、不溶性で核となる粒子の働きにより氷晶が生成される。この氷晶の生成を手助けする粒子を総称して“氷晶核” (ice nucleus, ice-forming nucleus) という。CCN と比較して IN の数濃度は桁違いに少なく、一般に大気を浮遊する粒子の 10^6 個に 1 つ程度とされる (DeMott et al., 2011)。

“氷晶核”の働き方は、4 通りが考えられる。水蒸気

が直接氷に変化して氷晶を生成する際に芯となる粒子は、昇華 (凝結) 核と呼ばれる。残りの 3 つは、水滴 (雲粒) の凍結を手助けするものである。比較的暖かい温度領域で水滴内に取り込まれ、その後の温度低下によって水滴を凍結させるのが (内部) 凍結核である。凝結核と凍結核の性質を合わせ持つ粒子 (混合核) の上に凝結によって水滴が生成された直後、不溶性の物質が凍結核として働き、水滴を凍らせる粒子を凝結凍結核という。水滴との衝突によって凍結を引き起こす粒子を接触凍結核という。これらの氷晶生成モードは、対流圏内の 0°C 以下の領域において、気温・湿度 (氷飽和/水飽和)・過冷却雲粒の存在域などの異なる環境場を経験して発現すると考えられる (Hoose and Möhler 2012)。不均質核形成による氷晶生成は混合雲および巻雲の領域において、均質核形成は巻雲の領域において働く。

長年、乾燥および半乾燥地域から大気中に飛散するダスト粒子が自然界で支配的な IN であると考えられてきた (Isono et al. 1959; Sassen et al. 2003)。現在では、航空機による直接観測からエアロゾル粒子や雲粒子のサンプリングが行われており、雲粒子を選別して雲残渣粒子を同定する技術が適用されている (DeMott et al. 2003a; Pratt et al. 2009; Matsuki et al. 2010)。依然 IN としての鉱物粒子の重要性は変わらないものの、質量分析計・電子顕微鏡・エネルギー分散型 X 線分光法などにより、その他の IN として、バクテリア (細菌)・花粉・ファンガス (真菌) などの生物由来の物質や人為起源のすす粒子、バイオマス燃焼起源粒子、有機物質などを示唆する多様な化学成分が同定されている。これらの粒子と海塩粒子の混合物や硫酸塩・硝酸塩・アンモニウム塩・有機物質を含有し不溶性粒子表面へのコーティングを示唆する形態の粒子など、多様なエアロゾル種が自然大気中で IN として働くことが注目されている。

IN の計数装置について技術開発と測定技術の向上、比較実験が過去 15 年進展したことにより、近年オンライン測定 (DeMott et al. 2003b; Richardson et al. 2007; Rogers et al. 1998; Rogers et al. 2001) および後解析 (Klein et al. 2010; Knopf et al. 2010; Ardon-Dreyer et al. 2011) によって大気中の IN 数濃度が調査されている。

精製技術が確立された人工物である各種特定粒子を大気中エアロゾルの代替粒子として用いた室内実験も進められている。カールスルーエ工科大学のエアロゾルチェーン施設 (AIDA; Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere aerosol facility chamber) では、各種粒子計測装置を有し、ダスト粒子の IN 特性と二次有機化合物・硫酸塩コーティングの影響 (Cziczo et al. 2009; Field et al. 2006; Möhler et al. 2006; Möhler et al., 2008a) や硫酸塩コーティングによるすす粒子の IN 特性 (Möhler et al. 2005)、細菌細胞の IN

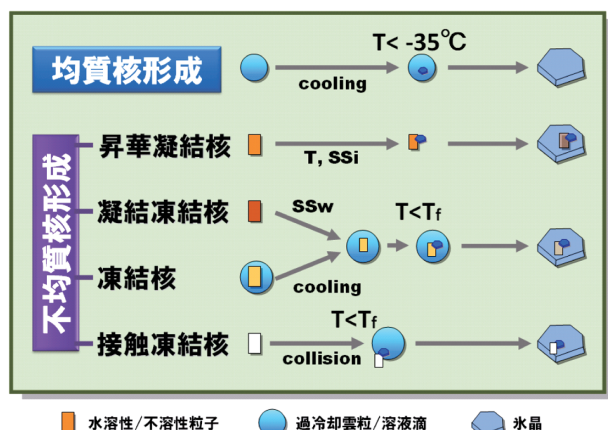


図 2：雲内における氷晶発生過程。

Fig. 2: Multiple ice nucleation mechanisms.

特性 (Möhler et al. 2008b) など各種代替粒子を用いた調査が行われている。

Hoose and Möhler (2012) や Murray et al. (2012) は、様々なエアロゾル種の IN に関するこれまで研究をレビューした。各種 IN 実験計測技術 (DeMott et al. 2011) による研究が進行中であり、エアロゾル種ごとの氷晶発生のオンセット温度や過飽和度に関する知見、環境条件と IN 活性化率との定量的関係などが次第に得られつつある。一方で、温度・氷過飽和領域の制御範囲や粒子計測精度など装置固有の制約により、取得データセットは限定的である。同一試料粒子を用いた複数装置による同期計測など、更なる相互比較実験が必要である。

外部混合および内部混合粒子に関する知見に限らず、多くのエアロゾル種の IN 能 (同様に CCN 能) について、その知見は未だ不足している。雲の発生環境や力学場を十分カバーする範囲における雲粒・氷晶発生への CCN・IN の影響についての広範な研究が必要である。

3. MRI 雲生成チェンバー実験の概要

雲生成の素過程を詳細に調べるため気象研究所では、MRI 雲生成チェンバー実験システムを運用している (図 3)。かつて運用されていたコロラド州立大の断熱膨張型チェンバー (DeMott and Rogers 1990) の機構を基に、MRI 雲生成チェンバーは試験槽の壁面温度とチェンバー内の気圧を独立制御し、気温・気圧・減圧速度といった実験制御範囲の拡張や壁面制御精度の向上、高性能なエアロゾル・雲粒子計測センサーの充実を図っている。

稼働中の AIDA チェンバーは、内容量 84 m³ のアルミニウム製試験槽の内壁に、予め氷の層を作った上で減

圧を開始し雲粒子生成を実現している。真空ポンプの排気速度に応じて試験槽は減圧されるが、実験を通じて壁面温度がほぼ一定であるため、試料空気の温度が断熱冷却的に変化するのは 10~15 分程度で、槽内気温の変化幅は最大 10°C 程度である (Möhler et al. 2003; Wagner et al. 2011)。

