

B-051 アジアにおけるオゾン・ブラックカーボンの空間的・時間的変動と気候影響に関する研究

(1) 東アジア・中央アジアにおけるオゾン・ブラックカーボンの空間的・時間的変動に関する地上観測

- 1) 東アジア・中央アジアにおける地上通年観測
- 2) BC/OC測定技術の高度化と中国における集中観測への参加
- 3) VOC測定技術の相互比較と中国における集中観測への参加
- 4) NO, NO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub>測定器の高精度化と中国における集中観測への参加

独立行政法人海洋研究開発機構

地球環境フロンティア研究センター

金谷有剛

駒崎雄一

独立行政法人国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ

谷本浩志

首都大学東京 都市環境学部都市環境学科

加藤俊吾

<研究協力者>

独立行政法人海洋研究開発機構 地球環境フロンティア研究センター

パクボン・ポチャナート, ユー・リウ, 竹谷文一

平成17～19年度合計予算額 148,811千円

(うち、平成19年度予算額49,232千円)

※ 上記の合計予算額には、間接経費 34,340 千円を含む

[要旨] 大きな正の放射強制力を有する対流圏オゾンとブラックカーボン(BC)に着目し、測定の空白域であった東～中央アジア地域での通年観測を実施した。観測結果から、濃度レベル・季節変化・日変化の特徴を見出した。中国のオゾン濃度は5-6月と9月頃に極大を示し、真夏は海洋性清浄大気の流入により極小となること、中央アジアでは夏季に極大となることがわかった。泰山・黄山でのBC濃度の年平均値(MAAP装置による)はそれぞれ2.3, 1.0  $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ であり、中国中東部において、BCによる大気上端での放射強制力は、二酸化炭素に匹敵しうることがわかった。キルギス観測サイトではBC濃度は非常に低く、平均値は0.10  $\mu\text{gC}/\text{m}^3$ であった。オゾン汚染が極大となる季節を狙い、2006年6月に、中国中東部(Central East China)におけるオゾンの輸送、光化学収支、BC、OC(有機エアロゾル)、CO、NO<sub>x</sub>、揮発性有機化合物(VOC)などの濃度レベル、濃度比を明らかにすることを目的とした集中観測を泰山にて実施した。BC濃度を4種の装置で測定することで濃度を50%以下の不確かさで決定することができ、factor of 4ともいわれている中国におけるBC排出量統計値の不確かさを減少させるのに十分な精度での測定を行うことができた。華北平原一帯で6月上旬に収穫を終えた冬小麦の農業廃棄物を野外で燃焼させることが汚染物質濃

度が非常に高くなる原因の1つであること、観測された前駆体濃度を用いたオゾン光化学生成速度の計算から、一日に60ppbv程度のオゾンが主にNO<sub>x</sub>-limitedの条件下で生成していること、モデルとの比較から、BC、オゾン前駆体の排出量統計値が過小評価されていることが指摘された。またVOC、含酸素揮発性有機化合物(OVOC)、NO、NO<sub>2</sub>、NO<sub>y</sub>の観測結果から、比較的酸化が進んだ大気が測定されたことがわかった。2007年9-10月には、中国・北京郊外の蟒山において集中観測を実施し、ブラックカーボン測定法の再比較を行うとともに、エアロゾル化学成分のうち、硫酸アンモニウム、有機物、硝酸アンモニウムがエアロゾル散乱を支配していることを明らかにした。

[キーワード] オゾン、オゾン前駆気体、ブラックカーボン、中国、エアロゾル光学特性

## 1. はじめに

IPCC(気候変動に関する政府間パネル)では、長寿命温暖化気体が全球規模気候変動に及ぼす影響に加え、短寿命温暖化関連物質が地域的気候変動に及ぼす影響の重要性が指摘され始めている。短寿命温暖化関連物質の中で、対流圏オゾンとブラックカーボン(BC)は、メタンと同程度の大きな正の放射強制力を有することが知られている。これらの濃度には空間分布及び時間的変動に大きな不均一性があることが知られており、アジア地域の気候変動に及ぼす影響を考察するためには、中国大陸部及び中央アジアにおける対流圏オゾンとブラックカーボンの空間的分布と時間的変動を観測から明らかにすることが不可欠である。しかしながら、この地域においては、領域モデルシミュレーション等と濃度を比較することが可能な、地域代表性の高い地点における、対流圏オゾンおよびその前駆体、ブラックカーボンの精度・確度の高い観測がこれまでなされてこなかった。

## 2. 研究目的

本研究では、アジア大陸内部の地上観測点において、無人連続測定可能な装置を用いた通年観測と、有人下で装置を調整しながら実施する短期集中観測とを併用することにより、オゾン、BC、CO、NO<sub>x</sub>、VOCのアジア大陸部の大陸間・大陸内長距離輸送、オゾンの光化学収支、BC/OC/CO/NO<sub>x</sub>/VOCなどの放出比の実態などを環境科学的に明らかにすることを最終年度における目的とする。特に、中国におけるBC排出量統計値の不確定性を低減するための高精度重量濃度データを提供すること、アジアにおけるオゾン・ブラックカーボン汚染の空間的分布・時間変動を定量化することを目指す。具体的には、(1)山岳測定点において、オゾン、一酸化炭素、ブラックカーボン濃度の通年観測を実施し、地域規模での代表性が高く、対流圏化学輸送モデルを検証するためのデータを取得する、(2)オゾン他の大気汚染物質濃度が極大を迎える季節を狙い、2006年6月に、広域汚染地域である中国華北平原におけるオゾンの輸送過程、光化学収支、BC、OC(有機エアロゾル)、CO、NO<sub>x</sub>、VOCなどの濃度やそれらの比を明らかにすることを目的とした、オゾン前駆気体・エアロゾルを含む集中観測を泰山にて行い、通年では測

定できない重要な成分についても短期間の測定データを取得する、(3) 大気汚染物質濃度が第二のピークを迎える秋季を狙い、2007年9-10月には、北京郊外の蟒山において、エアロゾルの化学成分と光学特性の特徴を明らかにし、両者の関係を考察するための集中観測を実施する。また、とくに集中観測において、より安定に高精度な観測データを取得することを目的とし、NO、NO<sub>x</sub>、NO<sub>y</sub>測定器の高精度化、BC測定技術の高度化、VOC測定技術の準備・高度化を行う。

各測定地点は、図1に示すとおりである。

### 3. 研究方法

#### (1) オゾン・ブラックカーボン測定法評価と東アジア・中央アジアにおける通年観測

通年観測に用いる装置として、紫外線吸収方式に基づくオゾン測定装置、非分散赤外線吸収方式による一酸化炭素測定装置、マルチアングル吸光光度式に基づくブラックカーボン測定装置を採用した。一酸化炭素測定では、ゼロガスを定期的に導入するようにし、ゼロレベルの確実な測定を可能とした。オゾン測定については、海洋研究開発機構が所有する標準発生器を、NISTオゾン標準SRP35 (国立環境研究所所有)に対して校正し、一酸化炭素測定については、標準ガスに関して、ガスクロマトグラフ法による検定を行うことにより、測定トレーサビリティを確保し、データの確度向上を目指した。光学的な手法によるブラックカーボン測定法としては、従来、フィルター上にエアロゾル粒子を捕集し、そのフィルターを透過する光の減衰度の時間変化を測定することにより、エアロゾル粒子による吸収度を算出した上で、ブラックカーボン濃度を算出する方法が開発されてきたが、この方法では、エアロゾルの散乱能の変化や、多重散乱の効果を考慮できなかった(下記(2)1参照)。これに対し、本研究では、フィルターによる透過光強度に加え、フィルターによる反射光強度を2つの異なる反射角で測定することにより、散乱の効果を除去して吸収度を算出できる、マルチアングル吸

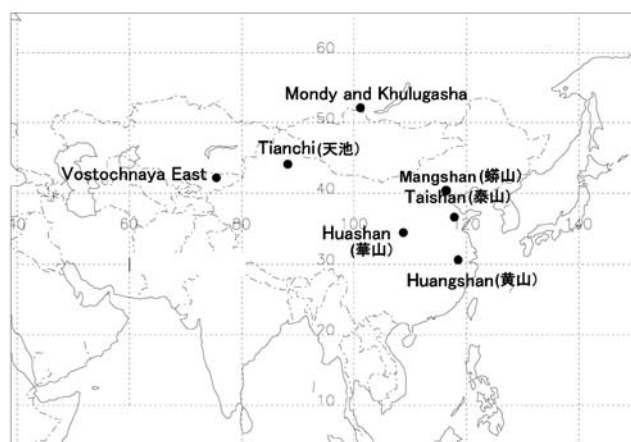


図1. 本研究におけるオゾン、ブラックカーボンの通年観測地点。泰山・蟒山では集中観測も実施した。

表1. 東アジア・中央アジアにおける地上通年観測地点。

観測地点	緯度	経度	高度 (m asl)	情報				
				場所	人口 (百万人)	面積 (km <sup>2</sup> )	人口密度 (/km <sup>2</sup> )	付近の大都市 及び距離
泰山	36° 15' 20.8"N	117° 06' 20.2"E	1524	山東省	91.8	156700	586	済南, 60 km
黄山	30° 08' 05.5"N	118° 09' 50.8"E	1841	安徽省	64.6	139400	463	杭州, 200 km
華山	34° 28' 52.4"N	110° 04' 35.9"E	2065	陝西省	37.0	205800	180	西安, 110 km
天池	43° 54' 00.8"N	88° 07' 14.6"E	1925	新疆	19.6	1660001	11.8	烏魯木齊, 60 km
モンディ	51° 37' 17.9"N	100° 55' 09.4"E	2018	東シベリア	-	-	-	イルクーツク, 250km
ポストナヤ・ イスト	42° 34' 48.4"N	76° 04' 23.4"E	3592	キルギス	-	-	-	アルマトイ, 60 km

表2. 各観測地点の共同研究機関及び観測方法。

観測地点	共同研究機関	オゾン測定 法	メーカ及び モデル	一酸化炭素測 定法	メーカ及び モデル	ブラックカーボン 測定法	メーカ及び モデル
泰山	中国科学院大気物 理研究所	紫外線吸収 方式	日本サーモ 49C	非分散赤外線 吸収方式	日本サーモ 48C	マルチアングル 吸光度式	サーモ 5012MAAP
黄山	同上	同上	Dylec 1150	同上	日本サーモ 48C	同上	サーモ 5012MAAP
華山	同上	同上	日本サーモ 49C	同上	紀本 541	-	-
天池	同上	同上	日本サーモ 49C	-	-	-	-
モンディ	Limnological Institute, RAS	同上	Dylec 1007-AHJ	同上	紀本 541	-	-
ポストナヤ・ イスト	キルギス-ロシアスラ ブ大学(KRSU)	同上	日本サーモ 49C	同上	日本サーモ 48C	同上	サーモ 5012MAAP

光光度式に基づくブラックカーボン測定装置(Thermo社)を採用し、測定の信頼度を高めることとした。地域的な代表性のある大気組成観測所として、中国の泰山、黄山、華山、天山天池気象局、シベリアのモンディ・フルガイシャ、キルギスのポストナヤ・イストを選定し（図1、表1）、順次観測を開始した。すべての観測地点は標高約1500-3600mの山岳地であり、人為的なローカル発生源の影響を受けない観測地点を選択した。各測定サイトの観測維持のために表2に示された研究機関と共同研究契約を結んだ。各観測地点で設置された測定器も表2に記載されるとおりである。泰山における観測は現地の都合により2007年6月で終了したが、泰山以外の観測地点では2007年末または2008年3月まで観測が継続された。泰山で使用した観測機器はすべて北京郊外の嶗山観測地に移動し、秋の集中観測以降観測を継続した。

## (2) 集中観測のための装置の高度化

### 1) BC測定技術の高度化

現在、BCの実時間測定には、光吸収特性を利用したPSAP (Particle Soot Absorption Photometry, Radiance Research社)やAethalometer (Magee Scientific社)が多く用いられている。しかしながら、これら光学手法によるBC測定においては、散乱性エアロゾル（有機物質、硫酸塩、硝酸塩、塩化物塩、アンモニウム塩）や粒径、更にはフィルター内多重反射の影響を受けるため、発生源、場所や季節によりBCの質量吸収係数が異なる（ $2\text{--}25\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ ）ことが指摘されている。Mie理論による計算結果によれば、波長550nmにおけるBCの質量吸収係数は $9\text{--}12\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ であるが、散乱性成分により被覆・内部混合されたBCの質量吸収係数は $25\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ まで増大することが報告されている。また、BCの標準粒子が存在しないことから、PSAPやAethalometerにおけるBCの質量吸収係数は、加熱気化法により測定された元素状炭素（EC）の濃度を基準に補正し算出されることが多い。一方、加熱分離・光学補正法に基づくEC/OC測定法に関しては、現在最も信頼性が高いと言われているが、測定結果が温度上昇プログラムに依存するなど、未だ十分な信頼性が得られているとは言い難い。

本研究で行った初期的な装置比較では、光吸収方式によるBC測定装置として、Radiance Research社のPSAP及び Magee Scientific社のAethalometer (AE31) を使用した。加熱分離・光学補正(Thermal- Optical-Transmittance)方式のEC/OC計にはSunset Laboratory社の装置を用いた。大都市部とその郊外におけるBCとEC測定の相互比較を目的とし、東京都目黒区駒場の東大先端研（7～8月、11～12月）、及び埼玉県北埼玉郡騎西町の環境科学国際センター（7～8月）の2地点で実

大気観測を実施した。エアロゾル捕集粒径はPM<sub>1</sub>とした。東京におけるEC測定にはSunset Laboratory社製のSemi-continuous Field Instrumentを使用した。埼玉におけるEC捕集には、石英フィルター(2500QAT, Pall Co.)を装着したエアロゾルサンプラー(Partisol-FRM Model 2000, R&P)を用いた。時間分解能は3時間、大気吸引流量は16.7 L min<sup>-1</sup>とした。エアロゾルが捕集されたフィルターは、実験室においてSunset Laboratory社製のLabo-Instrumentを用いてEC質量濃度を定量した。

## 2) VOC測定技術の相互比較実験

揮発性有機化合物(VOC)は対流圏での光化学オゾン生成に関与するため大気質に大きく関与するが、種類が多くそれぞれの特性が異なり、人為起源だけでなく植物起源のものも存在するため、リモート地においても高濃度になりうる。また、濃度絶対値の値付けが、通常各研究機関で所有する標準に基づいており、必ずしも国際基準と照合されない問題もある。本研究では、大都市である北京で測定を行っている機関(IAP)とVOC測定技術の相互比較を行った。東京および北京で採取した大気サンプルおよび標準ガスを、それぞれの研究機関で同じ大気サンプルを分析することで比較を行った。分析は首都大学はGC-FIDおよびGC-MSにより、IAPはGC-MSにより行った。それぞれ違う標準ガスを用いてVOCの定量を行った。

## 3) NO, NO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub>測定器の高精度化

オゾン生成に関わる一酸化窒素(NO)、二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)、総反応性窒素酸化物(NO<sub>y</sub>)の三種の大気成分を、一つの検出器と二種類のコンバーターを用いてモードを切り替えながら測定する装置を化学発光式一酸化窒素(NO)検出器を基礎として製作した。具体的には、日本サーモエレクトロン社から市販され、世界中で広く用いられているModel 42CTLの一酸化窒素検出器を用いた。また、二酸化窒素と総反応性窒素酸化物を一酸化窒素に変換するには、青色発光ダイ

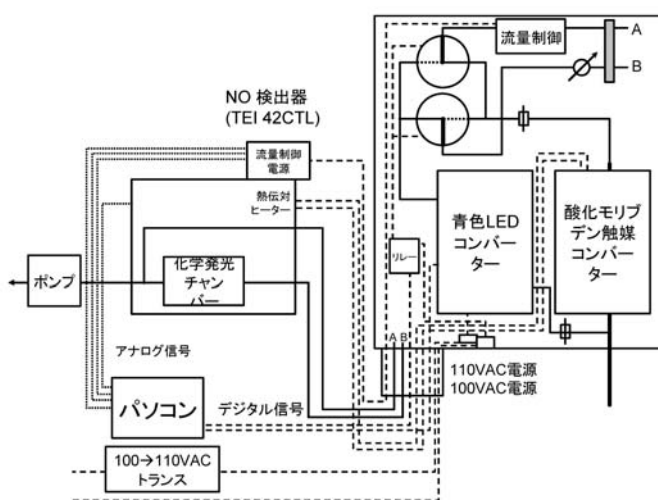


図2 反応性窒素酸化物の測定システムの概略図。

オン触媒コンバーターをそれぞれ用いた。青色発光ダイオードコンバーターは、LEDから放出される波長395 nmの紫外線を二酸化窒素に照射することで一酸化窒素に変換する仕組みであり、LEDを用いているため従来広く用いられてきたキセノンランプ等とは異なり、発熱が少なく長寿命であるという長所を持つ。一方で光量が小さい欠点があるため、搭載個数を多くするとともに反射を大きくして有効な光量を確保した。また、酸化モリブデン触媒コンバーターは、325度に加熱した酸化モリブデン表面上で窒素酸化物を一酸化窒素に変換する仕組みであり、ほとんど全ての

