

## キラウエア火山噴火が北太平洋の平均雲粒径と大気放射に与えた影響

江口, 健太  
九州大学大学院総合理工学府

鵜野, 伊津志  
九州大学応用力学研究所

弓本, 桂也  
気象庁気象研究所

竹村, 俊彦  
九州大学応用力学研究所

<https://doi.org/10.15017/27140>

---

出版情報 : 九州大学応用力学研究所所報. 143, pp.75-82, 2012-09. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

# キラウエア火山噴火が北太平洋の平均雲粒径と 大気放射に与えた影響

江口健太\*1 鶴野伊津志\*2 弓本桂也\*3 竹村俊彦\*2

(2012年6月7日受理)

## Eruption of Mt. Kilauea impacted Cloud Droplet and Radiation Budget over North Pacific

Kenta EGUCHI, Itsushi UNO, Keiya YUMIMOTO, Toshihiko TAKEMURA

E-mail of corresponding author: uno@riam.kyushu-u.ac.jp

### Abstract

Recent eruptions of Kilauea volcano, the Island of Hawaii, had ejected large amount of volcanic gas into the clean maritime air over the Pacific since March 2008. During the eruptions, large part of the fine mode aerosols covering the downwind region can be considered as volcanic sulfate. We analyzed the atmospheric impact of the volcanic sulfate based on the satellite retrievals and a 3-D global chemistry-radiation coupled transport model. We estimated the volcanic SO<sub>2</sub> emission as 3.6 Tg for the year of 2008. Observed aerosol extinction by a satellite significantly increased in the longitudinal range of 155°W – 160°E (about 5000 km downwind of Hawaii) and the vertical range of 1.5 – 3 km in 2008 and 2010 corresponding to an increase in the SO<sub>2</sub> column amount around the Hawaii. We analyzed retrieved aerosol optical depth (AOD) and cloud droplet radius (CDR) by the satellite observation for the high SO<sub>2</sub> periods. For all the seasons, the CDRs decrease with an increase in the AOD and the decreasing rate does not depend on the season. For the same AODs, the CDRs vary with the seasons in a range of 2 μm. The CDR is smallest in wintertime and largest in autumn. This variation is related to the seasonal change of the cloud top pressure in the region. The model result well reproduced the seasonal variation of the relationship between the CDR and AOD. We also estimated radiative forcing of the volcanic sulfate from the Kilauea in 2008 as -0.13 W/m<sup>2</sup>, which is one tenth of the global mean anthropogenic aerosol forcing assessed by IPCC (2007).

**Key words :** Sulfate, Aerosol Optical depth, Cloud droplet, Radiation Budget

## 1. 緒言

エアロゾルは気候を左右する重要な因子の一つである。直接的には、太陽からの短波放射や地表面からの長波放射を散乱・吸収する事で大気の放射収支に変化を及ぼす。また、エアロゾルは凝結核・氷晶核として作用し、雲が形成される上で重要な役割も果たしている。エアロゾルの存在によって雲の微視的・巨視的な物理特性が変化し、それを通して間接的にも気候に影響を与える。これまで雲とエアロゾルの相互作用について、観測やモデル実験などを通じた多くの研究が行われている。なかでも、大陸西岸の層積雲に対するエアロゾル

の寄与については、Nakajima and King (1990)<sup>1)</sup>を始めとして最近では Costantino and Bréon (2010)<sup>2)</sup>などにおいてエアロゾルの増加と雲粒径の減少の関係が衛星観測から定量化されている。しかし、依然としてエアロゾルおよび雲の気候影響評価には大きな不確実性が存在する<sup>3,4)</sup>。エアロゾルおよび雲の種類などによって相互作用のメカニズムが異なる事が指摘されており、より精度の高いメカニズムの解明には個々の事例について知見を積み重ねていく事が重要である<sup>5)</sup>。

これまでの雲・エアロゾルの相互作用に関する研究において、積雲を対象としたものは層積雲に対するものと比較して事例が少ない。積雲は地球上の広範囲に存在して<sup>6)</sup>、地球規模の影響を考える上で重要な位置付けにある。大陸東岸にあたる東アジア域において、近年の経済発展によって排出量が増加している人為起源エアロゾルの気候影響を評価する上でも、積雲とエアロゾル

\*1 九州大学大学院総合理工学府(現:東京都庁)