一方、MRI 雲生成チェンバーは、内容量 1.4 m³ のステンレス製試験槽内壁面の温度を制御し、減圧に伴う気温低下に合わせて壁面温度を変化させ、試料空気と壁面との熱交換を最小限に抑える。このため、比較的広い温度域で準断熱膨張過程を維持でき、対流圏における雲の発生環境を再現性良く模擬し、雲生成過程を実時間で追跡することができる (Tajiri et al. 2013)。制御範囲は、気圧が 1013 hPa から 30 hPa、気温が +30°C から -100°C、上昇流が 0 から 30 m/s、断熱膨張過程の実現精度は気温 1°C 以内、気圧 0.3 hPa 以内と世界最高水準のエアロゾル・雲過程実験システムである。

MRI 雲生成チェンバー内の大気状態 (気温、露点温度、気圧) の監視およびエアロゾル・雲粒子の数濃度・形状の検出状況は、一秒ごとに実験制御兼データ収録装置 (M300, SEA 社) に記録される。また、試料空気・特定粒子の導入、初期値調整、断熱膨張実験の開始・終了、凝結高度における乾燥断熱から湿潤断熱への気温減率の切替え、後処理など、実験手順は M300 により自動制御化している。

周辺装置を含めた、MRI 雲生成チェンバー実験施設のシステム系統図を図 4 に示す。実験前処理における試料粒子の状態をモニタリングするため、エアロゾルバッファータンク内の粒径分布 (または数濃度) は、走査式モビリティパーティクルサイザー (SMPS)、光散乱粒子計数装置 (OPC) および空気動力学式粒径分布測定装置 (APS) により、雲生成チェンバー内については、凝集型粒子計数器 (CPC) およびエアロゾル・微水滴計測センサー (CAS) により計測する。OPC (KC-01E, RION) は、5 段階の検出粒子区分 (0.3, 0.5, 1, 2, 5 μm) を持ち、最大 100 個/cc までの粒子数濃度を計測する。APS (Model 3321, TSI) は、任意の計測時間間隔でエアロゾル粒子の空気動力学径を 0.5~20 μm の範囲で計測する。SMPS (MODEL3936, TSI) は 2 分周期でおよそ 0.01~0.3 μm のエアロゾル粒子の粒径分布を、CAS (DMT) は 0.3~30 μm までエアロゾル粒子の粒径分布を毎秒計測する。また、CCN 計 (DMT) により、試料空気中の CCN 濃度 (過飽和度 0.07~2 %) 計測をエアロゾルバッファータンクおよび雲生成チェンバー内で行う。特定粒子の物理化学特性を同定 (エアロゾルキャラクタリゼーション) する際や、IN としてのポテンシャルを気温・過飽和度に関して基礎的に調査する場合には、IN 計 (MRI-INC; Saito et al. 2011) を使用する。



図 3 : MRI 雲生成チェンバー。

Fig. 3 : Photograph of the MRI cloud simulation chamber.

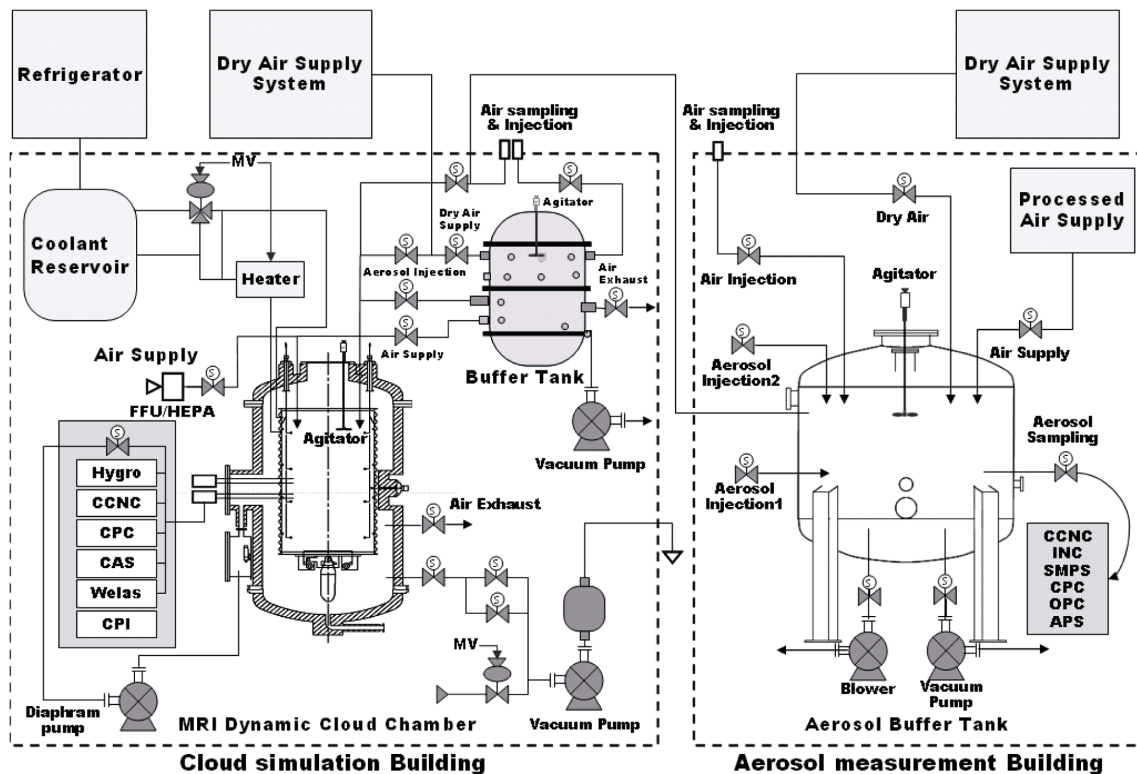


図4：MRI 雲生成チェンバー実験施設のシステム系統図。
Fig. 4: MRI chamber facility system diagram.