窒素酸化物が100%に近い効率で変換される(図2)。同時に、流量や圧力を制御することにより、計測の高精度化を行った。また、大気中濃度測定の際に基準とする一酸化窒素標準ガスを重量充填法により調整し、米国海洋大気庁で維持している標準ガスと相互比較することで、国際的なトレーサビリティを追究した。

### (3) 2006年6月泰山(中国・山東省)集中観測

2006年6月に行った泰山集中観測における測定項目は表3のとおりである。通年観測されている項目および以下1)2)3)に述べられる事項に加え、Metcon社製single monochromator/photodiode array型スペクトロラジオメータを用いたactinic flux, J値の測定、非分散赤外線吸収法によるCO<sub>2</sub>測定も行った。また、集中観測に参加した中国科学院大気物理研究所、山東大学、復旦大学、南京大学、北海道大学との間でデータを交換することで、エアロゾル粒径別水溶成分濃度(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>等)、微量金属濃度(Fe, Cu等)、有機エアロゾル化学種別濃度(ジカルボン酸、レボグルコサン, PAH等)についてもデータ解析を行えるようになった。また、当集中観測は、サブテーマ(2)とも共同で実施し、MAX-DOAS装置を泰山山頂および泰安(泰山の麓に位置する町)に設置して測定した。集中観測期間は、6/1-30とし、前後に設置・撤収を行った。

表3. 泰山集中観測における測定項目。

Observed species	Method	PI
O <sub>3</sub> , CO	UV absorption, NDIR	P. Pochanart, JAMSTEC
O <sub>3</sub>	UV absorption	T. Wang, J. Gao, Shandong Univ.
NO/NO <sub>x</sub> /NO <sub>y</sub>	LED/Molybdenum converter /Chemiluminescence	H. Tanimoto, NIES
NO/NO <sub>x</sub> *	Molybdenum converter/Chemiluminescence	T. Wang, J. Gao, Shandong Univ.
NMHCs	Canister/GC-FID/GC-MS	S. Kato, Tokyo Met. Univ.
NMHCs	Canister/GC-MS	Y. Wang, IAP
NMHCs, VOCs	PTR-MS	H. Tanimoto, S. Inomata, NIES
CO <sub>2</sub>	NDIR	Y. Komazaki, JAMSTEC
NO <sub>2</sub> VCD & AOD from mountain	MAX-DOAS	H. Irie, Y. Kanaya, JAMSTEC
NO <sub>2</sub> VCD & AOD from foothill	MAX-DOAS	H. Irie, Y. Kanaya, JAMSTEC
Actinic flux & J values	Spectralradiometry	Y. Kanaya, JAMSTEC
T, RH, P, wind	Conventional instruments	Meteorological observatories
Blackcarbon (PM <sub>1</sub> , PM <sub>2.5</sub> )	Multi-Angle Absorption Photometry	P. Pochanart, JAMSTEC
EC/OC	Thermal-Optical-Transmittance	Y. Komazaki, JAMSTEC

#### 1) 泰山集中観測におけるBC/OC測定

集中観測期間中、3. 研究方法 (1) で述べたMAAP測定装置については、30分間隔でPM<sub>1</sub>, PM<sub>2.5</sub>インレットを切り替えて運転した。PSAPは、30分間隔で400°Cに加熱された導管を通過させる場合とさせない場合を切り替えて運転した。加熱分離・光学補正 (Thermal-Optical-Transmittance)方式のSunset Laboratory社EC/OC計では、昇温プログラムには6/21 12:00まではNIOSHを、6/21 13:00以降はIMPROVEを採用した。また、PSAP, EC/OC計のインレットは共通とし、6/20 4:00まではPM<sub>1</sub>, 6/20 5:00以降はPM<sub>2.5</sub>サイクロンをそれぞれ用いた。PSAPでの吸収断面積は10 m<sup>2</sup>/g (565nm), MAAPの吸収断面積は6.6m<sup>2</sup>/g (670nm)を用いた。また、山東大学によるAethalometerによるBC測定値 (PM<sub>2.5</sub>) とも数日間比較を行った。

#### 2) 泰山集中観測におけるVOC測定

中国泰山で2006年6月に行われた集中観測において、揮発性有機化合物 (VOC) の測定のため現地で大気を容器に採取し、後日実験室に持ち帰り分析を行った。サンプリングは基本的に一日一回昼に行ったが、夜間のサンプリングもいくつか行い、合計30サンプルを得た。なるべく多くの物質について測定値を得るために、大気を濃縮した後GC-FIDおよびGC-MSの2つの方法によって分析を行った。また、中国のグループ (IAP) によるVOC測定と比較を行うため、泰山で採取した同じ大気サンプルを初めに中国で分析してもらい、その後日本に輸送して首都大学東京 (TMU) にて分析した。また、両研究グループが同時にそれぞれの容器にサンプリングした場合の測定結果についても比較を行った。

### 3) 泰山集中観測におけるNO, NO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub>および揮発性有機化合物の測定

製作した化学発光式一酸化窒素測定器をベースにした一酸化窒素(NO)・二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)・総反応性窒素酸化物(NO<sub>y</sub>)の同時測定装置を用いて、中国・泰山における集中観測に参加した。選択的にNO<sub>2</sub>のみをNOに変換する青色光コンバーターと、NO<sub>y</sub>をNOに変換する酸化モリブデン触媒コンバーターを用い、それらを大気採取インレット部に設置することで、大気採取直後に比較的安定な化学形態であるNOに変換したのち、検出器まで導いた。この方式により、吸着しやすい二酸化窒素や硝酸によるアーティファクトの影響を最小限にとどめることが可能になり、NO<sub>2</sub>ならびにNO<sub>y</sub>モードへの干渉を防ぐことができた結果、大気計測における選択性が増した。

一方、窒素酸化物と同様にオゾン前駆物質として働く、揮発性有機化合物については、本サブテーマでキャニスターサンプリング後、実験室にてガスクロマトグラフ法により測定する方法が行われているが、今回新たに陽子移動反応イオン化-質量分析計(PTR-MS)を持ち込んで連続観測を行った(図3)。本装置は、通常ガスクロマトグラフ法では測定が困難な、吸着性の比較的高い含酸素有機化合物についてもオンライン測定が可能である。揮発性有機化合物の種類は多岐にわたるため、プロピレン、アセトアルデヒド、アセトン、イソプレン、ベンゼン、トルエン、キシレンの7種類の物質を含んだ標準ガスを現地に持ち込んで較正するとともに、ガスクロマトグラフ法との相互比較を行うことで、高頻度で取得できる大気中濃度データの信頼性の向上に努めた。

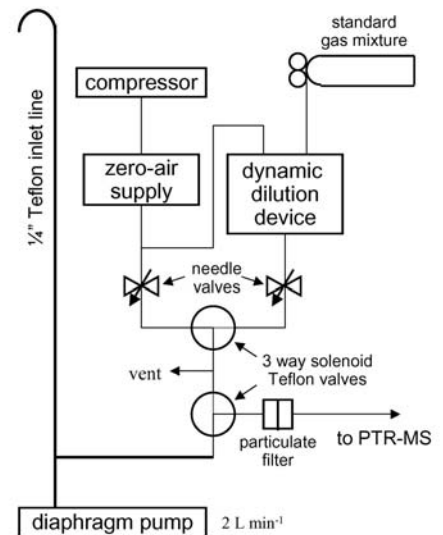


図3. 陽子移動反応イオン化-質量分析計の概略図。

#### (4) 2007年9-10月蟒山(Mangshan, 中国・北京市郊外)集中観測

2007年9-10月には、北京市街より約40km北に位置する蟒山森林公園内(40.26° N、116.28° E、標高187m、図1)にて集中観測を実施した。測定項目は表4のとおりである。泰山から撤収されたブラックカーボン計(MAAP)、オゾン計、CO計を設置し、測定を行った。これらに加え、BC測定比較の目的で、PSAPを運転し、また、ミニサンプラーによって石英フィルター上にPM<sub>2.5</sub>エアロゾルを捕集し(サンプル流量5 L/min、捕集時間は昼は通常9時~18時の9時間、夜は18時~8時の14時間)、加熱分離・光学補正(Thermal-Optical-Transmittance)方式のSunset Laboratory社EC/OC計を用いて、NIOSH、IMPROVEの両方の昇温プログラムを用いて分析した。また、BC以外の化学成分分析のために、エアロダイン社製、エアロゾル質量分析計(四重極質量分析型)を持ち込み、高い時間分解能で、サイズ別のエアロゾル主成分(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、有機物)オンライン分析を行ったほか、PM<sub>2.5</sub>のサイズカット性能(理論)を備えたハイボリュームエアサンプラ(サンプル流量500L/min)を用いたサンプリングを実施し(昼は9時間または3時間x3回捕集、夜は



14時間捕集)、主要水溶成分 ( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 等)、微量金属 (Fe、Cu等)、加熱分離・光学補正(Thermal- Optical-Transmittance) EC/OC分析 (昇温プログラムはIMPROVEのみ) を行った。また、フィルターから水溶成分を純水に抽出してアトマイザによって噴霧することでエアロゾル粒子を再生し、エアロゾルフロー反応管/化学変換/レーザー誘起蛍光法のシステムを用いて $\text{HO}_2$ ラジカルと実大気エアロゾルとの反応性 (取り込み係数) を測定するための実験を行った。エアロゾル粒子の物理計測の目的で、光学式パーティクルカウンターによる粒径別 (>0.1、>0.2、>0.3、>0.5、>1 $\mu\text{m}$ ) 粒子数密度測定を行った。観測前後にSMPS(Scanning Mobility Particle Sizer) との比較を行い、測定精度を検証した。さらに、エアロゾルの光学特性の測定として、積分型ネフェロメータ (M903、Radiance Research) による散乱係数の測定、サブテマ (2) との共同により、MAX-DOASによる消散係数の測定を行った。ネフェロメータでは、3方バルブを用いて定期的にフィルターによってエアロゾル粒子が除去された空気を導入するようにし、ゼロ点のドリフトを補正できるようにした。 $\text{CO}_2$ 、HFC134aによるキャリブレーションを観測前後に行った。また、一時間測定サイクルのうち、30分間は大気導入部を暖めることによって外気を低湿度にして測定し、粒子の吸湿による散乱係数増大の効果を見積もれるようにした。MAX-DOASによって、 $\text{NO}_2$ ほか大気微量気体の測定も行われた。

このほか、集中観測に参加した中国科学院大気物理研究所、復旦大学、北海道大学は、エアロ

表 4. 嶺山集中観測における測定項目。

Species/parameter	Method	PI
BC (PM2.5)	Multi-Angle Absorption Photometry	P. Pochanart, JAMSTEC
BC (PM2.5)	Particle Soot Absorption Photometry (PSAP)	Y. Kanaya, JAMSTEC
Mini sampler (PM2.5) for post EC/OC analysis	Thermal-Optical-Transmittance	F. Taketani, P. Pochanart, JAMSTEC
$\text{NO}_3^-$ , $\text{SO}_4^{2-}$ , ammonium, oxygenates (20 – 600 nm, size distribution)	Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer	A. Shimono, Sanyu Plant Service F. Taketani & Y. Kanaya, JAMSTEC
Ion analysis of PM10 and PM2.5	Sampling/ post analysis	G. Zhuang, Fudan Univ.
Ion and metal analysis of PM2.5	High Vol (PM2.5 impactor)/ post analysis	F. Taketani & Y. Kanaya, JAMSTEC
Organic gases/aerosols (molecular level)	High volume air sampler (TSP), filterpack collections/ post analysis	K. Kawamura, Hokkaido U.
Extracted aerosol reactivity toward $\text{HO}_2$	High Vol (PM2.5 impactor)/ aerosol flow tube/Chemical Conversion/Laser-induced Fluorescence	F. Taketani & Y. Kanaya, JAMSTEC
Mass concentration PM2.5 and PM10	TEOM	CRAES
Aerosol number density size distribution (>0.1, >0.2, >0.3, >0.5, >1 $\mu\text{m}$ )	Optical Particle Counter	F. Taketani, JAMSTEC
Aerosol number density size	Wide range spectrometer (MSP)	Nanjing U. Info. Sci. Tech./ IAP

ゾルサイズ分布、ライダーによるエアロゾル高度分布、NO/NO<sub>y</sub>濃度、エアロゾル(PM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>)水溶成分濃度(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>等)、有機エアロゾル化学種別濃度(ジカルボン酸、レボグルコサン、PAH等)、について同時に測定を行った。

VOCの測定は、泰山での場合と同様の方法で行った。北京の都市域からの汚染大気の影響を受けやすい時間を狙い、基本的には午後には大気サンプリングを行った。大気サンプルを濃縮した後GC-FIDおよびGC-MSの2つの方法によって分析を行った。

#### 4. 結果・考察

##### (1) オゾン・ブラックカーボン測定法評価と東アジア・中央アジアにおける通年観測

海洋研究開発機構が所有する標準発生器を、NISTオゾン標準SRP35(国立環境研究所所有)に対して校正した結果を図4に示す。ここから、傾き、切片はそれぞれ平均で0.9948±0.0005、-0.2354±0.0461ppbであり、ともに時間に対する変動は小さかったことから、感度やオフセットの系統的なずれやドリフトは無視できることが確かめられた。一酸化炭素標準ガスを気象研究所にて検定した結果では、メーカーによる濃度報告値の偏差は-3.6~+1.7%以内であることが示唆された。これらの結果から、本研究で用いるオゾン測定装置、一酸化炭素測定装置によって、精度・確度の十分に高い測定が可能であることが確かめられた。2台のブラックカーボン測定装置を用い、横須賀の実験室にて外気を同時に測定し比較したところ、測定結果はテープフィルター送りのタイミングを決定する透過光強度の閾値の設定に大きく依存しないことが確かめられた。

このように、各測定装置の性能評価や測定データの品質評価を行った後、中国の泰山、黄山、華山、天山天池気象局、シベリアのモンディ・フルガイシャ、キルギスのポストナヤ・イーストにおける観測を順次開始した。

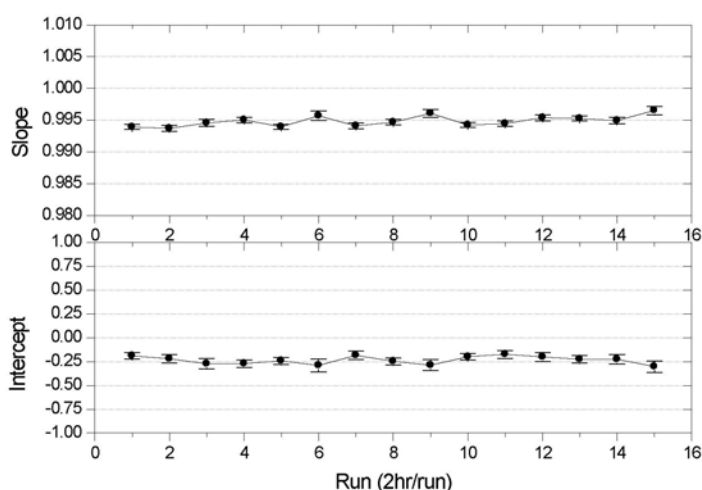


図4. 海洋研究開発機構が所有するオゾン標準発生器を、NISTオゾン標準SRP35(国立環境研究所所有)に対して校正した結果。

各観測地点において2004年から2007年まで最大4年間連続のオゾン季節変動及び年々変動を得た(図5)。各観測地におけるオゾン季節変動の特徴から、以下の3グループに分けることができる。(1)人為的な発生源の影響