\*2 九州大学応用力学研究所

\*3 気象庁気象研究所

ルの相互作用の解明は必須である。

本研究では硫酸塩粒子が貿易風帯の積雲に与える影響を評価する。2008年以降火山活動が活発化しているハワイ島のキラウエアに着目した。キラウエアからは対流圏下層に定常的に二酸化硫黄ガス(SO<sub>2</sub>)が放出され、それが大気中で酸化されて大量の硫酸塩粒子が形成される。この噴火事例については、SO<sub>2</sub>の排出が最も活発であった2008年夏季に着目し衛星観測を主に利用した先行研究が行われている。その中で、硫酸塩粒子が風下に5000 km程度に渡って広がる様子や、エアロゾルにより平均雲粒径が25%程度減少することを明らかにしている<sup>7,8)</sup>。この噴火は2009年に一度沈静化し、破砕物やSO<sub>2</sub>の排出量が減少するものの、2010年には再び活動が活発化している。長期間継続してSO<sub>2</sub>が排出されたこの事例について、夏季以外の季節についても解析を行うことで、積雲形成へのエアロゾルの効果の季節性を特徴付けることが出来る。また、広範囲に渡ってエアロゾル量の増加と雲微物理特性の変化が見られたことから、その大気放射への大規模な影響が考えられる。

以上の背景から、本研究では解析期間を2004年から2010年までの7年間に設定した。この期間中にはハワイ島周辺域でのSO<sub>2</sub>濃度が高い期間が24ヶ月含まれ、通年に渡る影響評価が可能である。全球エアロゾル気候モデルを衛星観測と併せて用いることで、SO<sub>2</sub>の排出量の推定および放射収支への影響を評価する。

## 2. 手法

### 2.1 衛星観測データ

エアロゾル及び雲特性の水平分布にはアメリカ航空宇宙局(NASA)の衛星Terra搭載のModerate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS)の観測を用いた<sup>9)</sup>。ここではNASA Langley Atmospheric Science Data Centerが提供している水平解像度1°x1°のLevel 3 Collection 5.1データセットに含まれる550 nmのエアロゾル光学的厚さおよび小粒径エアロゾル比、2.1 μm帯を用いて導出された雲粒径を利用した。

NASAの衛星CALIPSO搭載のミー散乱ライダーCloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP)からは雲およびエアロゾルの詳細な鉛直分布を得ることが出来る<sup>10)</sup>。ここではNASA Goddard Space Flight Centerが提供している水平解像度5°x2°、鉛直解像度60 mのLevel 3の月平均のAerosol Profile Productを用いる。

SO<sub>2</sub>の気柱量には欧州宇宙機関(ESA)の衛星ENVISAT搭載のScanning Imaging Absorption

Spectrometer for Atmospheric Cartography (SCIAMACHY)による観測を用いた<sup>11)</sup>。ここではESA Support to Aviation Control Service (SACS)が提供している水平解像度0.25°x0.25°のLevel 3 Version 1.1.3月平均SO<sub>2</sub>鉛直気柱量を用いる。

### 2.2 モデル実験設定

全球エアロゾル気候モデルSPRINTARS<sup>12,13)</sup>を用いた。これは東京大学気候システム研究センター(CCSR; 現大気海洋研究所)、国立環境研究所(NIES)および地球環境フロンティア研究センター(FRCGC; 現海洋研究開発機構地球環境変動領域)によって共同で開発された大気大循環モデルAGCM version 5.7bと結合しており、主要な対流圏エアロゾルの発生・移流・拡散・除去過程を計算して全球のエアロゾル分布を再現するとともに、放射や雲への影響を介しての大気とエアロゾルの相互作用をオンラインで計算することができる。

本研究では水平解像度を1.125°x1.125°(T106)、鉛直20層とした。気象場はNational Centers for Environmental Prediction, National Center for Atmospheric Research (NCEP/NCAR)による6時間毎の気温・風・比湿の再解析値をナッジングした。海水面温度と海水密度についてはアメリカ海洋気象庁(National Oceanic and Atmospheric Administration; NOAA)によるOptimum Interpolation Sea Surface Temperature Version 2再解析データプロダクトの週間値をモデルに与えた。本研究の解析対象となる硫酸塩粒子については、その前駆気体であるSO<sub>2</sub>と硫化ジメチル(DMS)も併せてトレーサーとして扱われる。人為起源のSO<sub>2</sub>排出量はIntergovernmental Panel on Climate Change, Special Report on Emissions Scenarios (IPCC SRES)データベースの2000年月間値を与えた。海洋生物起源DMSは日射の関数としてモデル内で評価される。キラウエア火山噴火によるSO<sub>2</sub>排出量については、後述のように衛星観測と整合するよう調整した値を用いる。計算期間は2004年1月1日から2010年12月31日の7年間である。

## 3. 結果と考察

### 3.1 火山起源SO<sub>2</sub>の分布と排出量

Fig.1はSCIAMACHY観測のSO<sub>2</sub>気柱量の2008年6-8月平均値を示す。ハワイ島から南西へ1000km以上にわたってSO<sub>2</sub>のプルームが捉えられている。これを含むように解析領域(170°W-150°W, 15°N-25°N)を設定した。解析領域における月平均SO<sub>2</sub>気柱量の時