雲粒発生の様子は、CAS に加えて $1\mu\text{m}$ 以上の粒子の粒径分布を計測する白色光源を用いたスペクトロメータである WELAS (PALAS®) および $10\mu\text{m}$ 以上の粒子の画像を撮影できる雲粒子計測センサー (CPI, SPEC) により計測する。氷晶検出には、白色光の側方散乱光強度の違いにより氷晶と雲粒を選別できる WELAS と画像により粒子形状を確認できる CPI を用いる。通常、非球形粒子の氷晶の場合、WELAS により計測されるサイズは、雲粒などの球形粒子と比較して 2 倍程まで過大評価される (Wagner et al. 2011)。これら粒子検出データとチェンバー内の試料空気の状態を統合的に解析し、特定粒子のチェンバー内への導入状態、初期雲粒形成過程および粒径分布の変化、氷晶発生状況を時系列で追跡する。

4. 実験手順

4.1. 試料エアロゾルと粒子発生方法

大気中エアロゾルの代替粒子として、現在利用可能な粒子は、表 1 の通りである。粒子発生方法として、ダスト粒子や NaCl 粒子など乾燥・固形の粒子には、回転ブラシ式乾燥粒子発生装置 (RBG-1000, PALAS®)、すす粒子には炭素粒子発生装置 (DNP-2000, PALAS®)、硫酸アンモニウムや懸濁液にする必要のあるバイオエアロゾルなどにはエアロゾルアトマイザー (Model3079, TSI) を用いる。その他、人工降雨等において NaCl 粒子の固結防止剤に利用される二酸化ケイ素や炭酸カルシ

表 1：試料エアロゾル

Table 1: sample aerosol types.

Aerosol type	Sample	supplier	generator
Dust	Arizona test dust (ATD)	Powder Technology Inc.	RBG-1000
	NX Illite	Arginotec	RBG-1000
	K-feldspar	University of Leeds	RBG-1000
	Kosa (CJ-1)	NIES	RBG-1000
Soot	Soot (Spark discharge)	PALAS	DNP-2000
Sea salt	NaCl (T-0)	Ako Kasei Co.,Ltd	RBG-1000
Ammonium sulfate	$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	Kanto Chemical CO.,INC.	Model3079
Bio	Snomax	York snow Inc.	Model3079
	Bacillus	Kanazawa Univ.	Model3079
	Pollen	Kanazawa Univ.	Model3079
Artificial	AgI	-----	Smoke generator
	SiO ₂	Ako Kasei Co.,Ltd	Vibration
	CaCO ₃	Ako Kasei Co.,Ltd	Vibration

ウムは振動式乾燥粒子発生装置により、人工降雪の一手法である人工氷晶核法に用いるヨウ化銀については発煙装置により、試料粒子を発生させる。

4.2. エアロゾルキャラクタリゼーション

粒子発生装置によりエアロゾル化した試料粒子は、バッファタンクに導入され、SMPS と OPC または APS により粒径分布を測定する。例として、図 5 に硫酸アンモニウム・ATD・すす粒子の計測結果を示す。ピーク粒径はそれぞれ、 62nm 、 $0.28\mu\text{m}$ 、 $0.1\mu\text{m}$ と

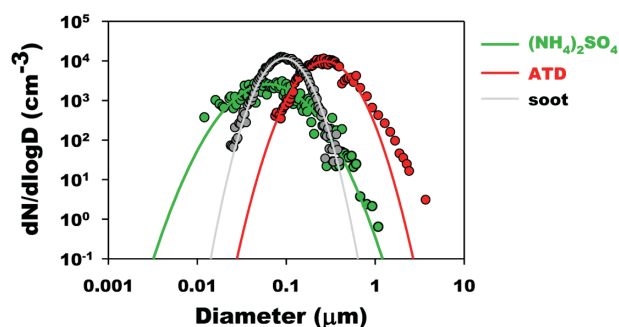


図5：特定エアロゾルの粒径分布。
Fig. 5: Aerosol size distributions.

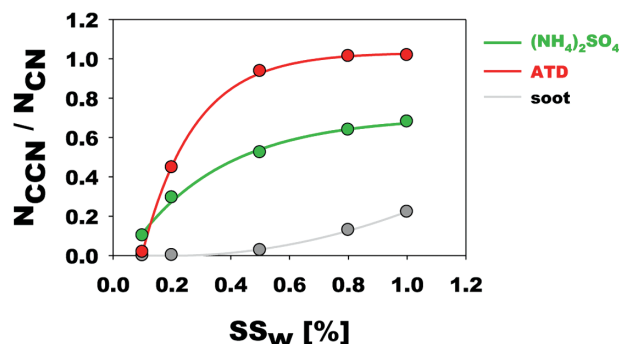


図6：CCN 活性化スペクトル。
Fig. 6: CCN activity spectra.

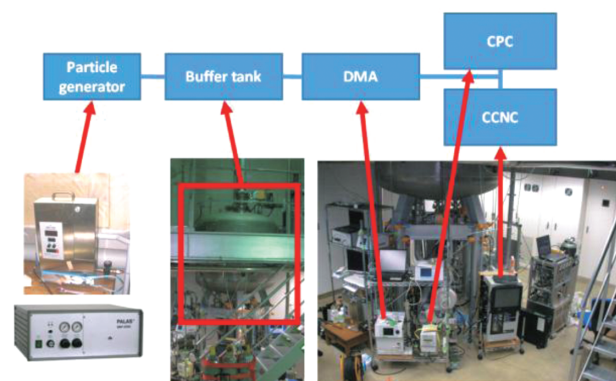


図7：吸湿度測定システム。
Fig. 7: Aerosol hygroscopicity measurement system.

発生装置やエアロゾル種別によって異なる。ダスト粒子は、 $1\ \mu\text{m}$ 超の粒子の割合が多く、検出サイズにおいて氷晶との区別が曖昧になる場合がある。このため通常、50%カットオフ粒径が $2.5\ \mu\text{m}$ と $1.0\ \mu\text{m}$ の2段のcyclone (URG Corp.) を用いている。粒子発生およびサンプリング手順を定型化し、エアロゾル粒径分布をサンプル粒子種別ごとに規格化するなど、実験再現性の向上を図っている。なお、発生方法が確立された特定粒子については、SMPSなどによる粒径分布計測を省力化し、凝縮核 (CN) 計であるCPC (TSI Inc., Model 3772) によりエアロゾル数濃度を得ることで、エアロゾル状態を把握することができる。

図6は、CCN計により計測したCCN活性化スペクトルである。不溶性粒子とはいえ、ATDとすす粒子で

はCCNとしての働きが全く異なり、ATDは硫酸アンモニウムとの比較においてもCCNとしてより高い活性化率を示す。粒径分布に大きな差があることも要因であるが、ダスト粒子の雲粒発生への寄与については十分考慮する必要があることが判る。

吸湿度測定には、静電分級器 (DMA, TSI Inc., Model 3080), CCN計およびCPCを用いる (図7)。DMAで分級された試料粒子をCCN計とCPCで同時に計測することにより、エアロゾル総数 (N_{cn}) に対して、段階的に変化させた過飽和度で活性化する粒子数 (N_{ccn}) を計測できる。この計測手法において臨界過飽和度は、 N_{cn} の50%以上がCCNとして活性化する最小の過飽和度と定義される。こうして、特定粒子について乾燥粒径に関する臨界過飽和度が得られ、 κ -ケラー理論に基づき吸湿度が求まる。