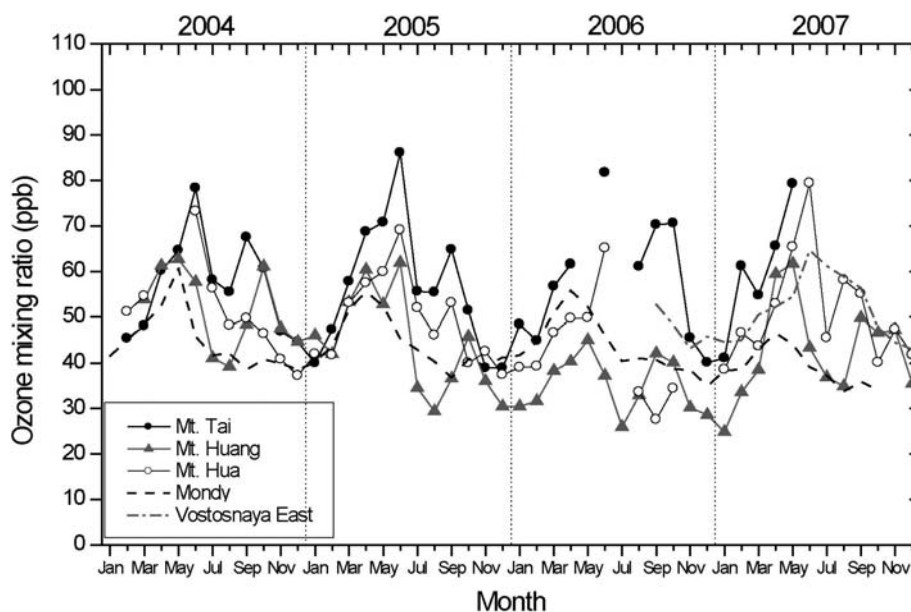


図5. 2004-2007年のオゾン通年観測データ。

響が大きい中国型、(2)リモート北半球バックグラウンドのシベリア型、及び(3)中央アジアのバックグラウンド型である。

まず、(1)人為的な発生源が大きい中国型の特徴として、3ヵ所ともにオゾン濃度が高く、初夏の5-6月に最大値をとり、秋に第二の極大が見られる。真夏は東アジアのモンスーンによりオゾン濃度が下がる傾向がある。初夏および秋のピークは光化学的オゾン生成によるものである。衛星データによると、中国中東部ではNO<sub>x</sub>の発生量が大きく、特に泰山周辺の山東省付近では非常に高い。さらに6月ごろには衛星から野外バイオマス燃焼のホットスポットも観測されており、NO<sub>x</sub>やバイオマス燃焼起源のオゾン前駆体物質によってオゾンが光化学的に生成されることを示唆している。中国3ヵ所の中で毎年最も高いオゾン濃度が記録されるのは泰山で、極大となる6月の3年(2004-2006)平均値は82ppbであったほか、日平均値が100ppbを超える日も高頻度で観測された。華山で観測された6月の平均は72ppbと、泰山に比べるとやや低かった。黄山では、3箇所のうち最も低いオゾン濃度が観測された。黄山は比較的緯度が低いため、夏季にはモンスーンの影響を受ける期間が長く、オゾン濃度が比較的低い清浄な海洋性大気の影響を最も強く受けるためと考えられる。異常にオゾン濃度が低い2006年を除いた3年間では、黄山の月平均最大値は62ppbであった。

(2)リモート北半球バックグラウンドのシベリアオゾン変動型には、モンディが該当し、4-5月に最大値をとるが、他の季節はオゾン濃度が低くなる。このような季節変動はリモート北半球バックグラウンドオゾンの特徴である。(3)中央アジアのバックグラウ

表5. 各観測地点のオゾン年平均値(ppb)

観測地点	泰山	黄山	華山	モンディ	ポストナヤ・イスト
2004	57.3	51.8	50.8	44.7	
2005	56.3	44.1	49.5	44.2	
2006	58.1	35.2	42.8	43.8	
2007		42.7	51.2	39.1	51.9

ンドオゾン変動には、キルギス・ボストナヤ・イストにおけるオゾン季節変動が該当した。1年間しかデータは得られなかったが、夏ピークを示し、この特徴はヨーロッパのオゾン季節変動またはモンスーン影響のない地域とよく似ていた。中国で見られるような大きい日々変動は観測されなかったが、標高が最も高いことを反映して、全体的にオゾン濃度が高い傾向があった。

各測定点での年平均値を表5に示す。各観測地点では年々変動が多少観測された。2006年では華山及び黄山のオゾン濃度が異常に低くなり、他の年より8-10ppb低かった。2007年はモンディのオゾンが通常より約5ppb低かった。主な年々変動の原因はその年の気象、発生量、長距離輸送及び特別なイベント(バイオマス燃焼など)によると考えられた。

中国中東部における人為発生源が各観測地点のオゾンに対して与える影響を評価するために、2004年泰山、華山及び黄山に到達したエアマスの後方流跡線を計算し、衛星によるNO<sub>2</sub>データからNO<sub>x</sub>発生源領域と考えられた(30.5 - 40.5N、112.5 - 122.5E)の領域を中国中東部と定義して、この発生源領域内のエアマスの滞留時間を計算し、オゾン濃度の相関を調べた(図6)。

泰山のデータでは、観測所に到達するまでの時間が40時間以内の場合、滞留時間が長くなるとオゾン濃度も増加する。黄山・華山では同様の関係がそれぞれ

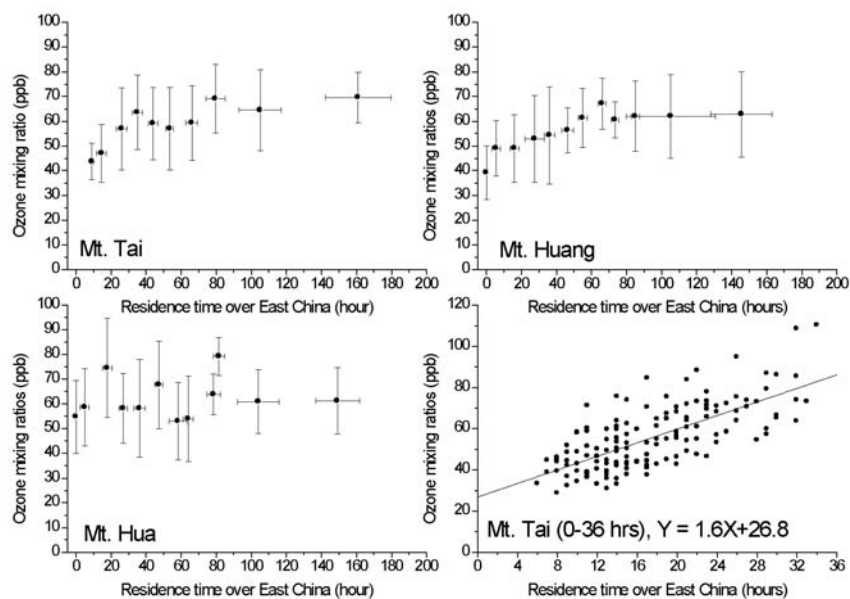


図6. 2004年中国泰山、華山及び黄山におけるオゾン濃度と、流跡線に基づく中国中東部におけるエアマス滞留時間の相関。

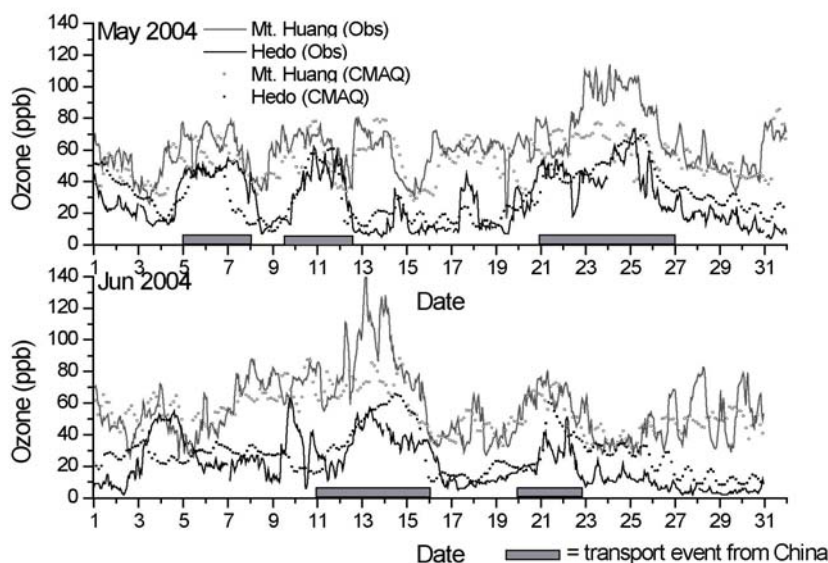


図7. 2004年5-6月沖縄に辺戸岬にて確認された、中国からの大気汚染輸送イベント

留時間70時間、20時間以内の場合に見られた。しかし2004年は華山では欠測データが多いため、この相関が明確ではなかった。この解析から、増加したオゾン是中国中東部地域から発生した新鮮なオゾン前駆体により生成されたものと考えられた。泰山では、36時間以内の滞留時間のデータについて、非常によい相関が得られた(傾き: 1.6-2.1ppb/hr、相関係数:0.71)。この傾きは38-50ppb/dayのオゾン生成量に相当する。

中国においてオゾンが高濃度となる季節に、オゾンが中国から日本に輸送されるイベントがあるかどうか調べるために、2004-2005年4-6月における日本の代表的な観測地点(利尻、八方、隠岐、対馬及び沖縄辺戸岬)で測定された地表オゾン濃度に対する後方流跡線解析を行った。明確に中国からの大気汚染輸送イベントを確認できたのは2004年5-6月の辺戸岬のオゾン濃度変動である(図7)。通常5-6月には沖縄では夏季モンスーンの影響が強くなり、基本的には太平洋から流入する低濃度オゾンが測定される。それに対し、中国や大陸からの輸送イベントまたはローカルな生成イベントが起こる場合、オゾン濃度変動は急増し、濃度変動を確認しやすい。2004年5-6月には辺戸岬におけるオゾン濃度急増イベントが6回確認でき、そのうち5回は中国からの輸送イベントであることが後方流跡線解析により示唆された。輸送元の地域は黄山周辺の中国中東部と推測された。各イベントについて、輸送に要した時間を遡り輸送元である黄山のオゾンデータを確認すると、辺戸岬で観測された値より非常に高濃度であった。辺戸岬において観測されたオゾンはCMAQモデル計算による値と比較すると、濃度レベル及び変動パターンがよく一致し

(図7)、2004年5-6月の辺戸の平均オゾン濃度は24.4ppb(観測)と29.2ppb(CMAQ)であった。中国からの大気汚染輸送イベントを除いた場合、海洋性バックグラウンドオゾンは15.2ppb(観測)と22.4ppb(CMAQ)であった。これに対して中国からの大気汚染輸送イベントが起こるときのオゾン平均濃度は39.2ppb(観測)と40.1ppb(CMAQ)であった。このことから、沖縄辺戸岬では大気汚染輸送により約24ppbオゾン濃度が増えることがわかった。

ブラックカーボンの観測(図8)は3カ所で行われ、黄山

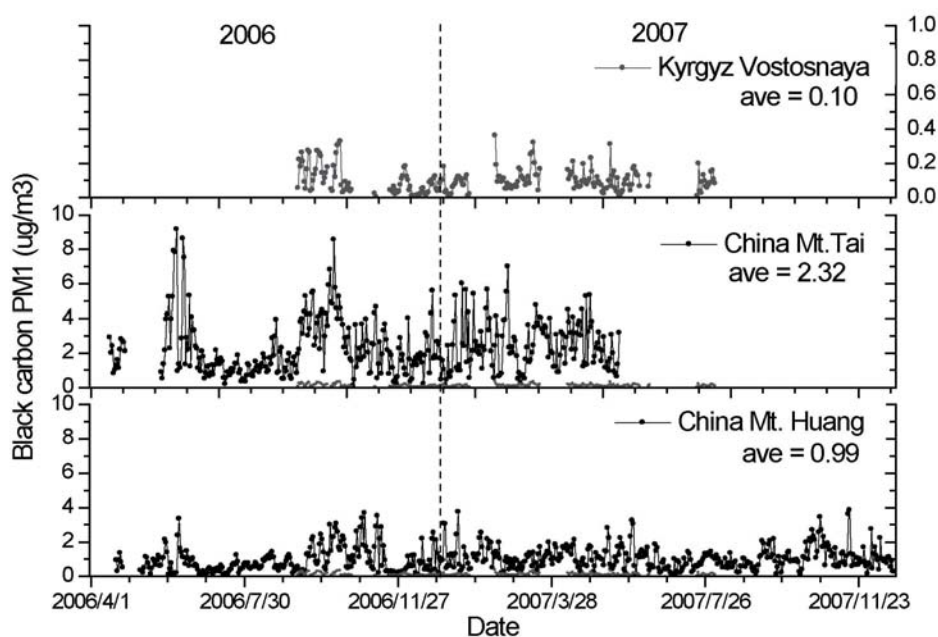


図8. ブラックカーボンの通年観測データ。

では2006年度より2007年末まで連続データが得られたが、泰山にて現地都合により2007年5月で観測データが得られなくなった。ポストナヤ・イストでは2007年夏にブラックカーボン測定器が不良状態となり、その後データは得られなかった。欠測期間があるため、必ずしも通年平均値とはいえないが、2006～2007年に得られた全データを平均した濃度は泰山、黄山及びポストナヤ・イストでそれぞれ2.32（観測日数:372日）、0.99（同595日）、0.10（同216日） $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。ポストナヤ・イストでは最も低い濃度が観測され、最大の日平均濃度は0.36  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。これに対し泰山にて日平均濃度が0.36  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回った日数は362日で、全体の97%であった。黄山でも84%であった。泰山及び黄山それぞれの最大の日平均濃度は9.2及び3.8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ である。

ポストナヤ・イストでは、データ欠測が多く、また非常に濃度が低いためブラックカーボン濃度の季節変動は明確に見られなかったが、多少秋に高くなり（平均0.12  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、冬に低くなる（平均0.07  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）傾向があった。春及び夏の観測値は約0.10-0.11  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。中国泰山、黄山では、ともに秋に最大値を示し、冬にやや低下し、春にはやや上昇、夏には最も低くなることがわかった。夏に低くなるパターンは中国におけるオゾン変動とよく似ている。

中国では、ブラックカーボン濃度の日々の変動は大きかったが、この原因は中国国内の発生源の影響が変動するためと考えられた。これに対しポストナヤ・イストのブラックカーボン濃度は日々の変動が小さく、おそらく、キルギス国内発生源より長距離輸送の影響の方が大きいためと考えられた。

中国では一酸化炭素濃度変動もブラックカーボンとよく一致し、同様の日々変動パターンが見られた。このことは、人為的な発生源が共通しているためと考えられる。

## （2）集中観測のための装置の高度化

### 1） BC測定技術の高度化と予備的比較

東京および埼玉においてPSAPおよびAethalometerにより光学的に測定されたBCと加熱分離・光学補正法により測定されたECの相互比較を実施した。東京の夏季および秋-冬におけるECの平均重量濃度はそれぞれ $1.68 \pm 1.02$ 、 $3.34 \pm 2.40$   $\mu\text{g m}^{-3}$ であった。また、埼玉の夏季におけるECの平均重量濃度は $2.27 \pm 1.22$   $\mu\text{g m}^{-3}$ で、各BC-EC測定値間には極めて高い相関が認められた（ $r^2 = 0.885 \sim 0.978$ ）。しかしながら、メーカーが初期設定したBC質量吸収断面積（PSAP： $10 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ 、Aethalometer： $16.6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  @ 880 nm）を用いた場合、光学法により得られたBC濃度の絶対値はECより30%程度高くなる傾向が認められた。東京の夏のデータについて、BCとECの回帰式の傾きから算出した、PSAP、Aethalometerにおける質量吸収断面積は、それぞれ $13.3$ 、 $22.1 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ となる。発生源近傍における散乱性成分による被覆により質量吸収断面積が増加したためと考えられた。

また、東京の秋-冬季においてAethalometerにおけるBCの質量吸収断面積は $24.2 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ となった。この値は夏季の測定と比較して約10%増大している。さらに、同様のBC-EC相互比較結果から、埼玉（夏季）におけるPSAPにおけるBCの質量吸収断面積は $14.5 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ と算出され、東京における同期間の観測により得られたBC質量吸収断面積と比較すると、約10%の増大が認められた。