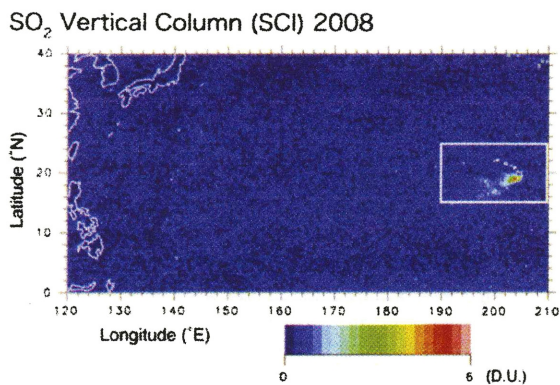


Fig.1 Horizontal distribution of SCIAMACHY column concentration (DU) of  $\text{SO}_2$  averaged between June – August 2008.

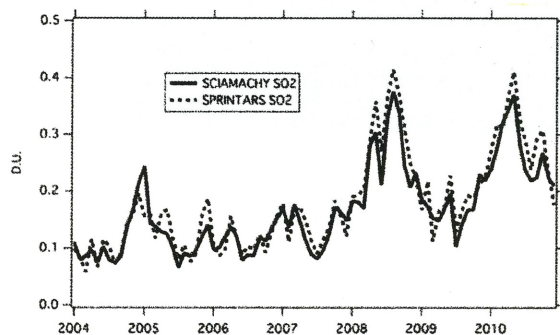
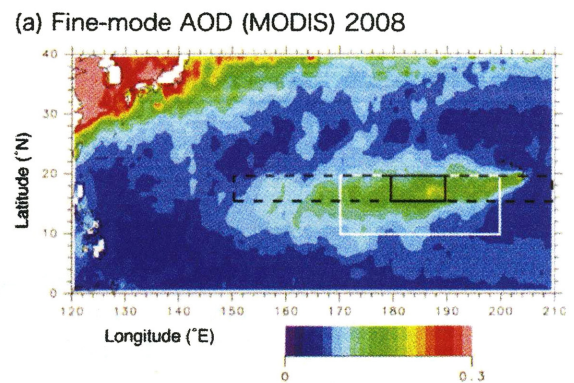


Fig.2 Time series of monthly averaged  $\text{SO}_2$  column amount (DU) around the Hawaii ( $170^\circ\text{W}$ – $150^\circ\text{W}$ ,  $15^\circ\text{N}$ – $25^\circ\text{N}$ ) from 2004 to 2010. Solid and dashed lines indicate the SCIAMACHY retrieval and SPRINTARS model simulation, respectively.

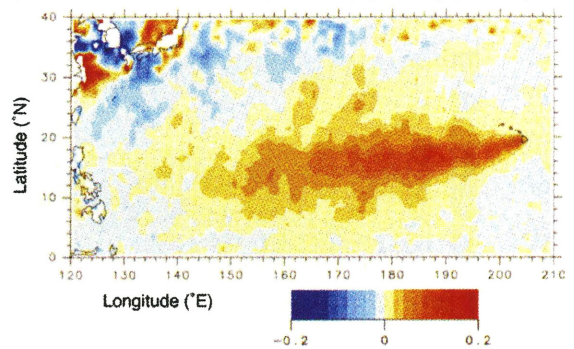
系列を Fig.2 に示す。SCIAMACHY 観測の  $\text{SO}_2$  気柱量は 2008 年に加えて 2010 年も値が大きい。2010 年のピーク値は 2008 年のそれと同程度の約 0.4 D.U.である。この 2 つのピーク期を除くと値は 0.1–0.2 D.U.の間で変動し、この領域における平均的なバックグラウンド値と考えられる。

$\text{SO}_2$  気柱量がピークであった 2008 年 8 月について、 $15^\circ\text{N}$ – $20^\circ\text{N}$  における  $\text{SO}_2$  気柱量の経度分布を再現するように、SPRINTARS モデルのハワイ島からの  $\text{SO}_2$  排出量および排出高度を調整した。2008 年 8 月以外の月については SCIAMACHY による観測値の月変化に比例して SPRINTARS モデルの  $\text{SO}_2$  排出量を変化させた。Fig. 2 には SPRINTARS モデル実験による  $\text{SO}_2$  気柱量を併せて示す。2008 年 8 月以外についても 7 年間の計算期間を通して SCIAMACHY の観測と整合している。