特定エアロゾルは化学組成が既知の物質であるが、自然大気中のエアロゾル粒子について吸湿度を計測することも可能である。併せて電子顕微鏡解析用にエアロゾル捕集することで、大気中エアロゾルに関するより多くの定量的知見を得ることが期待される。外部混合・内部混合粒子について、混合状態が未知である場合に、吸湿度を計測することにより、その状態をある程度掴むことができる。

4.3. MRI 雲生成チェンバー実験手順

初めに雲生成チェンバー内に残余したエアロゾルを排除するため、試験槽内を一旦30 hPa以下に減圧した後、清浄な乾燥空気により大気圧へ戻す試料空気の置換作業を繰り返す。理想的な背景エアロゾルの数はゼロであるが、雲粒発生実験では数個/cc程度、氷晶発生実験時には1個/cc未満であることが望ましい。断熱膨張過程における雲粒の発生温度 (持ち上げ凝結高度, LCL に対応) は、大気の初期状態で決まる。気圧・気温を一定条件とする一連の実験では、初期露点温度の設定値を変えることでLCLが変化する。初期露点は、HEPA フィルターを通して加湿空気を漸次導入することにより調整可能である。また、気圧・気温の初期値については、M300により一定制御を継続する。試験槽内の粒子数濃度を監視しながら特定エアロゾルを導入し、所要の数濃度を得る。チェンバー内のエアロゾル粒径分布やCCN活性化スペクトルの測定は適宜実施する。粒子導入に伴う、槽内露点温度の変化は予め見込んでおり、若干の加湿調整を追加して、試料空気の実験初期状態とする。

この実験ステップから断熱膨張実験を開始する。雲生成実験では、断熱膨張に対応する気塊の上昇速度は予め設定しておき、通常一定 (例えば、5 m/s) である。槽内の気温・気圧は初め乾燥断熱的に変化し、試料空気の実験初期値より算出されるLCLに到達後、湿潤断熱過程における雲過程を継続して追うため、壁面温度制御を

自動的に湿潤温度減率に合うように切り替える。凝結点（雲粒発生）は、相対湿度およびマイクロサイズの粒子検出の急増、観察窓からの視認により判別可能であり、その後の雲粒の成長・維持・落下の状態を実時間で監視する。氷晶発生実験では、加えて実験を通じての相対湿度の変化（特に水飽和か、氷飽和か）、氷晶発生時の雲粒の存在状況などにも注視する必要がある。

5. 実験結果

ここでは、暖かい雲を対象とした硫酸アンモニウムを用いた CCN 活性化実験、CCN・IN としての ATD に関する実験およびすず粒子を用いた氷晶発生実験を例示する（表 2）。

硫酸アンモニウムは、自然大気中の CCN を代表させるために雲生成実験に用いられることがある。図 6 より SS_w 1% において 7 割近くの $(NH_4)_2SO_4$ 粒子が活性化する。図 7 は、硫酸アンモニウムによる雲粒発生実験の各種データの時系列である。上段からそれぞれ気圧、気温・露点・壁温、水に対する相対湿度、CAS により計測されたサイズ別（ $>0.3\mu m$ 、 $>2.0\mu m$ 、 $>10\mu m$ ）の粒子数濃度と CPC により計測された N_{CN} 、WELAS による粒子計測結果、偏光レーザーによる前方散乱光強度（雲形成のオンセットが確認できる）と後方散乱の偏光解消度を示しており、雲粒を最初に検知したタイミング（LCL に対応）を縦線に表示している。この図から、LCL に到達すると瞬時に $2\mu m$ 以上の雲粒が生成し、次第に $10\mu m$ 超の粒子が出現していることが判る。実験初期値の N_{cn} は 3,000 個/cc 程度であるため、その過半数が速やかに CCN として働き雲粒生成に寄与したことは、雲形成時の過飽和度がおよそ 0.5% に達していたことを示唆する。

図 8 は、ATD 粒子による雲生成実験の各種データの

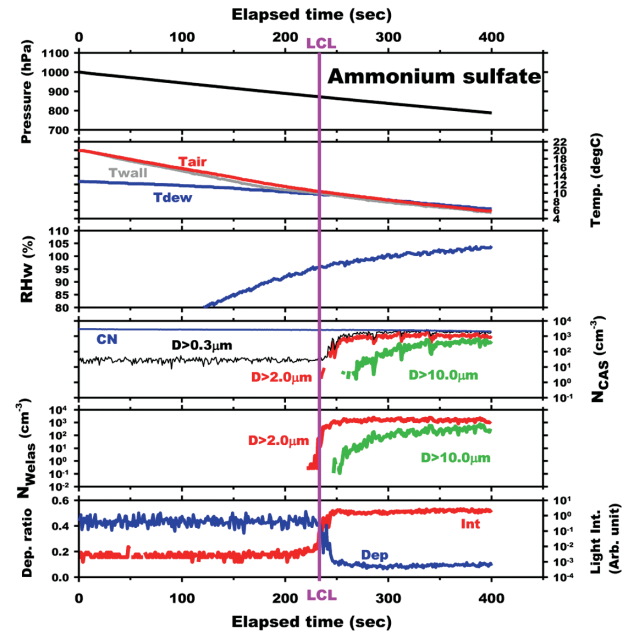


図 7：硫酸アンモニウムによる雲粒生成実験。

Fig. 7: Cloud droplet activation of Ammonium sulfate.

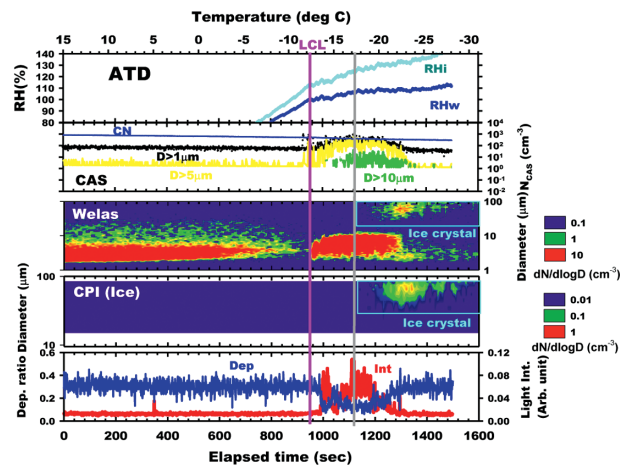


図 8：ATD による雲粒生成実験。

Fig. 8: Cloud chamber experiment with ATD.

表 2：雲生成チェンバー実験設定値。

Table 2: Setup parameters for the experiments.