## 2) VOC測定技術の相互比較実験

図9に東京、北京、泰山、標準ガスの大気を首都大学およびIAPが分析した結果を比較した。横軸にそれぞれの物質をとり、縦軸は（IAPの分析値）／（首都大の分析値）比を表す。分析値が一致する場合には比が1になるべきだが、多くの物質で1とは異なる値をとった。実大気については大気を採取してから輸送期間中に容器内の表面反応により採取した大気VOCが増加してしまう可能性もあるが、標準ガスの比較においても差が見られている。大気試料の比較では、とくに低濃度の物質において差が大きく、首都大学ではごく低濃度であったアルケンなどがIAPで比較的高い濃度となるものがあった。標準ガスや都市大気での比較もあわせて、特定の物質について差が大きくなるならその物質についての定量方法に問題があると考えられるが、とくにそのような傾向は見られず、比較しているサンプルごとに傾向は異なった。また、現在では清浄な大気においても一定濃度含まれているハロカーボンについて明らかに異常な低濃度となっているデータがIAPの結果に見られるため、定量方法や同定方法が不適切である可能性が高い。両機関が分析したデータを比較するためには、さらに詳細な比較検討を行なわなければならない段階である。

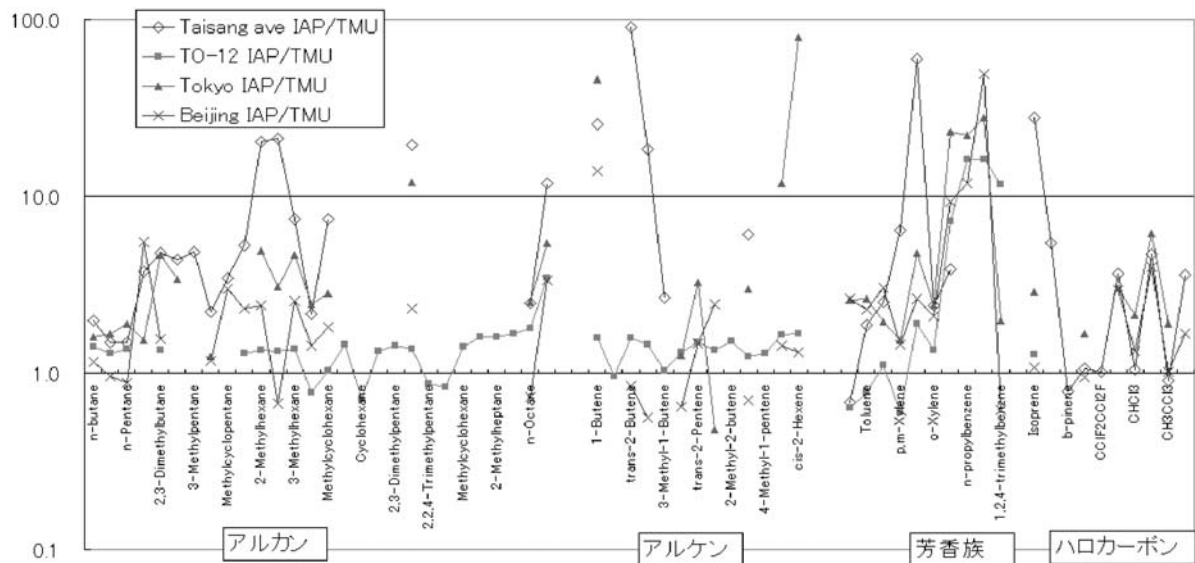


図9. IAPおよび首都大学東京によるVOC測定結果の比。

## 3) NO, NOx, NOy測定器の高精度化

NOの化学発光式検出に用いるオゾン源には、酸素を用いることで高感度化を達成した。NO<sub>2</sub>、NOyは、LEDコンバーター、酸化モリブデン触媒コンバーターを搭載した大気採取インレットにおいて、大気採取直後にNOに変換し、検出器まで導いた。NOはNO<sub>2</sub>やNOyより配管に吸着しにくいいため、NO<sub>2</sub>やNOyをそのままの化学的形態で検出器近くまで導く方式と比較して、本方式の方が選択性が高いことが確かめられた。また、流量や圧力を制御することにより、測定の精度を高めるこ

とができた。その結果、NO、NO<sub>x</sub>、NO<sub>y</sub>各モードとも1分間隔での連続測定が可能になり、濃度変化の大きい実大気における測定に十分使用できることが分かった。また、米国海洋大気庁(NOAA)のグループとの相互比較の結果、本研究で調整した標準ガスは、国立環境研究所：2.004 ppmv（重量充填法による）に対して、NOAA：1.99 ppmvとなり、測定精度（2%）の範囲内で非常に良く一致することが確かめられた。

### （3）2006年6月泰山（中国・山東省）集中観測

泰山集中観測で測定された主要ガス・エアロゾル成分の濃度変動を図10に示す。標高1500mを超える高所にも関わらず、オゾン、COの期間中平均濃度は82, 560 ppbvと非常に高かった。オゾン、CO、BC、OCが極大濃度を示した6/5-7、11-13(図4の灰色の領域)には、後方流跡線が衛星センサーAVHRRによって観測されたhotspotの近傍を通過しており(図11)、華北平原一帯で6月上旬に収穫を終えた冬小麦の農業廃棄物が野外で燃焼されていることが、汚染物質が高濃度に達する主な原因であると考えられた。



一次排出が主要な濃度変動要因である2種の化学成分について濃度散布図を描くと、傾きから排出比を見積もることができ、エミッションインベントリに用いられる排出比との比較から、主な汚染源の推定、エミッションインベントリの検証・改良を行うことができる。 $\Delta\text{CO}/\Delta\text{CO}_2$ は期間を通じて40ppbv/ppmv程度であり、中国から外洋へ輸送されたあとの汚染気塊についての報告値(33-56

(Trace-P)<sup>1)</sup>, 28-48

ppbv/ppmv

(PEACE-A)<sup>2)</sup>とほぼ一致した。 $\Delta\text{BC}/\Delta\text{CO}$ 比は観測期間の前半は0.015gBC/gCOと高かったのに対し、後半は値が小さく(0.005)、前半とは汚染源が異なることが指摘された(図12)。4. 結果・考察 (3) 1)「泰山集中観測におけるBC/OC測定」節で述べるBC測定の不確かさを考慮すると、前半はバイオマス燃焼による排出比の報告値(0.008 gBC/gCO<sup>3)</sup>)に近く、後半はIndustry/transportationによる放出(中国において0.002 gBC/gCO<sup>4)</sup>)が寄与している可能性が

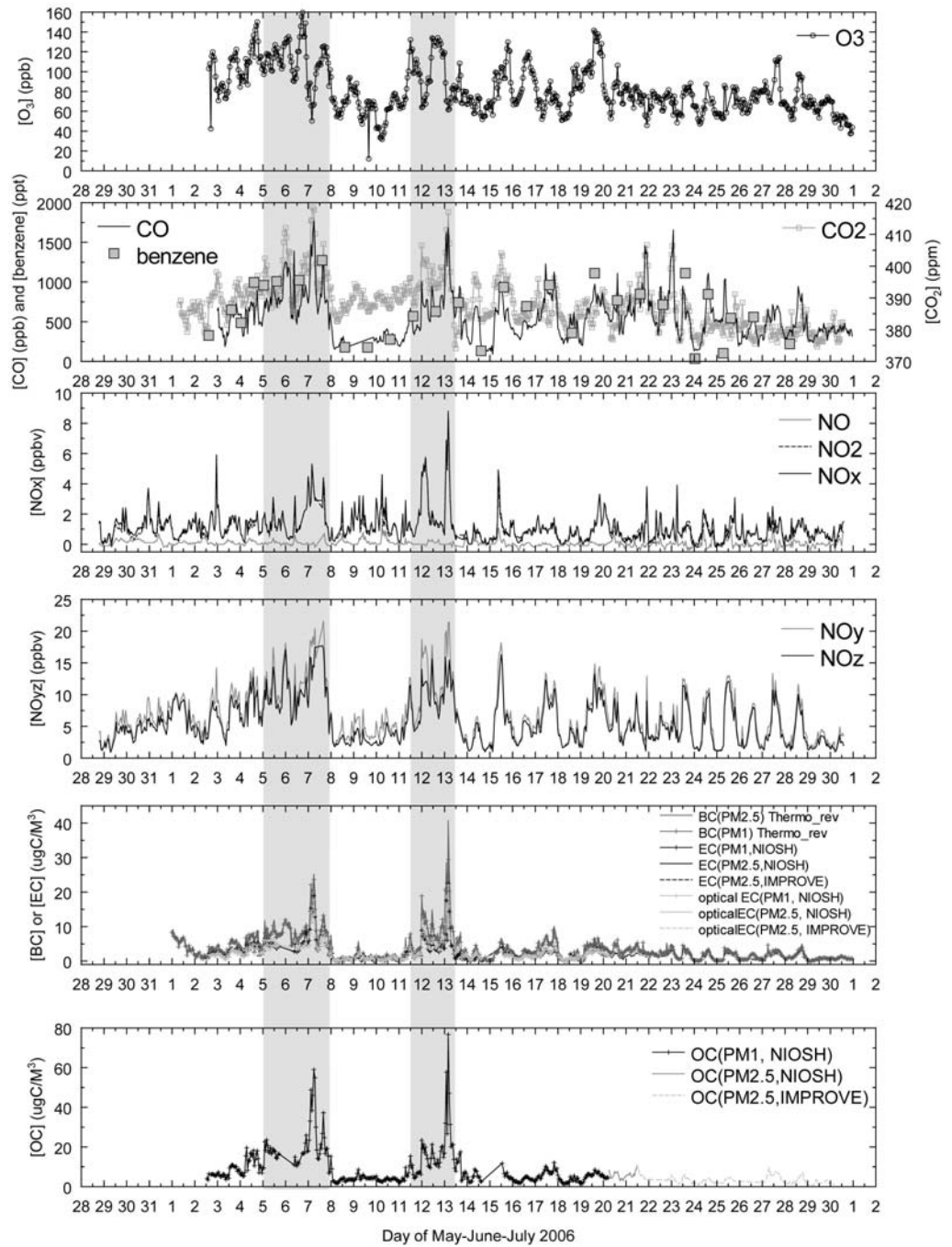


図10. 2006年6月泰山集中観測で得られたO<sub>3</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, benzene, NO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub>, NO<sub>z</sub>, BC, OCの時系列データ。灰色の期間に高濃度イベントが見られた。

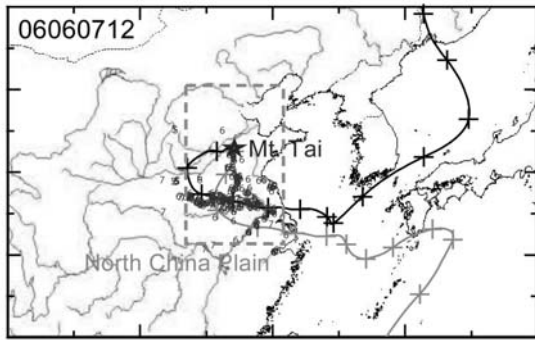


図 11. AVHRR によって観測された 6/3-7 のホットスポット (小さい数字で観測日を表示) と 6/7, 12:00UTC における泰山からの後方流跡線 (出発高度 1500m: 黒、750m: 灰色)。+は、12 時間間隔を示す。

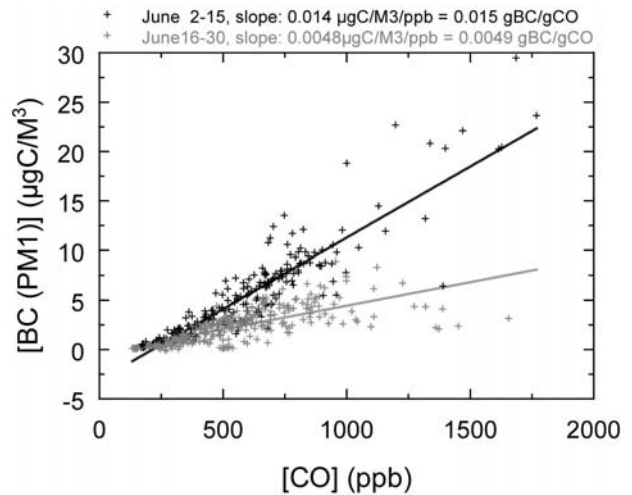


図12. 泰山にて観測された $\Delta BC/\Delta CO$ 比。観測の前半 (6/15まで) と後半(6/16以降)で明瞭に比の値が異なる。BCはMAAPによって測定された値。

考えられた。

Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM<sup>5)</sup>) を化学反応メカニズムに採用した光化学ボックスモデルにおいて、観測されたオゾンおよび前駆気体濃度 ( $H_2O$ ,  $CO$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ , 炭化水素,  $HCHO$ ,  $CH_3CHO$ )、J値、気圧、温湿度を入力値に用い、 $OH/HO_2/RO_2$ ラジカル濃度を求めた上で、下式に従って、その場での光化学的正味オゾン生成速度を算出した(図13) :

$$F-D(O_3) = \{k[HO_2] + \sum k_i [RO_2]_i \phi_i\} [NO] - k'[O^1D][H_2O] - k''[OH][O_3] - k'''[HO_2][O_3] - \sum k_j [olefin]_j [O_3] \quad (1)$$

平均的には、日中(09:00-15:00平均)にオゾン生成速度が $7ppbv h^{-1}$ の極大に達し、一日積分値として、約 $61ppbv$ のオゾンがその場で光化学的に生成することが示された。泰山で測定された2006年6月のオゾン濃度の平均日変化では、午前から午後にかけて $23ppbv$ のオゾン濃度の増加が見られたが、接地境界層の高さが上昇し山頂の観測所にも汚染気塊が到達する効果に加え、その場での光化学的オゾン生成が濃度上昇に大きく寄与している可能性が指摘された。また、 $NO_x$ 濃度、炭化水素濃度を仮想的に変動させたモデルランの結果からも  $F-D(O_3)$  値を算出し、元の濃度を用いたベースランの結果と比較したところ、ほぼ全ての期間において  $F-D(O_3)$  は  $NO_x$  濃度に対して感度が高く、 $NO_x$ -limitedの状況下

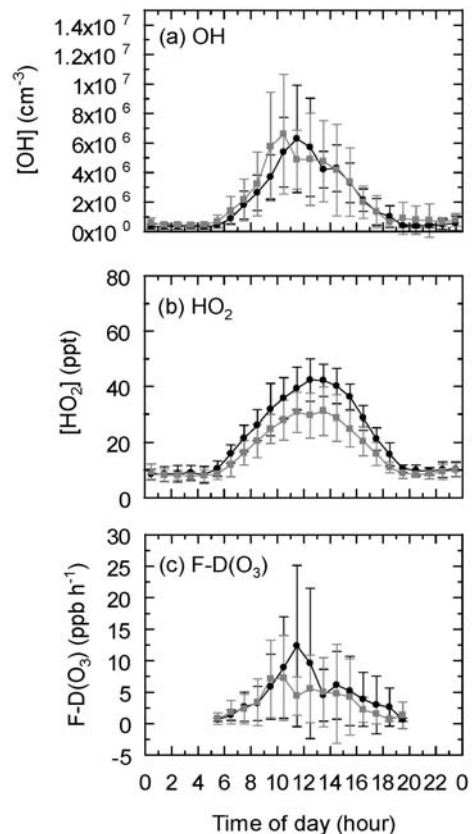


図13. ボックスモデル計算によって得られた(a)OH, (b)HO<sub>2</sub>濃度, (c) F-D(O<sub>3</sub>)の平均日変化。黒: オゾン濃度が100ppbを超える日、灰色: 100ppbに達しない日。

でオゾン生成が起こっていることがわかった。中国華北平原では、近い将来、NO<sub>x</sub>排出量の増加が見込まれており<sup>4)</sup>、オゾン汚染がより深刻化する可能性が指摘された。

観測された各化学種濃度は、三種の異なる領域化学輸送モデル(RAMS/CMAQ, NAQPMS, WRF-Chem)と比較された(サブテーマ3, 4と共同)。農業廃棄物の野外燃焼からのガス・エアロゾル排出を考慮しないモデルでは、観測前半に見られた高濃度CO、BCを大きく過小評価したことから、観測の前半については、農業廃棄物の野外燃焼が大気汚染成分の発生源として重要であることが指摘された。一方、CO濃度については、観測の後半についても過小評価が目立ち、エネルギー消費に由来するCO排出量についても、過小評価している可能性が指摘された。

### 1) 泰山集中観測におけるBC/OC測定

3. 研究方法 (3) 1) で述べたように、連続する30分毎にMAAP測定装置によって得られたPM<sub>1</sub>, PM<sub>2.5</sub>のブラックカーボン濃度の比較では、高い相関係数(R<sup>2</sup>=0.91)が得られ、回帰直線の傾きから92%のブラックカーボンがサブミクロン粒子に含まれていることがわかった。ECOC計では、大気エアロゾルをフィルターに捕集するサンプリング期間にもレーザーのフィルター透過強度がモニターされ、その減衰を元に光学的なブラックカーボン濃度が報告される(Opt-EC)。このOpt-ECを基準に、2つの異なる昇温プログラム