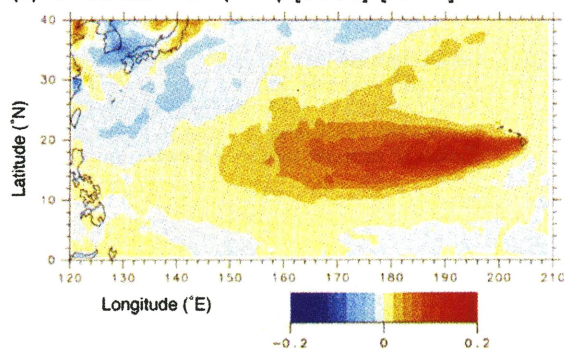
今回の SPRINTARS モデル実験で用いられた  $\text{SO}_2$  排出量は 2008 年 8 月で  $13 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^2/\text{sec}$ 、2008 年の



(a) Fine-mode AOD (MODIS) 2008



(b)  $\Delta$  Fine-mode AOD (MODIS) [2008]–[2007]



(c)  $\Delta$  Sulfate AOD (SPR) [2008]–[2007]

Fig.3 (a) MODIS fine-mode aerosol optical depth (AOD) (b) a difference in MODIS fine-mode AOD between 2008 and 2007, and (c) a difference in simulated sulfate AOD by SPRINTARS between 2008 and 2007. Data are all based on 3-months average between June and August for each year.

全排出量は 3.6 Tg/year である。また、排出高度は 3000 m とした。本事例は対流圏下層に大量の  $\text{SO}_2$  が継続的に放出されていて、爆発的な噴火を伴い成層圏まで火山ガスが到達し全球規模で影響を及ぼしたピナツボ火山噴火のような事例とは様相が異なり、むしろ人為起源の  $\text{SO}_2$  排出と状況に近い。2006 年の中国の年間  $\text{SO}_2$  排出量は Lu et al. (2010)<sup>14)</sup>によって 33.2 Tg と見積もられている。今回のキラウエア火山噴火は、主要な人

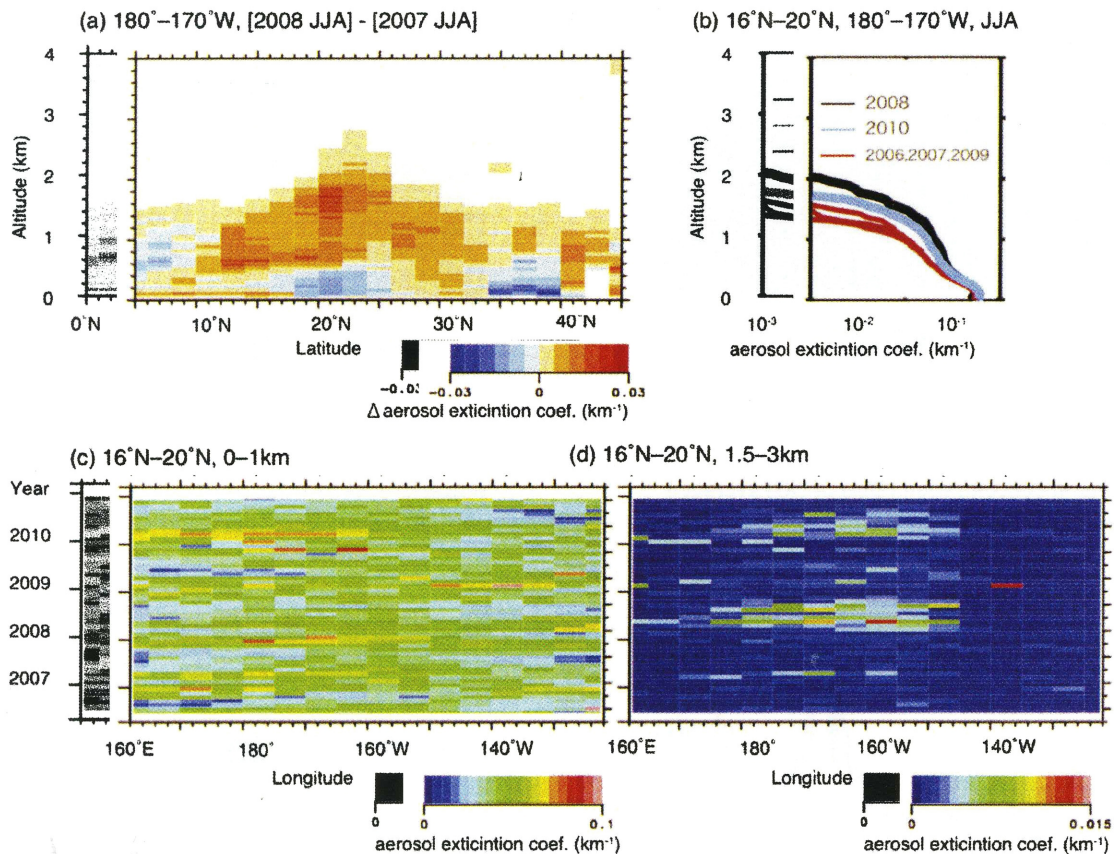


Fig.4 (a) Difference in CALIOP aerosol extinction coefficient between 2007 and 2008 (averaged between June and August), (b) Vertical profile of CALIOP aerosol extinction coefficient between 2006 and 2010 (averaged between June and August), (c) Longitude - time variation of CALIOP aerosol extinction coefficient averaged between the height 0 - 1km, (d) Longitude - time variation of CALIOP aerosol extinction coefficient averaged between the height 1.5 - 3 km.