Sample Aerosol	Ammonium Sulfate	Arizona Test Dust	Soot
Initial Particle Number Concentration (cm ⁻³)	3,000	1,000	10,000
Programmed Initial Pressure (hPa)	1000.0	1000.0	1000.0
Programmed Initial Temperature (°C)	20.0	15.0	15.0
Programmed Adiabatic Ascent Rate (m/s)	5.0	3.0	5.0
Actual Initial Pressure (hPa)	1000.0	999.9	1000.0
Actual Initial Air Temperature (°C)	19.9	14.6	14.5
Initial Dewpoint Temperature (°C)	12.7	-7.5	-10.6
Temperature at LCL (°C)	10.3	-12.7	-19.0

時系列である。上段から水および氷に対する相対湿度、CAS により計測されたサイズ別（ $>1.0\mu m$ 、 $>5.0\mu m$ 、 $>10\mu m$ ）の粒子数濃度と CPC により計測された N_{CN} 、WELAS による粒子計測、CPI による粒子計測、偏光レーザーによる前方散乱光強度と後方散乱偏光解消度（雲粒子の非球形性を検知、つまり氷晶発生シグナル）を示しており、LCL と氷晶発生タイミングを縦線に表示している。

表 2 のとおり、硫酸アンモニウムによる CCN 活性化実験と較べて、初期露点を低く設定した。実験は $+15^{\circ}C$ から $-30^{\circ}C$ にかけて行い、初期露点に対応して、 $-13^{\circ}C$ で LCL に達し雲粒生成が確認された。実験開始後 1000 秒で、雲粒数濃度は 500 個/cc を超え、図 6 における ATD の活性化スペクトルを参照すると雲粒発生時の過飽和度は少なくとも 0.2% に達していたと考えられる。

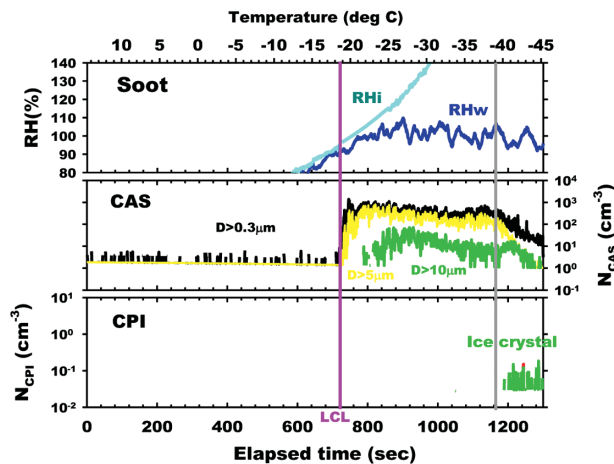


図9：すす粒子による雲粒生成実験。

Fig. 9: Cloud chamber experiment with soot.

Koehler et al. (2009) や Yamashita et al. (2011) において指摘されるように、他に有効な CCN がいない場合、ATD は CCN として十分働き、比較的サイズが大きい場合、硫酸アンモニウムのように吸湿性を持つ粒子との共存下においても活性化能力を発揮する可能性がある。

ATD が IN として働く様子、氷晶の検知は、 -17°C 付近から見られ、 -20°C から -25°C にかけて WELAS や CPI で頻繁に捕らえられた。また、偏光レーザー計測から求めた後方散乱の偏光解消度（青線）は活発な氷晶生成に伴って値が上昇し、雲粒のみであった図7との相違が明瞭である。氷晶は既に雲粒が存在する場で発生したため内部凍結（immersion freezing）あるいは凝結凍結（condensation freezing）が働いたと推測される。

図9は、すす粒子による雲生成実験の各種データの時間系列である。上段から水および氷に対する相対湿度、CASにより計測されたサイズ別（ $>0.3\mu\text{m}$ 、 $>5.0\mu\text{m}$ 、 $>10\mu\text{m}$ ）の粒子数濃度とCPIによる粒子計測であり、氷晶発生タイミングを縦線（灰色）で表示している。氷晶発生に先行して、実験開始後700秒から雲粒生成が見られた。他に競合するエアロゾル種がない場合には、すす粒子もCCNとして働くことが示唆される。しかし、上昇速度5 m/sにも関わらず、雲粒の数濃度は1,000個/cc以下と活性化率は1割に満たない。一方、氷晶の検出は -39°C 以下で見られた。不均質凍結核としての働きは不活発であるものの、 -40°C 以下の低温域で昇華凝結核として作用している可能性がある。

以上、大気中エアロゾルの代替種として代表的な特定エアロゾルを用いた雲生成チェンバー実験の事例を示した。一口にCCN能・IN能と云っても研究対象とする特定粒子の物理化学特性は多様であり、ここで例示した3種のエアロゾル粒子の比較からも明らかなように、雲生成過程への関与は大きく異なることが判る。

広範なエアロゾル種について、それらのCCNとしてのポテンシャルを探るため、吸湿度を計測した結果を図10にまとめた。Petters and Kreidenweis (2007) による

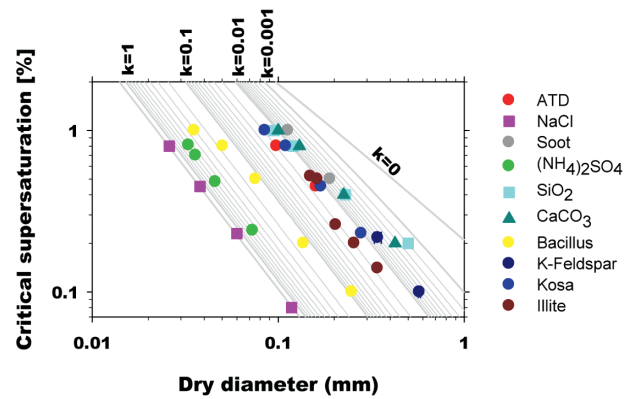


図10：種々のエアロゾル種の吸湿度。

Fig. 10: Hygroscopic measurements of various aerosol particles.