(NIOSH, IMPROVE)に基づく加熱分離・光学補正法によるEC濃度を比較したところ、IMPROVE法によるEC濃度はNIOSHより31%高いと結論された。PSAP装置において、加熱された導管を通過させる場合の濃度読み値は、常温の導管の場合と比べ、30%小さかった。このことから、加熱されない場合には、BC粒子をOC、硫酸塩エアロゾルなど

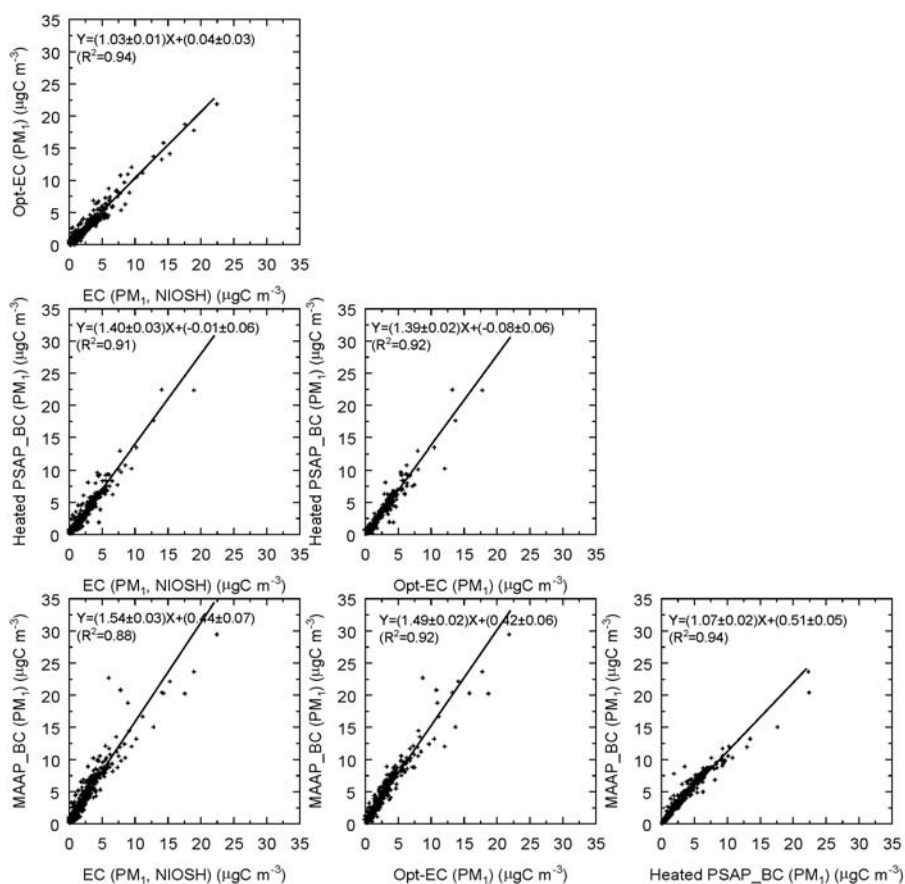


図14. Period 1におけるEC (NIOSH), opt-EC, 加熱PSAP\_BC, 及びMAAP\_BCの間の相関と回帰直線。

が被覆したままであるために、レンズ効果によって実効の吸収断面積が約30%増した状態にあることが推測された。Aethalometerの値はMAAPの値の88%であり、良好な一致を示した。MAAP、PSAP（加熱型）、ECOC計によるopt-EC、ECについては、PM<sub>1</sub>のサイズカットサイクロンを用いた6/20 4:00CSTまでの期間(Period 1)と、PM<sub>2.5</sub>に変更した6/20 5:00以降(Period 2)のデータに分けて相関・直線回帰の解析を行った。図14は、Period 1における相関図を示す。回帰直線の切片は測定の不確かさに対して有意な値ではなく、相関係数の平方(R<sup>2</sup>)は0.88以上であった。回帰直線の傾きは1.03-1.54の範囲であり、EC (PM<sub>1</sub>, NIOSH) ~ opt-EC (PM<sub>1</sub>) < heated PSAP\_BC (PM<sub>1</sub>) ~ MAAP\_BC (PM<sub>1</sub>)の大小関係が見られた。PM<sub>2.5</sub>の測定を行ったPeriod 2における比較では、回帰直線の傾きは、opt-ECとMAAPの組み合わせの場合を除き、1.07 - 1.46の範囲であった。熱分離・光学補正法による値に対するMAAPによる光学測定法による値の比は、NIOSHの温度上昇プログラムを用いていたPeriod 1は1.54であったが、IMPROVEを用いたPeriod 2は1.45であり、IMPROVE

法のほうがMAAPによる値に対し、よりよい一致を示した。

中国におけるBC排出量見積りの不確かさは、最大値/最小値の比で3.9倍<sup>6)</sup>、34倍<sup>7)</sup>と言われており、本研究で不確かさ1.5の範囲で測定されたBC濃度は、モデルシミュレーションによる値との比較を通じて排出量の不確かさを減らすのに十分に役に立つデータであることがわかった。

上記のように、光学的な測定法(MAAP、加熱型PSAP)による濃度は、熱分離・光学補正法によるEC濃度と比較して大きい値を報告する傾向が見られたが、その原因について詳細な解析を行った。その結果、ECOC計から熱分離・光学補正測定によって報告されるOC/EC濃度比が高いときに、この傾向が顕著であることがわかった。このことから、1)OCが相対的に高濃度で存在するときに、レンズ効果等によって吸収係数が増し、光学的な測定法(MAAP、加熱型

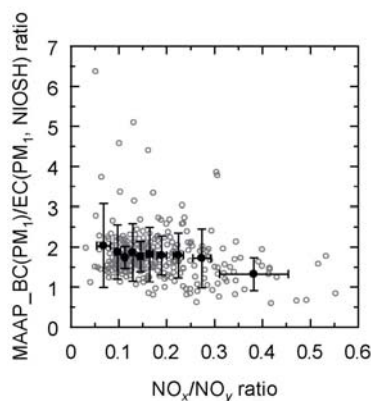


図15. (MAAPによるBC)/(熱分離・光学補正法によるEC)比とNO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub>比の関係。

PSAP)で濃度が過大となる可能性、または、2)OCが相対的に高濃度で存在するときに、OCの炭化などが顕著に起こるためか、ECOC計においてレーザー透過率の回復によって決定されるOCとECのスプリット時間が遅くなる傾向にあるために、熱分離・光学補正測定によるECを過小評価している可能性が示唆された。ECOC計におけるサーモグラムでは、高温(>400°C)でしか揮発しない有機エアロゾル成分が多いときに、BCが有意にECより高い傾向も見られ、加熱型PSAPでも除去できない有機エアロゾルが存在し、吸収測定を過大評価していた可能性が指摘された。このほか、(MAAPによるBC)/(熱分離・光学補正法によるEC)比が大きな値となるのは、大気中酸化によるagingのよい指標と考えられるNO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub>比が低いとき(agingが進んだとき)に限られることがわかった(図15)。このことは、agingに伴いブラックカーボン粒子と他の透明なOCや硫酸塩等の粒子との内部混合が進み、これらの成分によるレンズ効果が大きくなったために、MAAPで吸収を過大評価した可能性(すなわち上記の1))が高いことを示唆している。

## 2) 泰山集中観測におけるVOC測定と相互比較

大気中で短寿命の物質については非常に低濃度または検出下限以下であったことから、泰山で観測された大気はごく近傍の発生源の影響は受けておらず、地域代表性が高いと考えられた。アルカンなどのほとんどの人為起源VOCは一酸化炭素と同様な変動をしており（図16）、同様な発生源を持っていることが分かった。一方、その場での光化学反応やエアロゾル生成に寄与があると考えられる植物起源の物質についてはイソプレンが昼間に400pptv程度観測され、山頂にしてはやや高めの数値であった。日中と夜間の値を比較すると、人為起源VOCについては昼間に高く夜間に低い傾向を示した。夜間には山頂が境界層より上に位置するようになり、低地からの大気汚染物質の影響が少なくなるためと考えられる。また、夜間の濃度レベルは、日本の離島など、近傍の汚染の影響が少ない地点で測定される6月の典型的な値と同様であり、東アジア地域でのバックグラウンド濃度が測定されたものと考えられた。泰山での結果では日本での測定に比較して

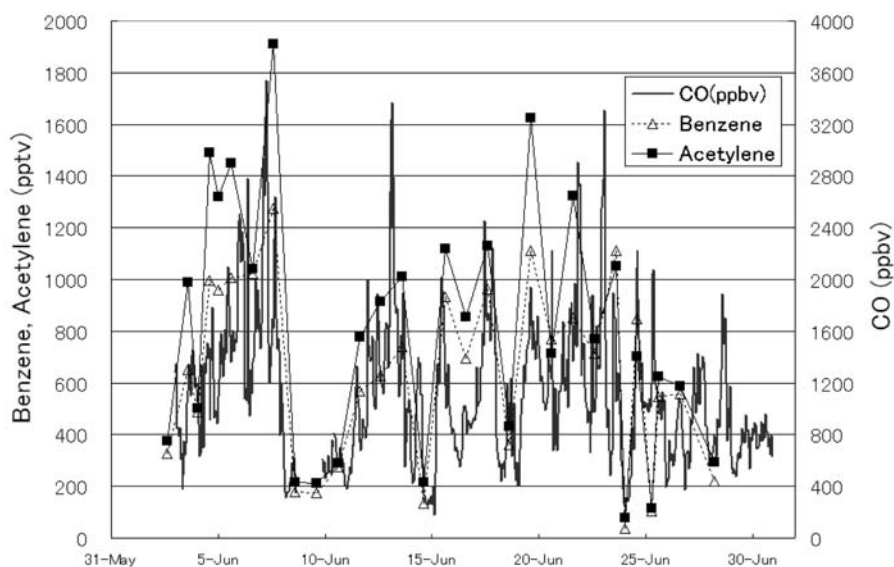


図16. 泰山集中観測における一酸化炭素とベンゼン、アセチレン濃度の比較。

ベンゼン、塩化メチルの測定値が高い特徴が見られた。ベンゼンと塩化メチルが高くなる発生源としてバイオマス燃焼が考えられる。今回観測されたエタン/ベンゼン比2.03は、バイオマス燃焼に関する報告値2.96<sup>8)</sup>と

近かった。塩化メチルはバイオマス燃焼の重要なトレーサーと考えられており、農業廃棄物の野外燃焼を裏付けるデータが得られた。

### 3) 泰山集中観測におけるNO、NO<sub>x</sub>、NO<sub>y</sub>および揮発性有機化合物の測定

泰山で観測された窒素酸化物ならびに揮発性有機化合物は、6/13、19-21、25に高濃度のピークを示した。観測期間中の総反応性窒素酸化物(NO<sub>y</sub>)濃度は、最高濃度で20 ppbv 近くにも達したが、一方、二酸化窒素濃度は最高で約5 ppbv と、比較的low濃度であり、観測された空気塊はフレッシュな汚染の影響を受けたものではなく十分に酸化が進んだ空気塊であることが明らかになった(図10)。揮発性有機化合物は、不飽和炭化水素、芳香族化合物、アルコール、アルデヒド、ケトン、ニトリル化合物、ハロゲン化炭化水素、有機硝酸類に渡る多成分が同時にモニターされたが、トータルの濃度で50 ppbvを超える日も頻繁にあり、その濃度レベルの高さが特徴的であった。中でも、アルコールやアルデヒド、ケトンといった含酸素有機化合物の濃度レベルが概して高く、窒素酸化物の分別率に見られたように、酸化が進んでいることを示唆するデータが得られた。ガスクロマトグラフ法との比較の結果、イソプレン以外については良好な一致が見られ、本装置の信頼性が確認された。イソプレンについての不一致は、本装置におけるフラグメンテーション(イオン化の際に、分解されてしまうこと)のためと推測された。

本研究では、PTR-MSによるホルムアルデヒド濃度の正確な決定を試みた。従来、PTR-MSの原理的にはホルムアルデヒドも検出することができるが、問題点として検出感度が水蒸気に依存すること、また、特に汚染大気中での観測では他の化学種の干渉を受けている可能性が指摘されており、これまでそれらの検討は殆どされていなかった。ここでは、室内実験において水蒸気量依存性を含めたホルムアルデヒドの検出感度の決定と、考えられる干渉についての考察を行い、実大気での観測を行い、独立した測定手法のMAX-DOAS法の結果との比較を行った。

乾燥条件でのホルムアルデヒド(HCHO)のシグナル強度を、HCHO/N<sub>2</sub>(1ppmv)標準ガスを直接導入した場合とダイナミック希釈法(ガスを流しながら希釈する方法)で希釈して導入して測定したものを図17に示す。実験は3つのドリフト電場条件で行った。2つの導入法で感度(傾き)が異なることがわかる。これはダイナミック希釈法ではホルム

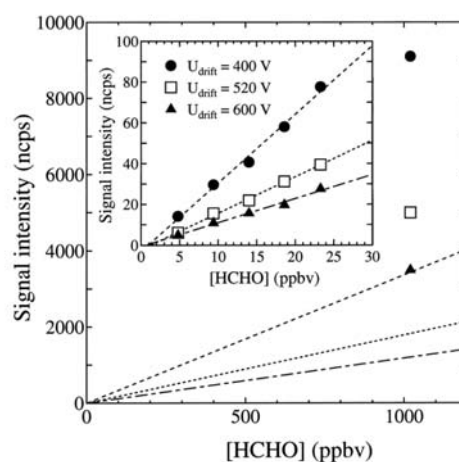


図17. 標準ガスの直接導入と希釈導入(点線および内挿グラフ)によって得られたホルムアルデヒド信号強度の直線応答性。

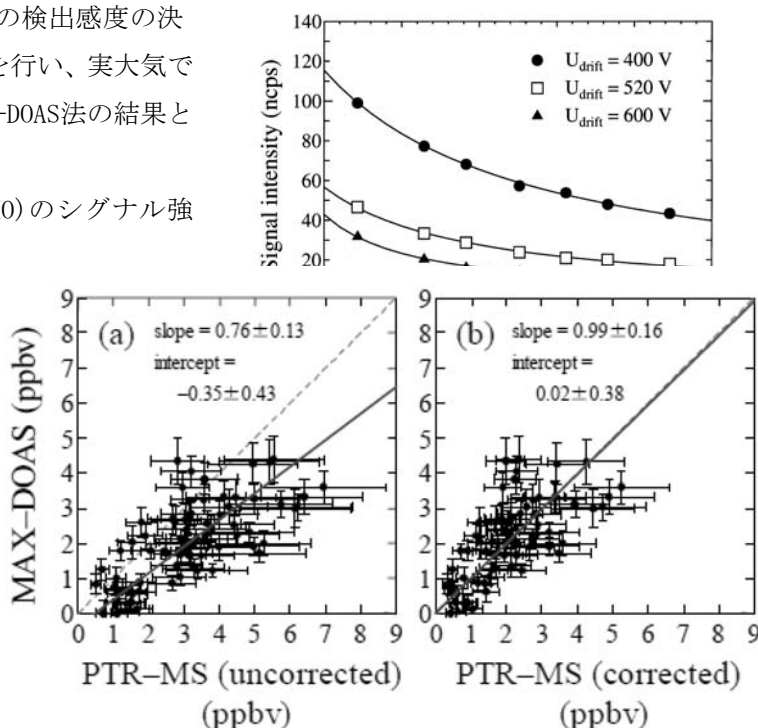


図19. 泰山における、PTR-MS法とMAX-DOAS法によるホルムアルデヒド濃度の比較。(a)PTR-MSでの干渉成分補正前、(b)補正後。

実線は同意直線を示す。破線は1:1の対応を示す。

アルデヒドの消失が起こっているためと考えられ、直接導入法で得られる感度がホルムアルデヒドの検出感度と考えた。次に、HCHOシグナル強度の水蒸気量依存を図18に示す。3つのドリフト電場条件で水蒸気量の増加に伴い、検出感度の低下が見られている。これは陽子移動反応の逆反応の影響と考えられ、報告されている正・逆反応の反応速度定数から予想される水蒸気量依存性でほぼ説明できた。

他の化学種の干渉に関し、既に干渉が示唆されていたメチルヒドロペルオキシドと本研究で新たに干渉を見出したメタノール、エタノールについて、干渉の寄与の決定を行い、ドリフト電場400Vの条件で、それぞれ親イオンシグナル( $[M+H]^+$ )の92、0.73、4.5%の強度のシグナルをm/z 31(HCHOの $[M+H]^+$ と同じ質量数)に生じることを見出した。