為起源  $\text{SO}_2$  排出源である中国の 1/10 規模の排出によって引き起こされた硫酸塩形成とそれによる雲微物理過程の変調に関わる自然実験とみなせる。

火山性のイベント的な  $\text{SO}_2$  の増加期とそれ以外の通常期を分離して解析するため、 $\text{SO}_2$  気柱量の解析領域平均値が 0.2 D.U.を超した月を火山活動が活発であった時期とみなした。これに該当するのは、2004 年 12 月 - 2005 年 1 月、2008 年 4 月 - 2008 年 12 月、2009 年 11 月 - 2010 年 12 月の計 24 ヶ月であった。この中には、2, 3 月が各一回、1, 4 - 10 月が各二回、11 月が三回、12 月が四回含まれ、1 月から 12 月まですべての月をカバーしている。この他の通常期は合計で 5 年分となり、その平均を取ることで短期的な変動をある程度除去できると考えられ、これを噴火の影響の少ない条件の基本場とみなして解析を行う。

### 3.2 火山起源エアロゾルの分布

Fig. 3a に 2008 年 6 - 8 月平均の MODIS 小粒径エアロゾル光学的厚さを示す。ハワイ島付近から西に 5000km に渡って小粒径エアロゾルの多い領域が広がっている。Fig. 3b は噴火前の 2007 年 6 - 8 月と噴火期間中の 2008 年 6 - 8 月の小粒径エアロゾル光学的厚さの差である。噴火期間中にハワイ島の南西領域にて小粒径エアロゾル光学的厚さの 0.1 のオーダーでの増加が確認できる Fig.3c は Fig. 3b と同じ期間について SPRINTARS モデル実験による硫酸塩エアロゾル光学的厚さの差を示す。SPRINTARS モデルの噴火実験によって MODIS で観測された小粒径エアロゾルの増加が再現されている。この小粒径エアロゾルの増加は主に火山起源の硫酸塩によるためと考えられる。

Fig. 4 には CALIOP L3 Aerosol Profile に含まれる 532 nm での月平均消散係数の中央値の解析結果を示す。Fig. 4a は噴火前の 2007 年 6 - 8 月と噴火期間中の 2008 年 6 - 8 月の差である。MODIS で観測された小粒径エアロゾル光学的厚さの増加に対応して、緯度方

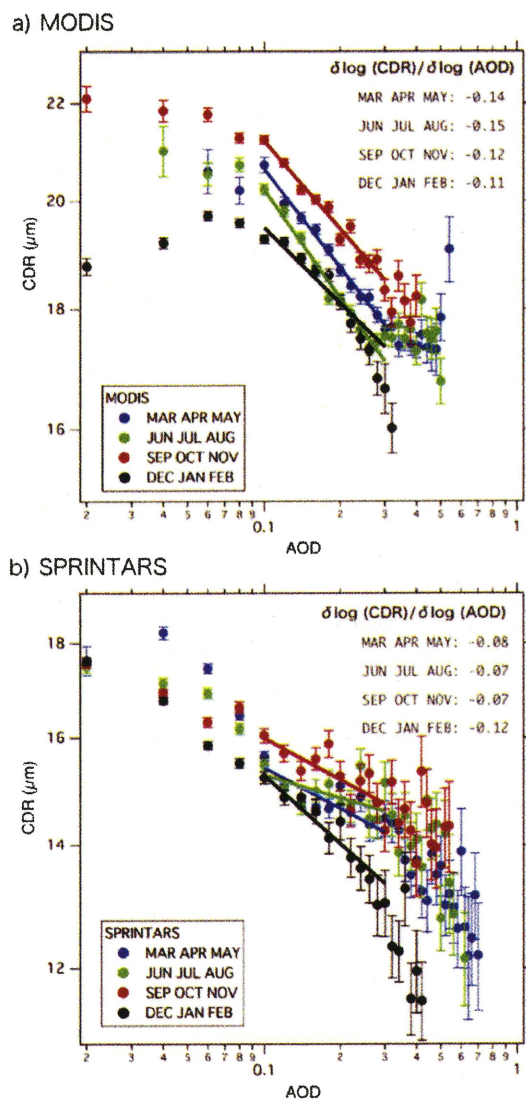


Fig.5 Statistical relationship between the aerosol optical depth (AOD) and the water-cloud droplet effective radius (CDR) for 4 different seasons (MAM, JJA, SON, DJF average) (a) MODIS retrieval, (b) SPRINTARS model results. The error bars represent  $\sigma/(n-2)^{1/2}$ , where  $n$  = the number of the CDR measurements within each bin and  $\sigma$  = the corresponding standard deviation.