先行研究にある通り、NaClや硫酸アンモニウムなどの水溶性の物質が高い吸湿度を示したのに比べ、ダスト粒子はYamashita et al. (2011) 同様0.01をやや超えるあたりに集中した。すす粒子の吸湿度は0.006と更に低く、バイオエアロゾルであるBacillusはその中間の吸湿度0.1付近であった。人工降雨に固結防止剤として用いる二酸化ケイ素や炭酸カルシウムの吸湿度は低く、その用途を考えると当然の帰結であるが、CCNとしての働きは期待できない。Andreae and Rosenfeld (2008) によると、自然大気中エアロゾルの代表値として大陸性のものは 0.3 ± 0.1 、海洋性のものは 0.7 ± 0.2 とされる。ダスト粒子やすす粒子の吸湿度は大気中エアロゾルに比べると低いものである。しかしながら、図10から空気塊に含まれるエアロゾル種が限定される場合には、その場の過飽和度によって、あるいは、多種のエアロゾルが共存する場合にはその混合状態と粒径の相違によって、CCNとして活性化するエアロゾル種の割合が選択的に決まり、CCN数濃度も変わり得ると推測される。

INとして働く粒子の定量的評価に繋げる試みも進行中である。図11は、種々のエアロゾル粒子についてMRI雲生成チェンバーによる氷晶発生実験の結果をまとめたものである。実験から得られた N_{cni} に対するIN数濃度(N_{in})の比、つまりINとしての活性化率

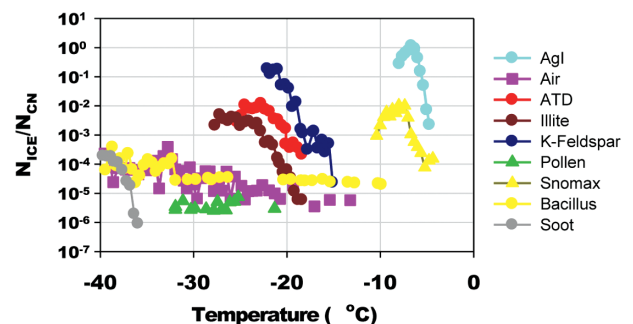


図11：種々のエアロゾル種による氷晶発生実験。

Fig. 11: Activated Fraction of various aerosol particles as ice nuclei.

(AF; Activated Fraction) の温度依存性をエアロゾル種ごとに示している。図 11 から、人工降雪に人工氷晶核として利用されているヨウ化銀粒子は、 -5°C 付近から速やかに活性化し、オンセット温度の高さ、AF の高さの両面から他の試料粒子と較べて判然とした違いを示し、極めて有効な IN であることが分かる。降雪剤として商標化され、入手可能な氷核活性細菌である *snomax* は、AF ではヨウ化銀に及ばないものの、高いオンセット温度を有する。その他のバイオエアロゾル（スギ花粉や納豆菌の芽胞）については、これまでのところ IN 能の高いエアロゾル種を見出すまでには至っていない。IN としてのバイオエアロゾルに関する研究は、コールドステージなどの実験手法により進められており、試料粒子によっては比較的高い温度で活性化することが指摘されている (Hoose and Möhler 2012)。ダスト粒子については、概ね -20°C 以上の気温から活性化しており AF は 10^{-1} ~ 10^{-3} と比較的高い。これまで室内実験用のダストの参照粒子としては、ATD が多く用いられてきたが、その IN 能は自然大気中のダスト粒子よりも高いことが知られている。最近では、実際のダスト粒子に近いとされ、Illite を多く含有する NX Illite のようなものが新たな試料粒子として使用されつつある (Broadley et al. 2012)。また、自然大気中のダスト粒子中の含有量は少ないものの、高い IN 能を持つ参照用ダスト粒子として K-feldspar が新たな注目を浴びている (Atkinson et al. 2013)。雲生成チェンバー実験に使用したこれらの粒子の粒径分布には大きな相違がないため、研究参照用ダスト粒子の IN 能としては K-feldspar, ATD, Illite の順で高いことが示唆される。すす粒子については、昇華凝結による氷晶発生過程を捉えていると推測される。氷晶発生の前に雲粒を観察した例は報告されているが (Dymarska et al. 2006)、MRI 雲生成チェンバー実験においては、 -35°C 以上の温度域において明瞭な氷晶発生域はまだ見出せていない。

参考として、外気を試料空気に用いた実験結果も図 11 に示しているが、 -25°C 以上の気温での AF は不明瞭であり、バイオエアロゾルを除く特定粒子の AF とは 2 桁近い差の開きがあった。

Ⅲ章山下ほかにある通り、雲生成チェンバーを用いた氷晶発生実験のデータから、氷晶発生の古典理論により IN 能を表すパラメーターとして、活性化エネルギーおよび接触角を抽出することができる。これらの解析値は、詳細雲物理ボックスモデルに取込まれ、多様な雲発生環境場における各エアロゾル種の IN としての定量的評価に利用される。

6. 今後の展開

MRI 雲生成チェンバー施設における広範なエアロゾ

ル種を対象とした CCN 能・IN 能の定量的理解を目指す実験的取組みについて、硫酸アンモニウム・ダスト・すす粒子といった比較的良く試料に用いられるタイプの粒子を中心に紹介した。物理化学特性の異なるこの 3 種に関して、雲生成実験から見た CCN 能・IN 能の違いは明瞭であった。ただし、対流圏における雲粒子の発生環境としての気圧・気温・相対湿度・上昇速度の範囲は広く、先行研究において限定的実験環境から得られた報告との整合性や差異については実証的に見極める必要がある。今後、多様な条件下における雲生成実験を通じて、広範なエアロゾル種の CCN および IN 活性に係わる支配的要素を掴み、鍵となるパラメーターを数値モデルに組込む室内実験・数値モデル相互の検証実験を進める。これにより、大気中エアロゾル粒子の雲過程への影響について精度のある知見が得られると考えている。

以下に今後の研究展開を記して、まとめとしたい。

高い吸湿度を有する粒子ほどより低い過飽和度、あるいはより小粒径で CCN 活性する。単一種の粒子による雲粒生成実験に較べ、複数種のエアロゾルによる（すなわち外部混合）実験を行う場合には、その初期雲粒の発生はより複雑になることが予見される。発生手法の確立されたエアロゾル種の外部混合による雲粒発生実験は、現状でも実行可能である。IN 活性については、氷晶発現プロセスが異なるエアロゾル種やオンセット温度の異なるエアロゾル種同士の外部混合実験により、それぞれの発生プロセスの優位性や AF の温度依存性の変調に関する知見が期待される。ダスト粒子を複数種外部混合させることにより、氷晶発現プロセスや活性化温度が重複する領域において、外部混合の効果に関する実証的な議論ができる。また、数値モデル実験の精度向上にも寄与すると考える。

現在、内部混合粒子発生装置を整備中である。これにより無垢なエアロゾル粒子への硫酸塩・硝酸塩・有機物などのコーティングの状態により、CCN・IN 活性化能が如何に変化するのか、内部混合粒子に関する雲生成実験も進めていきたい。

特定粒子に関する IN 能を定式化する試みについてはⅢ章山下ほかで説明されているが、この他にも幾つもの手法が提案され有用性について比較研究が進められている (Ervens and Feingold 2012)。これらの適用範囲の吟味や最適化については、雲生成実験データを適用することにより比較評価できることが期待される。