2006年6月の中国・泰山山頂で行われた集中観測において、陽子移動反応イオン化-質量分析計を用いて質量スペクトルを連続的に測定し、ホルムアルデヒド検出感度の水蒸気量依存性、他の化学種の干渉の補正を行ってホルムアルデヒド濃度([HCHO]PTR-MS)を決定し、別の独立な分光的な測定手法であるMAX-DOAS法(サブテーマ2)で得られたホルムアルデヒド濃度([HCHO]MAX-DOAS)との相互比較を行った結果、両者に非常に良い一致を見た(図19)。

$$[HCHO]_{MAX-DOAS} = (0.99 \pm 0.16) [HCHO]_{PTR-MS} + (0.02 \pm 0.38)$$

#### (4) 2007年9-10月蟒山(中国・北京市郊外)集中観測

##### 1) ブラックカーボン濃度の相互比較

観測期間中のMAAP( $PM_{2.5}$ )、PSAP(加熱インレット使用、 $PM_{2.5}$ )、EC( $PM_{2.5}$ 、NIOSH、IMPROVE)測定結果を同時に時系列プロットした(図20)。まず、全体的な濃度変動パターンについては、9/18-19、9/27-28に低濃度となり、それ以外の期間にはより強い汚染が観測された。9/17には激しい雷雨の影響があった。また、後方流跡線解析によって、9/18-19、9/27-28には、北京やその他の華北平原に位置する大都市(蟒山より南方)を経由せずに、北方の汚染されていない大気が比較的速いスピードで流入したが、その他の日は北京などの南方を経由し人間活動の影響をより強く受けたため、低濃度と高濃度が交互に現れたものと解釈された。

各測定装置によるブラックカーボン重量濃度の大小関係は、泰山で前年に得られたものと近く、 $MAAP\_BC > heated\ PSAP\_BC \gg EC(IMPROVE) > EC(NIOSH)$ であったが、測定法による差は泰山の場合よりむしろ大きく、MAAP\_BCとEC(NIOSH)では、回帰直線の傾きから平均で2.7倍の違いがあ

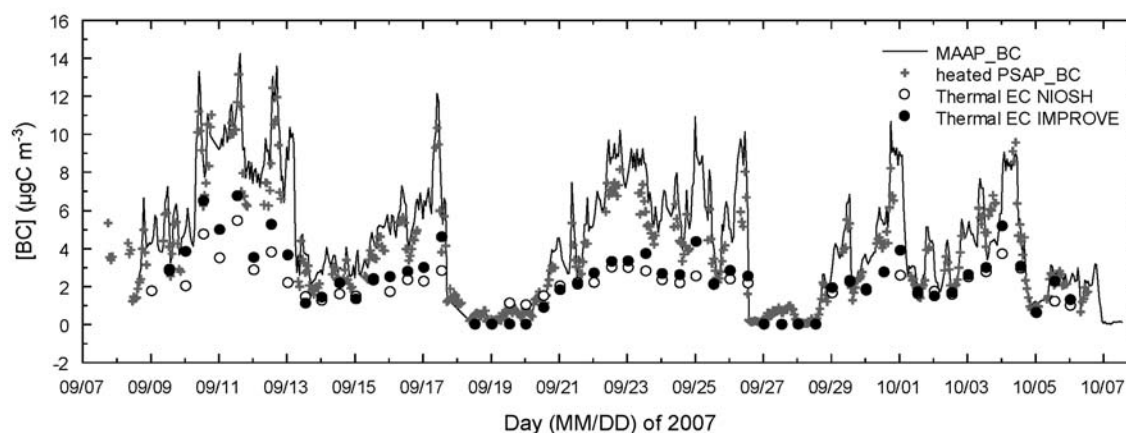


図20. 2007年秋季蟒山集中観測でのブラックカーボン濃度変化。

ることがわかった。温度上昇プログラムをIMPROVEに変更した場合は、MAAPとの一致度は高まったが、なお1.8倍の差があった。PSAPで加熱された導管を用いた場合の読み値は、非加熱の場合と比較して65%となり、泰山の場合(70%)より低かったことも考え合わせると、有機・硫酸エアロゾルなどがブラックカーボン粒子と内部混合して引き起こすレンズ効果が、泰山よりも蟒山により顕著であるためではないかと考えられた。

MAAP\_BC/EC(IMPROVE)の濃度比は、図21のように、硫酸塩/EC(IMPROVE)比とよく正相関し、硫酸塩がECに対して相対的に豊富に存在するときに、MAAPが過大評価する傾向があったことも、この考え方と整合的である。ところが、泰山のPeriod 2における値を同じ図上にプロットしたところ、蟒山と同じ硫酸塩/EC(IMPROVE)比であっても、MAAP\_BC/EC(IMPROVE)比は蟒山のほうが高かった。硫酸塩の代わりにOC(IMPROVE)を用いて泰山と蟒山を比較した場合も同様の傾向があった。これらの結果から、レンズ効果の度合いは、どの地点に対しても単純に硫酸塩/EC(IMPROVE)比の一意の関数として表せるわけではなく、酸化の度合い、ブラックカーボン粒子のサイズや形態(フラクタル度合い)にも複雑に依存することが示唆された。

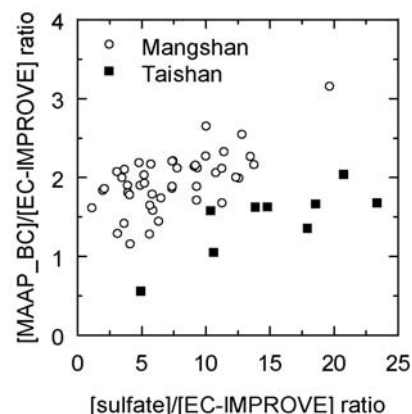


図21. MAAP\_BC/EC(IMPROVE)濃度比と硫酸塩/EC(IMPROVE)濃度比の関係。

## 2) エアロゾル化学成分測定と散乱・消散係数との対応関係

PM<sub>2.5</sub>の化学成分分析結果(POM (particulate organic matter = OC(IMPROVE) x1.6と仮定)、硫酸・硝酸・アンモニウムイオン、EC(IMPROVE)等の、フィルターサンプリング/化学分析の結果)を図22に積算型棒グラフで示す。平均的にはPOMと硫酸塩、硝酸塩、アンモニウムの順に濃度が高く、ブラックカーボン(ここではIMPROVE法によるECを用いている)等もあわせた場合、最大で150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ もの高濃度に達した。ブラックカーボンの場合と同様に、9/18-19、27-28は低濃度になる様子が見られた。折れ線グラフでは、9/21以降に測定を行ったエアロゾル質量分析計(AMS)による結果を示している。フィルター分析と比較して、非常に高い時間分解能で測定を行うことができた。有機物濃度は、フィルター分析の結果と近い値を示したが、硫酸・硝酸・アンモニウムイオン濃度はフィルターの場合より低かった。このことの一因として、AMSでは径が1 $\mu\text{m}$ 以上の粒子を測定できていないことが考えられた。AMSで測定された各成分について、期間中平均の粒径分布を図23に示す。小粒径における主成分は有機エアロゾルで、硫酸エアロゾルも近いサイ

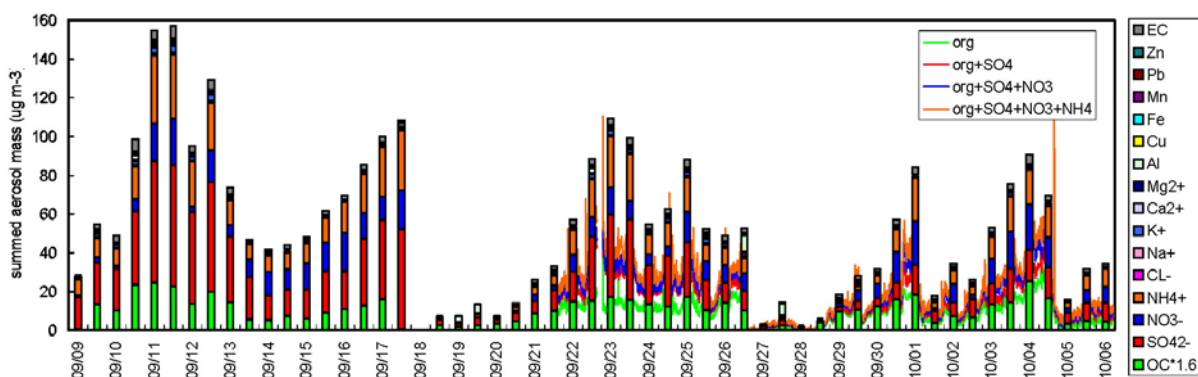


図22. PM<sub>2.5</sub>の化学成分分析結果(積算型棒グラフ)と、AMSによる高時間分解能測定結果(積算型折れ線グラフ)。



ズ分布を示すが、硝酸エアロゾルはより大粒径にピークがある。アンモニウムは、硫酸と硝酸エアロゾルを足し合わせたようなサイズ分布を示した。

図24には、積分型ネフェロメータによって測定されたエアロゾルの散乱係数の時系列変化を実線で示す。期間中最大値は $1.35 \times 10^{-3} \text{ m}^{-1}$ 、平均値は $3.0 \times 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ （装置湿度における値、530nm）であった。これとは独立に、フィルター分析による化学成分測定を元に、下式にしたがって、各成分の経験的な質量散乱断面積と測定された湿度における吸湿成長を考慮して、エアロゾルの散乱係数を経験的に推定した値を白丸で示す：

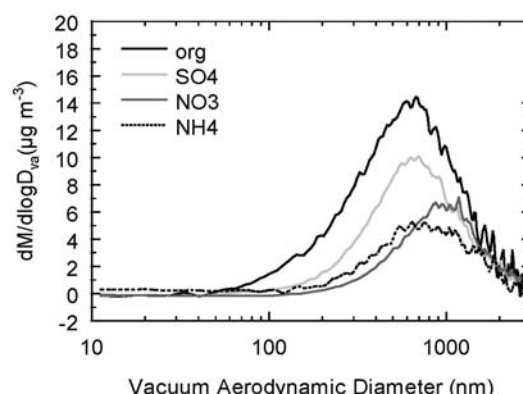


図23. AMSによって測定された各化学成分のサイズ分布（集中観測期間中の平均）。

$$b\_scatter = 3f(RH) ([\text{NH}_4]_2\text{SO}_4 + [\text{NH}_4\text{NO}_3]) + 4[\text{POM}] + [\text{soil}] + 1.37f(RH) [\text{seasalt}] \quad (2)$$

$$f(RH) = -0.24812 + 1.01865/(100-RH) + 0.01074/(100-RH)^2 \quad (3)$$

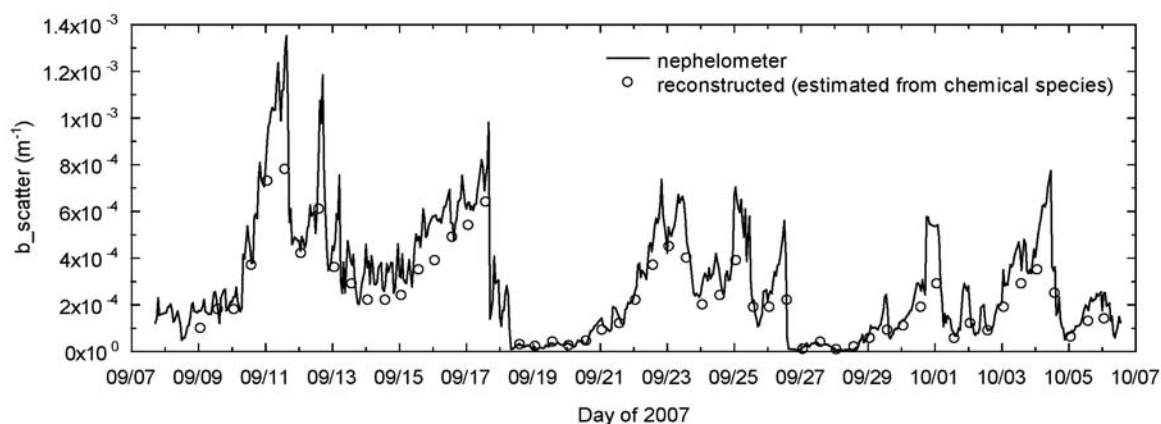


図24. 積分型ネフェロメータによって測定されたエアロゾル散乱係数（実線）と、化学成分から推定された散乱係数（○）の比較。

2つの値は非常によく相関し ( $R^2=0.98$ )、ネフェロメータによる値の方が平均で29%高かった。推定された値の内訳から、硫酸アンモニウム、有機物、硝酸アンモニウムが主に散乱に寄与する成分であることが明らかとなった。さらに、MAX-DOAS(サブテーマ2)によって測定された、高度0-1km平均のエアロゾル消散係数 ( $b\_ext$ ) 値も、 $b\_scatter$  にブラックカーボンによる吸収項 (質量吸収係数は  $10 \text{ m}^2/\text{g}$  と仮定) を足し合わせて推定された値と比較したところ、相関はやや強いものの ( $R^2=0.71$ )、平均で43%MAX-DOASによる値のほうが高かった。MAX-DOASのデータは、観測サイト

より南方(北京市側)を視野とし大気中に開放された光路に対して得られたものであることから、2.5ミクロン以上の粗大粒子による散乱が効いている可能性、北京市側のより強く汚染された大気の影響を受けている可能性などが考えられた。

今後さらにこのような化学成分と光学パラメーターの整合性に関する解析を継続し、とくに、OPCやAMSによるエアロゾル数密度・各化学成分重量濃度のサイズ分布に基づく詳細な解析を行う予定である。

### 3) 揮発性有機化合物の測定

蟒山でのVOC観測結果は、大まかにみると泰山よりも高濃度となる場合が多く、北京都市域からの影響を受けていることが分かる。しかし、汚染大気の影響を受けている場合だけでなく、あ

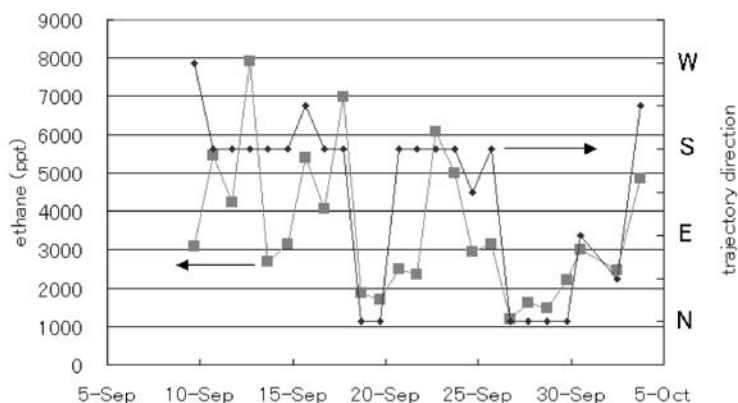


図25. 蟒山でのエタン濃度と空気塊の輸送方向との関係。

る程度清浄な大気となっている場合も見られた。そのため大気の輸送経路を調べてみると、北京からの場合は汚染大気だが、北方からの場合は汚染をあまりうけず清浄となる場合が多いことが分かった(図25)。

東京の都市大気と比較すると、発がん性物質として日本では排出の規制が進んでいるベンゼンの濃度が比較的高めであった。一方、トルエンなどの塗料・溶剤などとして放出されるVOCについては低めであった。また、泰山での観測と同様に、バイオマスバーニングのトレーサーとなる塩化メチルが東京などと比べて高濃度であり、人為起源汚染物質でもバイオマス燃焼起源の影響が大きいことが分かった。自動車などからの燃焼起源の指標となるアセチレンと塩化メチルの濃度をプロッ

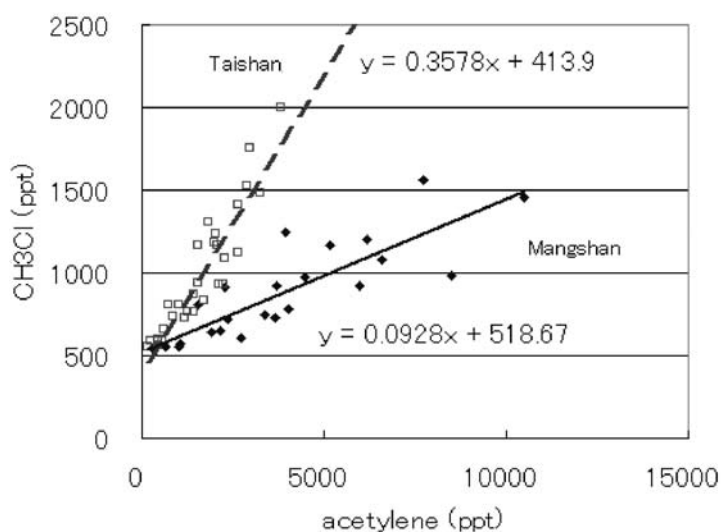


図26. 泰山と蟒山における塩化メチル/アセチレン比の比較。

トして排出比( $[\text{CH}_3\text{Cl}]/[\text{acetylene}]$ )を求めると、泰山の0.36に対し蟒山では0.09となり明らかに異なる値となった(図26)。これより泰山の方がよりバイオマスバーニングの影響を受けていると考えられる。また、アセチレンと塩化メチルに良い相関がみられることから、蟒山での観測結果は北京で放出された汚染物質の平均的な組成比を見ていると考えられ、北京全体で見たときにバイオマス燃料起源の影響がかなりあると考えられる。