向に  $5^{\circ}\text{N}$  から  $25^{\circ}\text{N}$  付近にかけてエアロゾル消散係数の増加が見られる。鉛直方向には高度  $0.5\text{ km}$  付近から  $3\text{ km}$  で増加が確認される。Fig. 4b はハワイ島の南西にあたる  $16^{\circ}\text{N}$ - $20^{\circ}\text{N}$ ,  $180^{\circ}$ - $170^{\circ}\text{W}$  での各年 6-8 月平均の鉛直プロファイルである。各年とも高度  $1\text{ km}$  付近にピークがあり、その値は同程度である。ハワイ島周辺域で  $\text{SO}_2$  気柱量の大きかった 2008 年と 2010 年はその他の年と比較して高度  $0.5\text{ km}$  付近よりも上層での消散係数の増加が目立っている。Fig. 4c, 4d は  $16^{\circ}\text{N}$ -

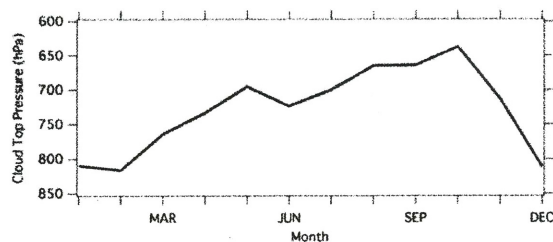


Fig.6 Annual change of cloud top pressure obtained by MODIS under the high  $\text{SO}_2$  level condition around the Hawaii Island.

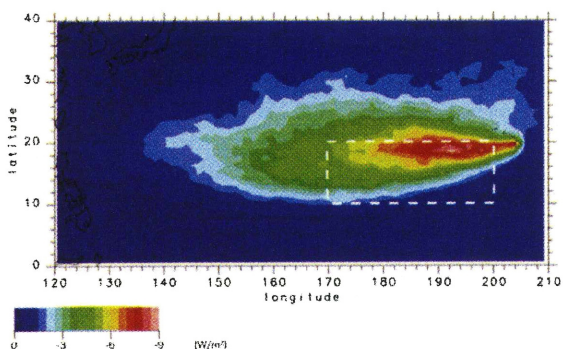


Fig.7 Change in the radiation budget in the shortwave by sulfate aerosol from the Mt. Kilauea eruption (annual average of the year 2008) simulated by SPRINTARS.

$20^{\circ}\text{N}$  の範囲で緯度方向に平均したエアロゾル消散係数の経度時間分布である。Fig. 4c に示す高度  $0\text{--}1\text{ km}$  の平均では、時間的・空間的に明瞭なパターンは確認できない。Fig. 4d に示す高度  $1.5\text{--}3\text{ km}$  の平均では、ハワイ島周辺での  $\text{SO}_2$  気柱量が高かった 2008 年と 2010 年においてハワイ島のある  $155^{\circ}\text{W}$  付近から西へ消散係数の大きい領域が広がっている。

以上を総合すると、ハワイ島の南西領域では高度  $0\text{--}1\text{ km}$  の層に主に海塩粒子を主とするエアロゾルが定常的に存在する。硫酸塩を主とする火山起源の粒子による消散係数の増加は高度  $1\text{ km}$  以下のバックグラウンド値と比較すると小さいが、通常エアロゾルが少ない高度  $1.5\text{--}3\text{ km}$  の層においては大きな寄与をもたらす。また、この層は下層の積雲が存在する高度に対応するため、雲への影響を論じる上では重要な役割を果たすと考えられる。

### 3.3 積雲への影響

先行研究では 2008 年 8 月においてハワイ島南西領域でのエアロゾルの増加と雲粒径の減少が関連付けら

れ、火山噴火起源硫酸塩により平年と比較して雲粒径が 25%程度小さいことが示された。ここでは、ハワイ島周辺で  $\text{SO}_2$  気柱量が高かった 24 ヶ月についてエアロゾル光学的厚さ(Aerosol Optical Depth; AOD)と平均雲粒径(Cloud Droplet Radius; CDR)を季節ごとに関連付ける。

衛星観測データには MODIS L3 Daily プロダクトの CDRと550nmのAODを用いた。各日のデータについて、エアロゾルと雲の双方が適度に存在するグリッドのみを解析対象とした。具体的には、MODIS L3 の1グリッド( $1^\circ \times 1^\circ$ )に含まれるピクセルのうち、雲なしと判定されたピクセルが 20-80%であったグリッドのみを解析に用いた。エアロゾル・雲のいずれかが支配的なグリッドでは他方の物理量が適切に評価されない可能性があり、それを除外するためである。