最後に、非静力学モデルに組込むエアロゾル・雲・降水を統一的に取扱う新たなパラメタリゼーションの構築には、より現実的にエアロゾル・雲生成過程を表現するため、代替粒子と自然大気中のエアロゾル粒子とを繋ぐ実験観測的研究が必要である。気象研究所の低温実験棟において、数年来、エアロゾル計測装置・CCN 計・IN 計によるエアロゾルモニタリング観測を継続してい

る。一地点での観測であるが、取得データの蓄積に伴い、CCN や IN 数濃度の季節変化やダストイベント等の顕著な事例の解析に進捗が見られる。また、黄砂飛来やローカルダスト発生時、前線通過により大気中エアロゾルの状態に急変が見られる前後には、電子顕微鏡解析用の粒子採集を実施すると共に、事前に MRI 雲生成チェンバーとの同期実験を計画し、雲生成実験から雲の残渣粒子を捉えることにも挑戦していきたい。同期実験事例の蓄積により、自然大気中エアロゾルにおいて CCN・IN として有効に働くエアロゾル種の同定やその活性化能力の変動幅、特定粒子との関連性や相違、エアロゾルモニタリングデータとの相関などについて、より多くの有益な成果が期待できる。

参考文献

- Albrecht, A. B., 1989: Aerosol, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science*, **245**, 1227–1230.
- Andreae M. O. and D. Rosenfeld, 2008: Aerosol-cloud-precipitation interactions. Part1. The nature and sources of cloud-active aerosols. *Earth-Science Reviews*, **89**, 13–41.
- Ardon-Dreyer, K., Z. Levin, and R. P. Lawson, 2011: Characteristics of immersion freezing nuclei at the South Pole station in Antarctica. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 4015–4024.
- Atkinson, J. D., B. J. Murray, M. T. Woodhouse, K. S. Carslaw, T. F. Whale, K. J. Baustian, K. S. Carslaw, S. Dobbie, D. O'Sullivan, and T. L. Malkin, 2013: The importance of feldspar for ice nucleation by mineral dust in mixed-phase clouds. *Nature*, **498**, 355–358, doi: 10.1038/nature12278.
- Baker, M. B., 1997: Cloud microphysics and climate. *Science*, **276**, 1072–1078.
- Baker, M. B., and T. Peter, 2008: Small-scale cloud processes and climate. *Nature*, **451**, 299–300.
- Broadley, S. L., B. J. Murray, R. J. Herbert, J. D. Atkinson, S. Dobbie, T. L. Malkin, E. Condcliffe, and L. Neve, 2012: Immersion mode heterogeneous ice nucleation by an illite rich powder representative of atmospheric mineral dust. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 287–307, doi: 10.5194/acp-12-287-2012.
- Cziczo, D. J., K. D. Froyd, S. J. Gallavardin, O. Möhler, S. Benz, H. Saathoff, and D. M. Murphy, 2009: Deactivation of ice nuclei due to atmospherically relevant surface coatings. *Environ. Res. Lett.*, **4**, 044013, doi: 10.1088/1748-9326/4/4/044013.
- DeMott, P. J., and D. C. Rogers, 1990: Freezing nucleation rates of dilute solution droplets measured between -30 and -40°C in laboratory simulations of natural cloud formation. *J. Atmos. Sci.*, **47**, 1056–1064.
- DeMott, P. J., D. J. Cziczo, A. J. Prenni, D. M. Murphy, S. M. Kreidenweis, D. S. Thomson, R. Borys and D. C. Rogers, 2003a: Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **100** (25), 14655–14660, doi: 10.1073/pnas.2532677100.
- DeMott, P. J., K. Sassen, M. Poellot, D. Baumgardner, D. C. Rogers, S. Brooks, A. J. Prenni, and S. M. Kreidenweis, 2003b: African dust aerosols as atmospheric ice nuclei. *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1732, doi: 10.1029/2003GL 017410.
- DeMott, P. J., O. Möhler, O. Stetzer, G. Vali, Z. Levin, M. D. Petters, M. Murakami, T. Leisner, U. Bundke, H. Klein, Z. A. Kanji, R. Cotton, H. Jones, S. Benz, M. Brinkmann, D. Rzesanke, H. Saathoff, M. Nicolet, A. Saito, B. Nillius, H. Bingemer, J. Abbatt, K. Ardon, E. Ganor, D. G. Georgakopoulos, and C. Saunders, 2011: Resurgence in ice nuclei measurement research. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **92**, 1623–1635, doi: 10.1175/2011BAMS3119.1.
- Dymarska, M., B. J. Murray, L. Sun, M. L. Eastwood, D. A. Knopf, and A. K. Bertram, 2006: Deposition ice nucleation on soot at temperatures relevant for the lower troposphere. *J. Geophys. Res.*, **111**, D04204, doi: 10.1029/2005JD006627.
- Ervens, B., and G. Feingold, 2012: On the representation of immersion and condensation freezing in cloud models using different nucleation schemes. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 5807–5826.
- Field, P. R., O. Möhler, P. Connolly, M. Krämer, R. Cotton, A. J. Heymsfield, H. Saathoff, and M. Schnaiter, 2006: Some ice nucleation characteristics of Asian and Saharan desert dust. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 2991–3006.
- Hoose, C., and O. Möhler, 2012: Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: a review of results from laboratory experiments. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 9817–9854.
- Hudson, J. G., and S. S. Yum, 2002: Cloud condensation nuclei spectra and polluted and clean clouds over the Indian Ocean. *J. Geophys. Res.*, **107**, 8022, doi: 10.1029/2001JD000829.
- Isono, K., M. Komabayashi and A. Ono, 1959: The nature and the origin of ice nuclei in the atmosphere. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **37**, 211–233.
- Khain, A. P., N. BenMoshe, and A. Pokrovsky, 2008: Factors determining the impact of aerosols on surface precipitation from clouds: An attempt at classification. *J. Atmos. Sci.*, **65**, 1721–1748.
- Klein, H., S. Nickovic, W. Haunold, U. Bundke, B. Nillius, M. Ebert, S. Weinbruch, L. Schuetz, Z. Levin, L. A. Barrie, and H. Bingemer, 2010: Saharan dust and ice nuclei over Central Europe. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 10211–10221.
- Knopf, D. A., B. Wang, A. Laskin, R. C. Moffet, and M. K. Gilles, 2010: Heterogeneous nucleation of ice on anthropogenic organic particles collected in Mexico City. *Geophys. Res. Lett.*, **37**, L11803, doi: 10.1029/2010GL 043362.
- Koehler, K. A., S. M. Kreidenweis, P. J. DeMott, M. D. Petters, A. J. Prenni, and C. M. Carrico, 2009: Hygro-