#### (5) 中国中東部におけるブラックカーボンによる大気上端での放射強制力

本研究によって、初めて中国中東部におけるブラックカーボン濃度の詳細な比較・通年観測が行われた。ここでは、中国中東部におけるブラックカーボン濃度による放射強制力を簡単に議論したい。まず、泰山と黄山における通年平均ブラックカーボン濃度( $2.3, 1.0 \mu\text{gC m}^{-3}$ )を平均し、さらに、MAAPで得られた値であるため、1.64倍過大評価している(泰山での1.45倍、蟒山での1.82倍の平均)として補正すると、中国中東部におけるブラックカーボン年平均濃度 $1.0 \mu\text{gC m}^{-3}$ を得る。地上から高度1500mまで山頂で観測された濃度が一様分布していると仮定すると、カラム濃度は $1.5 \text{mgC m}^{-2}$ となる。成分Xによる大気上端での放射強制力は、 $\text{sensitivity} \times ([X]_{\text{現在}} - [X]_{\text{産業革命前}})$ と表されるが、産業革命前のブラックカーボンカラム濃度を $0.2 \text{mgC m}^{-2}$ と仮定し、sensitivityを $1.25 \text{ W mg}^{-1}$ と仮定<sup>9)</sup>すると、中国中東部におけるブラックカーボンによる大気上端での放射強制力は、 $1.63 \text{ W m}^{-2}$ と算出される。この値は $\text{CO}_2$ による大気上端での放射強制力(全球でほぼ一様)  $1.6 \sim 1.8 \text{ W m}^{-2}$ と同程度であることは注目に値する(表6)。ここで行ったブラックカーボンによる放射強制力の算出では、地表付近濃度を過小評価している可能性があること、内部混合による吸収増大効果(レンズ効果)を考慮していないsensitivityを用いていることを考慮すると、 $1.63 \text{ W m}^{-2}$ より大きい値である可能性も高い。一方で、ブラックカーボン粒子が、有機エアロゾルや硫酸エアロゾルと同様の高度分布を持っているとすれば、それらによって同時にもたらされる強い散乱効果によって、ブラックカーボンによる温暖化効果が定性的にはかなりの分打ち消されている可能性も高い。今後、本研究で推定された単一散乱アルベド値(速報値として泰山では0.88、蟒山では0.92)を元に、エアロゾル全体としての直接効果を見積もる研究に発展させる予定である。大気上端での上記の見積もりとは異なり、ブラックカーボンは大気(存在高度付近)を強く温め、地表を冷ましていると考えられる。エアロゾルの成分別高度分布観測等をもとに、地表～大気上端に高度別に与える影響を評価していく必要もあると思われる。いずれにしても、中国中東部はブラックカーボンやそれ以外のエアロゾル成分が非常に高濃度で存在する地域であり、全球ほぼ一様と考えられがちな大気上端放射強制力に対し、空間的に不均一なエアロゾルによる直接効果が地域規模で大きなアノマリーを与えている可能性が高く、地域～総

表6. 各種温室効果物質による、全球および中国中東部における大気上端での放射強制力の見積もり。

化学種	sensitivity	全球			中国中東部		
		濃度(現在)	濃度(産業革命前)	放射強制力( $\text{W m}^{-2}$ )	濃度(現在)	濃度(産業革命前)	放射強制力( $\text{W m}^{-2}$ )
$\text{CO}_2$	$0.01677 \text{ W m}^{-2} \text{ ppm}^{-1}$	379 ppm	280 ppm	1.66	390 ppm	280 ppm	1.84
$\text{CH}_4$	$0.00045 \text{ W m}^{-2} \text{ ppb}^{-1}$	1774 ppb	715 ppb	0.48	1900 ppb	715 ppb	0.54

観規模気象場への影響も大きいと考えられる。今後の発展的研究が必要である。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

BC、オゾンおよびその前駆体であるCOについて、これまで測定空白域であった中国内陸部および中央アジア地域において、信頼性の高い測定法を用いて、世界に先駆けて通年観測を行い、これらの地域での濃度時空間変動を明らかにし、大陸内、大陸間長距離輸送の実態を解析するために欠かせないデータを取得した。とくにオゾンの季節変化では、(1)人為的な発生源の影響が大きい中国型、(2)リモート北半球バックグラウンドのシベリア型、及び(3)中央アジアのバックグラウンド型の3グループに分けられることがわかった。泰山におけるオゾン濃度は、中国中東部発生源領域におけるエアマスの滞留時間と正相関し、1日に38-50ppbのオゾンが光化学的に生成していることが示された。また、春季に沖縄辺戸岬にて観測されたオゾン濃度へ中国の高濃度オゾンが強く影響していることがわかった。中国、キルギスにおけるブラックカーボンの濃度レベル、季節変化を初めて明らかにした。NO<sub>2</sub>、ホルムアルデヒドの衛星観測により中国中東部一帯の広域汚染の実態が明らかとなり、全世界的に注目され始めた中で、H19年度に我々が行った泰山集中観測は、中国中東部のほぼ中心において実施された世界初のオゾン前駆体・エアロゾル成分の総合集中観測であり、6月には農業廃棄物の野外燃焼が汚染成分の重要な発生源となっていることを現場観測から初めて明らかにした。また、モデルとの比較から、CO、BCなどの化学成分についてエミッションインベントリが過小評価となっていることを明らかにした。今後、とくに農業廃棄物野外燃焼からの排出量推定については、廃棄物全量に対する野外燃焼量の割合を適切に見積った上で、衛星センサーによって測定されたhotspotデータに基づいて算出する必要があることが指摘された。H20年度に行った蟒山での集中観測では、ブラックカーボンの測定法の比較を再度実施した。泰山での比較とあわせて解析したところ、大気中でのエージングとともに、硫酸エアロゾル、有機エアロゾルがブラックカーボン粒子を被覆するようになり、レンズ効果によって吸収度が増加し、光学的測定法による値が過大となる可能性が示唆された。蟒山では、硫酸アンモニウムや有機物、硝酸アンモニウムの割合が高く、エアロゾルによる散乱を支配していることがわかった。泰山・蟒山両集中観測において、揮発性有機化合物の測定を行い、濃度比などの特徴を明らかにした。中国中東部におけるブラックカーボンによる大気上端での放射強制力は、二酸化炭素による値とほぼ同レベルであることが初めて明らかとなった。

### (2) 地球環境政策への貢献

中国内陸部におけるオゾン汚染発生メカニズムの解明を通じ、農業廃棄物の野外燃焼の禁止、NO<sub>x</sub>排出量の削減が汚染の軽減には欠かせないことを科学的根拠をもって提言することができ、東アジア地域全体の環境改善に主導的に貢献できる。これまでの研究では、「中国」＝「経済発展に伴うエネルギー消費の増大」の固定的な見方で語られるばかりであったが、10億人超を養う

食糧大生産地帯である華北平原での農業廃棄物燃焼にも目を向ける必要がある。オゾン汚染は中国上空だけにとどまらず、日本を含む近隣国にも輸送されるため、東アジア地域全体でもっとも深刻な汚染地域に着目し、その軽減を地域全体の目標とすることが重要である。とりわけ近年5-6月には日本の九州地区等で広範囲に光化学オキシダント注意報が発令されるようになり、中国におけるエネルギー消費量の増加・農業廃棄物燃焼との因果関係を明らかにする必要がある。我々の中国における通年・集中観測から、BC、CO、炭化水素の排出量がこれまでの報告値より高いことが明らかとなったことも考え合わせると、国際協力体制のもと、大気汚染・動植物影響・地域気候変化のそれぞれの観点で、東アジア地域の環境改善戦略を早い時期に構築する必要がある。中国でも、研究者レベルでは、我々と同様の問題意識を共有していると実感している。

キルギスにて得られたデータを有効に活用することで、欧州から中央アジアを通して中国へ汚染物質が流入する過程についても検討することにより、単に中国の汚染を強調するだけでなく、現在関心の高まりつつある北半球汚染対策の議論の中に中国を取り込むことを狙える。

中国中東部において、削減戦略が練られていないブラックカーボンについて、大気上端での放射強制力は、二酸化炭素による値とほぼ同じであることが明らかとなった。中国でのブラックカーボン削減戦略を早期に構築することも喫緊の課題である。

## 6. 引用文献

- (1) Suntharalingam, P. et al. (2004), *J. Geophys. Res.*, 109, D18S18, doi:10.1029/2003JD004362.
- (2) Takegawa, N. et al. (2004), *J. Geophys. Res.*, 109, D23S04, doi:10.1029/2004JD004866.
- (3) Andreae, M. O. and P. Merlet (2001), *Global Biogeochem. Cycles*, 15 (4), 955-966.
- (4) REAS, <http://www.jamstec.go.jp/frgcr/research/p3/emission.htm>
- (5) Stockwell, W. R. et al. (1997), *J. Geophys. Res.*, 102(D22), 25,847-25,880.
- (6) Bond, T. C. et al. (2004), *J. Geophys. Res.*, 109, D14203, doi:10.1029/2003JD003697.
- (7) Streets, D. G. et al. (2003), *J. Geophys. Res.*, 108(D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093.
- (8) Carmichael, G. R. et al. (2003), *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2002JD003116.
- (9) IPCC: Climate Change 2007 – The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (2007), Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.

## 7. 国際共同研究等の状況

本サブテーマはUNEP（国連環境計画）によって主導されている ABC (Atmospheric Brown Clouds) - Asia 国際プロジェクトに密接に関係している。海洋研究開発機構では、中華人民共和国、ロシア連邦、及びキルギス共和国におけるオゾン・一酸化炭素・BC観測に関し、中国科学院大気物理研究所 (IAP)、ロシア科学アカデミー陸水学研究所、及びKyrgyz-Russian Slavic大学それぞれと共同研究実施取り決めを締結し、共同研究を行う体制を整えている。泰山集中観測では、海洋研究開発機構・金谷研究員と中国大気物理研究所のZifa Wang教授がcampaign co-organizer

を務め、中国大気物理研究所、山東大学、復旦大学、山東気象局の研究者とともに共同観測を実施し、測定データの共有を実現させた。その中で、中国大気物理研究所のYuesi Wang教授と共同でVOC相互比較を実施したほか、オゾン、NO<sub>x</sub>、BCの測定の比較を山東大学・Tao Wang教授のグループと共同で行った。比較以外の面においても、観測を通じて、技術移転、サポートを行った。嶗山集中観測でも海洋研究開発機構・金谷研究員と中国大気物理研究所のZifa Wang教授がcampaign co-organizerを務め、データの共有を行う予定である。

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文 (査読あり)>

- 1) Tanimoto, H., H. Mukai, Y. Sawa, H. Matsueda, S. Yonemura, T. Wang, S. Poon, A. Wong, G. Lee, J.Y. Jung, K.R. Kim, M.H. Lee, N.H. Lin, J.L. Wang, C.F. Ou-Yang, C.F. Wu, H. Akimoto, P. Pochanart, K. Tsuboi, H. Doi, C. Zellweger, J. Klausen, Direct assessment of international consistency of standards for ground-level ozone: Strategy and implementation toward metrological traceability network in Asia, *J. Environ. Monit.*, doi:10.1039/b701230f, 9, 1183-1193, 2007.
- 2) Inomata, S., H. Tanimoto, S. Kameyama, U. Tsunogai, H. Irie, Y. Kanaya, and Z. Wang, Technical Note: Determination of formaldehyde mixing ratios in polluted air with PTR-MS: Laboratory experiments and field measurements, *Atmos. Chem. Phys.* 8, 273-284, 2008.
- 3) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, H. Tanimoto, Z. Wang, J.F. Gleason, and E.J. Bucsela, Validation of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 8243-8271, 2008.
- 4) Taketani, F., Y. Kanaya, and H. Akimoto, Kinetics of Heterogeneous Reactions of HO<sub>2</sub> Radical at Ambient Concentration Levels with (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> and NaCl Aerosol Particles, *J. Phys. Chem. A.*, 112/11 2370-2377, 2008.

<その他誌上発表 (査読なし)>

なし

### (2) 口頭発表 (学会)

- 1) Pochanart, P., H. Akimoto: ACCENT/WMO expert workshop on The integration of air chemistry observations with models utilizing chemical data assimilation (2006), "Spacio-temporal variability of ozone in East Asia" (invited)
- 2) Pochanart, P., H. Akimoto, J. Li, and Z. Wang: AGU Fall Meeting (2005), "Large-scale

atmospheric pollution over eastern China: Results from ozone and carbon monoxide observation”

- 3) Pochanart, P.: The 1st Symposium on Asian Ozone Pollution in Eurasian Perspective -The Asia Pacific Network Project Workshop/Seminar (2005), “Ozone database from Japan and some other countries in East Asia: How the data could be efficiently utilize”
- 4) Pochanart, P., H. Akimoto, J. Li, and Z. Wang: The 1st International Seminar on High-Mountain Air-Quality Monitoring Technology and Simulation (2005), “Regional ozone pollution over eastern China: Investigation from observation at Taishan, Huashan, and Huangshan”
- 5) Pochanart, P., K. Yamaji, H. Akimoto, J. Li, Z. Wang and I. Uno: 3rd International Symposium on Air Quality Management at Urban, Regional and Global Scales and jointly organized 14th Regional IUAPPA Conference (2005), “East Asian ozone pollution: evaluation from observation and regional model in China”
- 6) ホチャート ハクホソ、秋元 肇、山地 一代、王 自癸、鶴野 伊津志: 第46回大気環境学会 (2005), “中国東部におけるオゾン汚染：モデルシミュレーションおよび観測”
- 7) Pochanart, P., H. Akimoto, O. Wild, K. Sudo and Z. Wang: The 16th Regional Conference of Clean Air and Environment in Asian Pacific Area (2005), “Characteristics of regional ozone pollution in eastern China”
- 8) Kanaya, Y., H. Akimoto, P. Pochanart, L. Yurganov, H. Irie, S. Kato, H. Tanimoto, Y. Komazaki, The 1st International Seminar on High-Mountain Air-Quality Monitoring Technology and Simulation (2005), “Intensive field campaign at Taishan in June 2006: Current plan”
- 9) Komazaki, Y., Y. Kondo, Y. Miyazaki, N. Takegawa, S. Deguchi, N. Moteki, T. Miyakawa and D. Kodama: European Aerosol Conference 2005 (2005), “An improved technique to measure black carbon using filter-based light absorption with heated inlet”
- 10) 駒崎雄一、出口清児、児玉大輔、茂木信宏、宮川拓真、近藤 豊、竹川暢之、宮崎雄三: 第11回大気化学討論会 (2005)、 “加熱インレットと光吸収法を用いた大気中のブラックカーボンの測定”
- 11) 駒崎雄一、近藤豊、出口清児、児玉大輔、野上道守、竹川暢之: 日本エアロゾル学会、第22回エアロゾル科学、技術研究討論会、(2005)、 “加熱インレットと光吸収法を用いた大気中のブラックカーボンの測定技術”
- 12) 駒崎雄一、近藤豊、出口清児、児玉大輔、茂木信宏、宮川拓真、竹川暢之、宮崎雄三: 第46回大気環境学会年会 (2005)、 “加熱インレットと光吸収法を用いた大気中のブラックカーボンの測定”
- 13) Pochanart, P.: An ACCENT/WMO Expert Workshop in support of IGACO, Geneva, Switzerland (2006), “Spacio-Temporal variability of ozone in East Asia, Chemical Data Assimilation for the Observation of the Earth's Atmosphere”
- 14) 谷本浩志: 気象学会2006年度春季大会 (2006)、 “アジアにおける対流圏オゾン：過去の観測事実と将来のモデル予測”