SPRINTARS モデルの結果について、CDR は  $\sigma=0.83$  の層(高度およそ 1600m)の値を用いる。AOD については硫酸塩以外のエアロゾルを含めたモデルで扱う全エアロゾルの光学的厚さを用い、衛星観測データの取扱と整合するように雲被覆率 0.2-0.8 のグリッドを解析対象とした。解析はハワイ島周辺で  $\text{SO}_2$  気柱量の高かった 24 ヶ月間を対象とし、解析領域はハワイ島の南西にあたる  $170^\circ\text{E}-160^\circ\text{W}$ ,  $10^\circ\text{N}-20^\circ\text{N}$  である。

Fig. 5a は MODIS 観測データから得られた AOD と CDR の関係を示す。エラーバーは CDR の標準偏差をサンプル数で規格化した値( $\sigma/\sqrt{n-2}$ )を示す。回帰直線は AOD が 0.1 から 0.3 の範囲におけるべき乗回帰である。AOD が 0.1-0.3 の範囲においては、年間を通じて AOD の増加に伴って CDR の減少がみられる。AOD が 0.1 から 0.3 に増加すると CDR がおよそ  $2 \mu\text{m}$  小さくなる。AOD の増加に対する CDR の減少率は季節によってあまり変化がない。同一の AOD の値に対する CDR は季節によって異なり、12-2 月が最も小さく 9-11 月が最も大きい。その差はおよそ  $2 \mu\text{m}$  程度である。

Fig. 6 は解析領域における各月ごとの MODIS L3 プロダクトの雲頂気圧を示す。雲頂は 12-2 月に最も低く、その後、高度は上昇し 10 月が最も高い。この季節変化は CDR の増減と対応している。雲頂の低い冬期に CDR が小さく、雲頂が高くなるにつれて CDR が大きくなる。これは Lu et al. (2008)<sup>15)</sup>が示した積雲の厚さが大きくなるにつれ雲頂の CDR が大きくなる事と整合する。

Fig. 5b は SPRINTARS モデルの結果を用いた AOD と CDR の対応を示す。Fig. 5a と比較して CDR が全体的に  $4 \mu\text{m}$  程小さい。これは MODIS 標準プロダクトでは水による減衰の弱い  $2.1 \mu\text{m}$  帯を用いた導出であり、雲粒径が総じて大きい値となるためである<sup>16)</sup>。MODIS の観測で見られた、CDR が 12-2 月に小さく 9-11 月に大きいパターンはモデルにおいても明確に再現されている。

### 3.4 大気放射収支への影響

Fig. 7 には SPRINTARS モデル感度実験で評価されたキラウエア火山起源硫酸塩粒子の大気上端での短波の放射収支の変化を示す。値は直接効果と雲アルベド効果の和の 2008 年平均値である。ハワイ島付近から  $180^\circ\text{E}$  にかけて  $-10 \text{ W/m}^2$  近い冷却効果がある。雲粒径が平年と比較して 25% 減少したと評価されたハワイ島の南西領域( $170^\circ\text{E}-160^\circ\text{W}$ ,  $10^\circ\text{N}-20^\circ\text{N}$ )では、直接効果のみで  $-1.4 \text{ W/m}^2$ 、雲アルベド効果を合わせると  $-4.3 \text{ W/m}^2$  の冷却効果が見積もられた。直接効果と比較して雲アルベド効果が 2 倍程度の寄与がある。1991 年のピナツボ噴火による大気放射収支への影響は  $40^\circ\text{S}-40^\circ\text{N}$  の範囲において  $-4.3 \text{ W/m}^2$  の冷却効果と評価されている<sup>17)</sup>。同じ領域について平均するとキラウエア火山起源硫酸塩粒子は  $-0.19 \text{ W/m}^2$  の冷却効果である。全球平均では  $-0.13 \text{ W/m}^2$  の冷却効果である。IPCC (2007)<sup>18)</sup>では人為起源エアロゾルによる直接効果と雲アルベド効果の和として  $-1.2 \text{ W/m}^2$  の冷却効果が見積もられている。今回のキラウエア火山噴火では全球人為起源エアロゾルの 10 分の 1 に匹敵する冷却効果が見積もられた。

## 4. まとめ

2008 年以降火山活動が活発化したハワイ島のキラウエア火山に着目し、火山起源硫酸塩の輸送と影響を評価した。 $\text{SO}_2$  のプルームはハワイ島から風下へ 1000 km 以上、小粒径エアロゾルは 5000 km 程度の範囲に渡って輸送された。ハワイ島付近の  $\text{SO}_2$  気柱量が高かった 24 ヶ月について火山起源エアロゾルの増加と雲粒径の減少が対応付けられた。雲粒径は雲頂高度の変化に対応して季節変化するが、エアロゾルの増加に対する減少率は季節によらずおよそ一定であった。硫酸塩粒子による直接効果および雲アルベド効果によるハワイ島南西領域での大気上端放射収支への影響は 2008 年平均で  $-4 \text{ W/m}^2$  程度の冷却効果と見積もられた。