- copicity and cloud droplet activation of mineral dust aerosol. *Geophys. Res. Lett.*, **36**, L08805, doi: 10.1029/2009GL037348.
- Lohmann, U., and J. Feichter, 2005: Global indirect aerosol effects: A review. *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 715–737.
- Lohmann, U., and C. Hoose, 2009: Sensitivity studies of different aerosol indirect effects in mixed-phase clouds. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 8917–8934.
- Matsuki, A., A. Schwarzenboeck, H. Venzac, P. Laj, S. Crumeyrolle, and L. Gomes, 2010: Cloud processing of mineral dust: direct comparison of cloud residual and clear sky particles during AMMA aircraft campaign in summer 2006. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 1057–1069, doi: 10.5194/acp-10-1057-2010.
- Murray, B. J., D. O'Sullivan, J. D. Atkinson, and M. E. Webb, 2012: Ice nucleation by particles immersed in supercooled cloud droplets. *Chem. Soc. Rev.*, **41**, 6519–6554.
- Möhler, O., O. Stetzer, S. Schaefer, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher, and U. Schurath, 2003: Experimental investigation of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA. *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 211–223.
- Möhler, O., S. Büttner, C. Linke, M. Schnaiter, H. Saathoff, O. Stetzer, R. Wagner, M. Krämer, A. Mangold, V. Ebert, and U. Schurath, 2005: Effect of sulfuric acid coating on heterogeneous ice nucleation by soot aerosol particles. *J. Geophys. Res.*, **110**, D11210, doi: 10.029/004JD005169.
- Möhler, O., P. R. Field, P. Connolly, S. Benz, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, R. Cotton, M. Krämer, A. Mangold, and A. J. Heymsfield, 2006: Efficiency of the deposition mode ice nucleation on mineral dust particles. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3007–3021.
- Möhler, O., S. Benz, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, J. Schneider, S. Walter, V. Ebert, and S. Wagner, 2008a: The effect of organic coating on the heterogeneous ice nucleation efficiency of mineral dust aerosols. *Environ. Res. Lett.*, **3**, 025007, doi: 10.1088/1748-9326/3/2/025007.
- Möhler, O., D. G. Georgakopoulos, C. E. Morris, S. Benz, V. Ebert, S. Hunsmann, H. Saathoff, M. Schnaiter, and R. Wagner, 2008b: Heterogeneous ice nucleation activity of bacteria: new laboratory experiments at simulated cloud conditions. *Biogeosci.*, **5**, 1425–1435.
- 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.
- Pratt, K. A., P. J. DeMott, J. R. French, Z. Wang, D. L. Westphal, A. J. Heymsfield, C. H. Twohy, A. J. Prenni, and K. A. Prather, 2009: In situ detection of biological particles in cloud ice-crystals. *Nat. Geosci.*, **2**, 398–401.
- Pruppacher, H. R. and J. D. Klett, 1997: Microphysics of clouds and precipitation, Kluwer, Netherlands, 954pp.
- Richardson, M. S., P. J. DeMott, S. M. Kreidenweis, D. J. Cziczo, E. Dunlea, J. L. Jimenez, D. S. Thompson, L. L. Ashbaugh, R. D. Borys, D. L. Westphal, G. S. Cassucio, and T. L. Lersch, 2007: Measurements of heterogeneous ice nuclei in the Western U. S. in springtime and their relation to aerosol characteristics. *J. Geophys. Res.*, **112**, D02209, doi: 10.1029/2006JD007500.
- Roberts, G., G. Mauger, O. Hadley, and V. Ramanathan, 2006: North American and Asian aerosols over the eastern Pacific Ocean and their role in regulating cloud condensation nuclei. *J. Geophys. Res.*, **111**, D13205, doi: 10.1029/2005JD006661.
- Rogers, D. C., P. J. DeMott, S. M. Kreidenweis, and Y. Chen, 1998: Measurements of ice nucleating aerosols during SUCCESS. *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 1383–1386.
- Rogers, D. C., P. J. DeMott, and S. M. Kreidenweis, 2001: Airborne measurements of tropospheric ice nucleating aerosol particles in the Arctic Spring. *J. Geophys. Res.*, **106**, 15053–15063.
- Rose, D., A. Nowak, P. Achtert, A. Wiedensohler, M. Hu, M. Shao, Y. Zhang, M. O. Andreae, and U. Pöschl, 2010: Cloud condensation nuclei in polluted air and biomass burning smoke near the mega-city Guangzhou, China-Part 1: Size-resolved measurements and implications for the modeling of aerosol particle hygroscopicity and CCN activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 3365–3383.
- Rosenfeld D., U. Lohmann, G. B. Raga, C. D. O'Dowd, M. Kulmala, S. Fuzzi, A. Reissell, and M. O. Andreae, 2008: Flood or Drought: How Do Aerosols Affect Precipitation? *Science*, **321**, 1309–1313.
- Saito, A., M. Murakami, and T. Tanaka, 2011: Automated Continuous-Flow Thermal-Diffusion-Chamber Type Ice Nucleus Counter. *SOLA*, **7**, 029–032, doi: 10.2151/sola.2011-008.
- Sassen, K., P. J. DeMott, J. M. Prospero, and M. R. Poellot, 2003: Saharan dust storms and indirect aerosol effects on clouds: CRYSTAL-FACE results, *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1633.
- Snider, J. R., and J.-L. Brenguier, 2000: Cloud condensation nuclei and cloud droplet measurements during ACE-2. *Tellus B*, **52**, 828–842.
- Stephens, G. L., S. C. Tsay, P. W. Stackhouse Jr., and P. J. Flatau, 1990: The relevance of the microphysical and radiative properties of cirrus clouds to climate and climate feedback. *J. Atmos. Sci.*, **47**, 1742–1754.
- Stevens, B., and G. Feingold, 2009: Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system. *Nature*, **461**, 607–613.
- Vali, G., 1985: Nucleation terminology, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **66**, 1426–1427.
- Wagner, R., O. Möhler, H. Saathoff, M. Schnaiter, and T. Leisner, 2011: New cloud chamber experiments on the heterogeneous ice nucleation ability of oxalic acid in the immersion mode. *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 2083–2110.
- Yamashita, K., M. Murakami, A. Hashimoto, and T. Tajiri, 2011: CCN ability of Asian mineral dust particles and their effects on cloud droplet formation. *J. Meteor. Soc. Japan*, **89**, 581–587.