- 15) 駒崎雄一、金谷有剛、P. Pakpong、Y. Liu、入江仁士、秋元肇：第47回大気環境学会年会（2006）、“中国山岳地点におけるブラックカーボン計測の相互比較”
- 16) 谷本浩志、猪俣敏：2006年度地球化学学会年会（2006）、“プロトン移動反応－飛行時間型質量分析計による有機化合物の多成分リアルタイム検出”
- 17) Tanimoto, H., H. Mukai, T. Ohara, I. Uno: Regional climate variability and its impacts in the Mediterranean Area, NATO Advanced Research Workshop, Marrakech, Morocco (2006), “Impact of changing climate and emissions on surface ozone distributions and evolution”
- 18) Inomata, S., H. Tanimoto, N. Aoki, J. Hirokawa, Y. Sadanaga: AGU Fall Meeting, San Francisco, USA (2006), “Development of a PTR-TOFMS instrument for real-time measurements of volatile organic compounds in air”
- 19) Pochanart, P., Y. Kanaya, Y. Komazaki, Y. Liu, H. Akimoto, X. Wang, J. Li, Z. Wang: AGU Fall Meeting, San Francisco, USA (2006), “Air quality perturbations over rural mountain regions by large-scale urbanization in China”
- 20) 金谷有剛、ポチャナート・パクボン、劉宇、駒崎雄一、入江仁士、滝川雅之、庭野将徳、山地一代、秋元肇、Jeeranut Suthawaree、加藤俊吾、谷本浩志、猪俣敏、奥沢和浩、Shanker Aggarwal、河村公隆、王自発、泰山集中観測サイエンスチーム：第17回大気化学シンポジウム(2007)、 “中国泰山集中観測：オゾン・エアロゾル総合観測の概要と初期成果”
- 21) ポチャナート パクボン、劉宇、金谷有剛、駒崎雄一、秋元肇、王自発：第17回大気化学シンポジウム(2007)、 “中国泰山集中観測：2006年6月中国泰山及び他の山観測地点におけるオゾン・一酸化炭素・ブラックカーボンの特徴”
- 22) 山地 一代、大原利眞、鶴野伊津志、劉宇、金谷有剛、ポチャナート・パクボン、駒崎雄一、秋元肇、王自発、泰山集中観測サイエンスチーム：第17回大気化学シンポジウム(2007)、 “中国泰山集中観測：CMAQによるガス・エアロゾル成分の再現性の検証”
- 23) 滝川 雅之、庭野 将徳、Pakpong Pochanart、Yu Liu、金谷 有剛、秋元 肇、高橋正明、Zifa Wang：第17回大気化学シンポジウム(2007)、 “泰山集中観測：全球/領域ネストモデルを用いた森林火災影響評価”
- 24) スタワリー ジーラナット、加藤俊吾、梶井克純、奥沢和浩、河村公隆、金谷有剛、秋元肇、王自発：第17回大気化学シンポジウム(2007)、 “中国泰山集中観測：2006年6月中国泰山でのキャニスターサンプリングによるVOC測定結果の特徴”
- 25) Tanimoto, H., S. Inomata, N. Aoki, Y. Sadanaga, J. Hirokawa: 3rd international PTR-MS conference 2007, Obergurgl, Austria (2007), “The NIES PTR-TOFMS instrument: design, performance, and application”
- 26) Inomata, S., H. Tanimoto, N. Aoki: 3rd international PTR-MS conference 2007, Obergurgl, Austria (2007), “Development of new PTR ion sources for soft and selective ionization”
- 27) Pochanart, P., Y. Liu, Y. Kanaya, Y. Komazaki, H. Akimoto, X. Wang, Z. Wang : The Second International Seminar on High-mountain Air Quality Monitoring Technology and Simulation



- (HAMS-2007), Beijing, P. R. China (2007), “Comparative study of the ozone pollution and some related species at four mountain sites in China during Taishan intensive field campaign 2006”
- 28) Yamaji, K.: HAMS-2007, Beijing, P. R. China (2007), “Model simulation of gases and aerosols at Taishan using CMAQ/RAMS and REAS”
- 29) Kanaya, Y.: HAMS-2007, Beijing, P. R. China (2007), “Photochemical ozone production at the summit of Taishan in June 2006: Rates and regimes”
- 30) Takigawa, M., M. Niwano, Y. Liu, P. Pochanart, Y. Kanaya, H. Akimoto, Z. Wang, M. Takahashi: HAMS-2007, Beijing, P. R. China (2007), “The estimation of the impact of biomass burning on ozone during intensive field campaign at Taishan by using a one-way nested global/regional chemical transport model system”
- 31) Niwano, M., M. Takigawa, M. Takahashi, H. Akimoto, Taishan team: HAMS-2007, Beijing, P. R. China, Beijing, P. R. China (2007), “Transport properties over Taishan during the period 1-30 June 2006 as simulated by MM5”
- 32) Pochanart, P.: 3<sup>rd</sup> Air Pollution Crop Effect Network (APCEN) Meeting, Pathumthani. Thailand, 2008, “Current status and new advances in monitoring and modeling ground level ozone”
- 33) Pochanart, P., Y. Kanaya, Y. Komazaki, Y. Liu, and H. Akimoto: AGU Fall Meeting, San Francisco. USA, 2007, “Regional air pollutions in three different regions of Asia from a transcontinental transport perspective”
- 34) Pochanart, P., Y. Kanaya, Y. Liu, Y. Komazaki, H. Akimoto, X. Wang, and Z. Wang: 4th AOGS Annual Assembly, Bangkok. Thailand, 2007, “Characterization of regional-scale air pollution observed at four mountain sites in China”
- 35) Pochanart, P., Y. Liu, Y. Kanaya, Y. Komazaki, H. Akimoto, X. Wang, and Z. Wang: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong. China, 2007, “Regional air pollution at four mountain sites in China during Taishan intensive field campaign 2006”
- 36) ポチャナート パクボン、劉宇、金谷有剛、駒崎雄一、秋元肇、王自癸：日本地球惑星科学連合2007年大会（2007）、“Air pollution characteristics over the highly anthropogenic regions in China based on long-term measurement and case study from Mount Tai intensive field campaign in June 2006”
- 37) Pochanart, P.: The 3rd Symposium on Asian Ozone Pollution in Eurasian Perspective -The Asia Pacific Network Project Workshop/Seminar, Yokohama. Japan, 2007, “Looking into Asian ozone pollution in 2004”
- 38) Tanimoto, H., S. Inomata, Y. Kanaya, S. Kato, Z. Wang: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “Measurements of NO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub>, and NMVOCs at the summit of Mount Tai, China, in June 2006”
- 39) Inomata, S., H. Tanimoto, S. Kato, Y. Kanaya, Z. Wang: The Asian Chemical Congress (12ACC),

Kuala Lumpur (2007), “PTR-MS measurements of non-methane volatile organic compounds at the summit of Mount Tai, China, in June 2006”

- 40) 猪俣敏、谷本浩志、亀山宗彦、角皆潤、入江仁士、金谷有剛、Zifa Wang : 第13回大気化学討論会、名古屋 (2007)、 “PTR-MSを用いた大気中ホルムアルデヒド濃度の決定”
- 41) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、谷本浩志、王自發 : 第13回大気化学討論会、名古屋 (2007)、 “衛星センサーOMIの対流圏NO<sub>2</sub>カラムデータの検証ー中国華北平原で実施したMAX-DOAS観測との比較ー”
- 42) Inomata, S., H. Tanimoto, S. Kameyama, U. Tsunogai, H. Irie, Y. Kanaya, Z. Wang: American Geophysical Union 2007 Fall Meeting, San Francisco (2007), “Determination of formaldehyde mixing ratios in polluted air with PTR-MS: Laboratory experiments and field measurements”
- 43) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, H. Tanimoto, Z. Wang, J.F. Gleason, and E.J. Bucsela: American Geophysical Union 2007 Fall Meeting, San Francisco (2007), “Validation of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006”
- 44) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, H. Tanimoto, Z. Wang, J.F. Gleason, and E.J. Bucsela: Fourth DOAS International Workshop, Hefei (2008), “Validation of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006”
- 45) Akimoto, H., Y. Kanaya, Z. Wang and Taishan Science Team: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “Intensive Field Campaign for Air Pollutant Gases and Aerosols at Mt. Tai, China”
- 46) Kanaya, Y., P. Pochanart, Y. Liu, Y. Komazaki, H. Akimoto, H. Tanimoto, S. Inomata, J. Suthawaree, S. Kato, and Z. Wang: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “Photochemical ozone production rates at the summit of Taishan (Mount Tai), China, in June 2006”
- 47) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, Y. Liu, Y. Kanaya, P. Pochanart, Y. Komazaki, H. Tanimoto, S. Kato, J. Suthawaree, Z. Wang, and H. Akimoto: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “Modelling study using CMAQ/RAMS and REAS during the intensive observation campaign at Taishan”
- 48) Takigawa, M., M. Niwano, Y. Liu, P. Pochanart, Y. Kanaya, H. Akimoto, Z. Wang, and M. Takahashi: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), “The estimation of the impact of biomass burning on ozone at Taishan by using a one-way nested global/regional chemical transport model system”
- 49) 滝川雅之、庭野将徳、Y. Liu, P. Pochanart、金谷有剛、秋元肇、Z. Wang : 日本地球惑星科学連合2007年大会 (2007)、 “The impact of biomass burning on ozone at Taishan by using a one-way nested global/regional CTM system”

- 50) 金谷有剛、 P. Pochanart、 Y. Liu、 秋元肇、 谷本浩志、 猪俣敏、 J. Suthawaree、 加藤俊吾、 Z. Wang : 日本地球惑星科学連合2007年大会 (2007)、 “2006年6月中国泰山における光化学的オゾン生成”
- 51) 竹谷文一、 金谷有剛、 秋元肇 : 日本地球惑星科学連合2007年大会 (2007)、 “HO<sub>2</sub> ラジカルの不均一反応実験: NaCl、 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> エアロゾルとの反応”
- 52) 山地一代、 大原利眞、 鶴野伊津志、 金谷有剛、 ポチャナート パクボン、 劉宇、 駒崎雄一、 秋元肇、 王自発 : 第48回大気環境学会年会 (2007)、 “中国泰山集中観測におけるガス・エアロゾル濃度のモデル解析”
- 53) Li, J., Z. Wang, H. Akimoto, P. Pochanart, Y. Liu, K. Yamaji, M. Takigawa, Y. Kanaya: International Seminar on Air Quality Measurements and Simulations in China (2007), “Regional-scale Modeling of Near-grounded Ozone in the Central East China, Source Attributions and an Assessment of Outflow to East Asia-The role of regional-scale transport during HAMS June 2006”
- 54) Yamaji, K.: International Seminar on Air Quality Measurements and Simulations in China (2007), “Model simulation using biomass-burning emission inventories based on several fire spot information for Taishan field campaign in June 2006”
- 55) Kanaya, Y., Y. Komazaki, P. Pochanart, Y. Liu, H. Akimoto, J. Gao, T. Wang, Z. Wang: International Seminar on Air Quality Measurements and Simulations in China (2007), “Mass concentrations of black carbon measured by four instruments in the central North China Plain in June 2006”
- 56) Kanaya, Y., P. Pochanart, Y. Liu, H. Tanimoto, S. Kato, J. Suthawaree, S. Inomata, H. Akimoto, Z. Wang: International Seminar on Air Quality Measurements and Simulations in China (2007), “Photochemical ozone production over the North China Plain in June 2006”
- 57) 金谷有剛、入江仁士、パクボン・ポチャナート、劉宇、駒崎雄一、秋元肇、Yuesi Wang、Zifa Wang : 第13回大気化学討論会、名古屋 (2007)、 “2006年6月中国・泰山におけるエアロゾル挙動: MAX-DOAS法によるエアロゾル消散係数の測定と化学成分分析の関係、および単一散乱アルベドの推定”
- 58) 竹谷文一、金谷有剛、秋元肇 : 第13回大気化学討論会、名古屋 (2007)、 “HO<sub>2</sub>ラジカル不均一反応実験: 無機エアロゾル粒子への取り込み係数の決定”
- 59) 山地一代、滝川雅之、李杰、金谷有剛、ポチャナート パクボン、劉宇、駒崎雄一、大原利眞、鶴野伊津志 : 第13回大気化学討論会、名古屋 (2007)、 “領域化学輸送モデルを用いた中国泰山におけるガス・エアロゾル濃度変動要因の解析”
- 60) Kanaya, Y., Y. Komazaki, P. Pochanart, Y. Liu, H. Akimoto, J. Gao, T. Wang, Z. Wang: AGU Fall Meeting 2007, San Francisco (2007), “Measurements of Mass Concentrations of Black Carbon by Using Four Instruments at the Summit of Mount Tai, in the Center of the North China Plain in June 2006”

- 61) Taketani, F., Y. Kanaya, H. Akimoto: AGU Fall Meeting 2007, San Francisco (2007), "Laboratory studies of heterogeneous reactions of HO<sub>2</sub> radical with inorganic aerosol particles under the ambient conditions"
- 62) Akimoto, H., J. Li, Z. Wang, K. Yamaji, P. Pochanart, T. Ohara, I. Uno, C. Gao, X. Wang, H. Tanimoto, J. Kurokawa: AGU Fall Meeting 2007, San Francisco (2007), "Transport and Chemical Production of Ozone in the East Asian Pacific Rim Region: -Modeling Study Based on Observation"
- 63) 竹谷文一、金谷有剛、秋元肇：日本化学会第88春季年会（2008）、"HO<sub>2</sub>ラジカルの不均一反応実験：エアロゾル粒子による取り込み係数の決定およびHO<sub>2</sub>濃度変動への寄与"
- 64) 加藤俊吾、Suthawaree Jeeranut、梶井克純、秋元肇、金谷有剛、Wang Zifa：日本地球惑星科学連合2007年大会（2007）、"2006年6月中国泰山における揮発性有機化合物測定"
- 65) Suthawaree, J., S. Kato, Y. Kajii, Y. Kanaya, H. Akimoto, K. Okuzawa, K. Kawamura, Z. Wang: The 10th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ), Hong Kong (2007), "Measurement of VOCs during the campaign at Mt. Tai in June, 2006"
- 66) Kameyama, S., S. Inomata, H. Tanimoto, U. Tsunogai, H. Irie, Y. Kanaya: The Asian Chemical Congress (12ACC), Kuala Lumpur (2007), "Accurate determination of formaldehyde mixing ratios in polluted air with PTR-MS: Laboratory characterization and field measurements"
- 67) Suthawaree, J., S. Kato, Y. Kajii, Y. Kanaya, H. Akimoto, K. Okuzawa, K. Kawamura, Z. Wang: The Asian Chemical Congress (12ACC), Kuala Lumpur (2007), "VOCs observation in Mt. Tai China"
- 68) 竹谷文一、金谷有剛、秋元肇：日本地球惑星科学連合2008年大会（2008）、"HO<sub>2</sub>ラジカル不均一反応実験：レボグルコサン粒子との反応-湿度による取り込みの変化"
- 69) 山地一代、滝川雅之、L. Jie、金谷有剛、Pochanart Pakpong、Liu Yu、駒崎雄一、大原利眞、鶴野伊津志、Z. Wang、秋元肇：日本地球惑星科学連合2008年大会（2008）、"Model simulation using biomass-burning emission inventories based on fire spot information for Taishan field campaign in June 2006"
- 70) 加藤俊吾、J. Suthawaree、梶井克純、秋元肇、金谷有剛：日本地球惑星科学連合2008年大会（2008）、"北京郊外の蟒山における揮発性有機化合物測定"
- 71) Pochanart, P., Y. Liu, 金谷有剛・秋元肇：日本地球惑星科学連合2008年大会（2008）、"Large-scale air pollutions and their relationship in inflow, outflow and source regions of East Asia"
- 72) 金谷有剛、竹谷文一、P. Pochanart、Y. Liu、入江仁士、J. Li、秋元肇、J. Suthawaree、加藤俊吾、疋田利秀、下野彰夫、奥沢和浩、河村公隆、Z. Wang: 日本地球惑星科学連合2008年大会（2008）、"2007年秋季蟒山（中国・北京郊外）集中観測：概要とブラ

ックカーボン測定比較”

- 73) 竹谷文一、金谷有剛、入江仁士、P. Pochanart、Y. Liu、J. Li、秋元 肇: 日本地球惑星科学連合2008年大会 (2008)、 “2007年9月北京郊外の蟒山におけるエアロゾル粒子の化学組成と光学特性の測定”

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催 (主催のもの)

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

(6) その他(受賞等)

谷本浩志、大気化学研究会「第二回大気化学研究会奨励賞」、測定の標準化と観測の統合化に基づく地表オゾンの時空間変動に関する化学輸送モデル解析、2006年度