本研究によって、 $\text{SO}_2$  の排出量から硫酸塩の三次元的な分布、およびその積雲に対する影響までの一連のプロセスが定量的に評価された。これは火山噴火の気候影響を評価するという点だけでなく、先例の少ないエアロゾルと積雲の相互作用を調べる自然実験としての位置付けも大きい。硫酸塩と積雲のプロセスを評価する気候モデルのテストケースとしても有用な事例である。

## 参考文献

- 1) Nakajima, T., King, M. D., 1990: Determination of the Optical Thickness and Effective Particle Radius of Clouds from Reflected Solar Radiation Measurements. Part I: Theory. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47, 1878–1893.
- 2) Costantino, L. and Bréon, F.-M., 2010: Analysis of aerosol-cloud interaction from multi-sensor satellite observations. *Geophysical Research Letters*, 37, L11801.
- 3) Anderson, T. L., Charlson, R. J., Schwartz, S. E., Knutti, R., Boucher, O., Rodhe, H., and Heintzenberg, J., 2003: Climate forcing by aerosols – a hazy picture, *Science*, 300, 5622, 1103–1104.
- 4) Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Bernsten, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Dorland, R. V., 2007: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing, The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, USA.
- 5) Stevens, B., and Feingold, G., 2009: Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system, *Nature*, 461, 607–613.
- 6) Norris, J. R., and Slingo, A., 2009: Trends in observed cloudiness and Earth's radiation budget: what do we not know and what do we need to know? Clouds in the Perturbed Climate system: their relationship to energy balance, atmospheric dynamics and precipitation, MIT Press, Cambridge, MA, USA.
- 7) Eguchi, K., Uno, I., Yumimoto, K., Takemura, T., Nakajima, T. Y., Uematsu, M. and Liu, Z., 2011: Modulation of Cloud Droplets and Radiation over the North Pacific by Sulfate Aerosol Erupted from Mount Kilauea, *Scientific Online Letters on the Atmosphere*, 7, 77–80.
- 8) Yuan, T., Remer, L. A., and Yu, H., 2011: Microphysical, macrophysical and radiative signatures of volcanic aerosols in trade wind cumulus observed by the A-Train, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7119–7132.
- 9) Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E., and Holben, B. N., 2005: The MODIS aerosol algorithm, products and validation, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 62(4), 947–973.
- 10) Winker, D. M., Pelon, J., Coakley Jr., J. A., Ackerman, S. A., Charlson, R. J., Colarco, P. R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R. M., Kittaka, C., Kubar, T. L., Le Treut, H., McCormick, M. P., Mégie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M. A., and Wielicki, B. A., 2010: The CALIPSO mission: A global 3D view of aerosols and clouds, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91, 1211–1229.
- 11) Richter, A., Burrows, J. P., Nüb, H., Granier, C., and Niemeier, U., 2005: Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space, *Nature*, 437, 129–132.
- 12) Takemura, T., Okamoto, H., Maruyama, Y., Numaguti, A., Higurashi, A., and Nakajima, T., 2000: Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 105, 17853–17873.
- 13) Takemura, T., Nozawa, T., Emori, S., Nakajima, T. Y., and Nakajima, T., 2005: Simulation of climate response to aerosol direct and indirect effects with aerosol transport-radiation model. *Journal of Geophysical Research*, 110, D02202.
- 14) Lu, Z., Streets, D. G., Zhang, Q., Wang, S., Carmichael, G. R., Cheng, Y. F., Wei, C., Chin, M., Diehl, T., and Tan, Q., 2010: Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 6311–6331.
- 15) Lu, M.-L., Feingold, G., Jonsson, H. H., Chuang, P. Y., Gates, H., Flagan, R. C., and Seinfeld, J. H., 2008: Aerosol-cloud relationships in continental shallow cumulus, *Journal of Geophysical Research*, 113, D15201.
- 16) Nakajima, T. Y., Suzuki, K., and Stephens, G.L., 2010: Droplet growth in warm water clouds observed by the A-Train. Part I: Sensitivity analysis of the MODIS-derived cloud droplet sizes, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 67, 1884–1896.
- 17) McCormick, M. P., Thomason, L. W., and Trepte, C. R., 1995: Atmospheric effects of the Mt. Pinatubo eruption, *Nature*, 373, 399–404.



- 18) Intergovernmental Panel on Climate Change, Climate Change, 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, S. Solomon et al., Eds, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U.K.