

C-051 アジア大陸からのエアロゾルとその前駆物質の輸送・変質プロセスの解明に関する研究
 (1) 地上観測・航空機観測による大気汚染物質・エアロゾルの広域分布と輸送プロセスの解明に関する研究

東京農工大学	大学院共生科学技術研究院	畠山史郎 (H19)
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	アジア広域大気研究室	畠山史郎 (H17, 18) 、高見昭憲
	広域大気モデリング研究室	大原利真
大気圏環境研究領域	遠隔計測研究室	杉本伸夫
	大気反応研究室	村野健太郎 (H17, 18)
<研究協力者>	アジア広域大気研究室	佐藤 圭・清水 厚
	中国環境科学研究院	王 璋・湯大鋼

平成17～19年度合計予算額 114,336 千円
 (うち、平成19年度予算額 30,295 千円)

※上記の合計予算額には、間接経費 26,385 千円を含む

[要旨] 東アジアからの大気汚染物質・エアロゾルの輸送と化学変化を明らかにするため、沖縄辺戸岬（ほぼ通年）と長崎県福江島（春季のみ）でエアロゾル質量分析計（AMS）を用いたエアロゾル化学成分の高時間分解能連続観測を行った。辺戸ではサルフェート（ SO_4 ）が多いが、福江では有機物が多く、東シナ海の南部と北部で組成は大きく異なっていた。この差は気塊の履歴および輸送中の化学反応に依存する。気塊中の化学変化をラグランジュ的観測により検討した。気塊が2地点間を移流する間に、 SO_4 が増加し SO_2 が減少することを定量的に示した。ナイトレートは、輸送時間の増加にもなって微小粒子から粗大粒子に遷移することを明らかにした。また、2波長偏光ライダーによる長期連続観測から、越境大気汚染粒子の環境に対する影響要素を抽出した。大気境界層高度の季節変動を観測データの統計解析から求め、夏季に最も低いという現象とその機構を明らかにした。顕著な大気汚染現象期間について、エアロゾルの時空間構造分析や光学特性の解析を行った。光化学オキシダントが西日本に到達した2007年5月のケースでは、人為汚染粒子とともに黄砂が飛来していたことを示し、窒素酸化物の不均一反応に黄砂が寄与していた可能性を示唆した。また、H18年度には大気汚染物質とエアロゾルの航空機観測を中国の首都北京及び天津の周辺で初めて行った。黄砂の影響を強く受けた気塊が捕らえられた。

地域気象モデルと結合した化学物質輸送モデルを用い、①観測キャンペーン ACE-Asia における元素状炭素(EC)粒子の発源地域別寄与、②冬季に九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響、③日本周辺域の酸性沈着に対する越境汚染の寄与、を評価することを目的とした3種類のソース・リセプター解析を実施した。アジアからの影響を解析した結果、越境汚染の寄与率は硫黄酸化物、窒素酸化物、アンモニウムが1月にはそれぞれ70%、64%、58%で、6月にはそれぞれ57%、44%、44%と計算され、従来の推定よりかなり大きい値が得られた。

[キーワード] 航空機観測、辺戸岬ステーション、ラグランジュ的解析、東アジア、北部ユーラシア

1. はじめに

中国を筆頭とする開発途上国における急速な経済発展に伴う化石燃料使用量の急激な増加により、東アジア地域においては NO_x 放出の増加による対流圏オゾンの増加や、粒子状大気汚染物質の増加など広域の大気汚染を引き起こしている。中国の二酸化硫黄排出は2000年以降再び増加し始め、NO₂ による我が国や太平洋地域、さらには北半球スケールの影響は今後も慎重に監視し、解析して、対策に結びつけるために必要な科学的データの取得と、現状解析、将来予測に努めなければならない。東アジア地域の大気汚染についてはこれまで我が国の国内を中心に、本研究グループでも酸性雨の調査や航空機を用いた大気の観測などを進め、また EANET や LTP などの行政と研究者が一体となった取り組みもすすめられてきたところである。これらの取り組みにより、中国における航空機観測も我々と中国の研究者との共同研究として、初めて行うことが可能となった。

一方、国立環境研究所では東アジアからの大気汚染物質・エアロゾルの輸送と化学変化を明らかにするため、長距離輸送の受容地域となる沖縄本島北端の辺戸岬(128.3°E, 26.9°N)に国立環境研究所「沖縄辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション」を平成17年6月に設置し、多くの大学・研究機関にも門戸を開放して、大規模な観測を行うことが可能となった。これにより、周辺のローカルな排出の影響を受けずに中国など、東アジアから輸送される大気汚染物質・エアロゾルの長距離輸送現象を把握することが可能となった。

C-051 研究課題では 図1 に示すように、東アジアから東シナ海を経て北西太平洋へと輸送される大気汚染物質・エアロゾルの長距離輸送現象のラグランジュ的な解明やユーラシア北部を經由して我が国に到達する大気汚染物質のラグランジュ的な解析を観測・モデルの両面から研究する。平成18年度は本研究課題の中心的観測研究の年にあたり、中国での航空機観測予備地上観測、

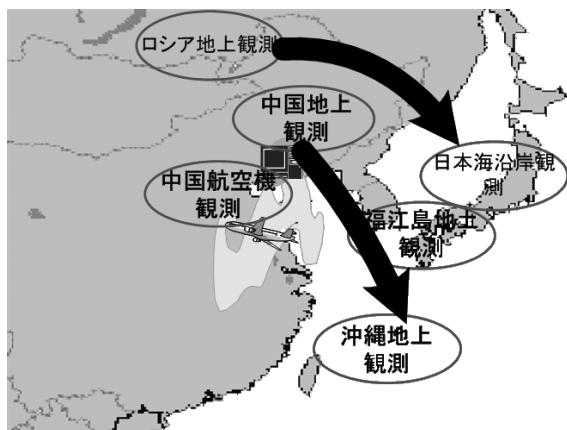


図1: 東アジアにおける長距離輸送のラグランジュ的解析の対象イメージ

福岡および沖縄辺戸岬における地上観測、日本海沿岸域での観測、モデル解析などを総合的に進めた。

- (1) 沖縄および福岡における地上エアロゾル化学成分の連続観測
- (2) 沖縄、福岡におけるライダーによるエアロゾルの空間分布と濃度の変動の観測
- (3) 中国における大気汚染物質・エアロゾルの航空機観測
- (4) 新潟巻酸性雨測定局における大気中のガス状および粒子状成分の濃度変動
- (5) 東アジア地域での大気汚染物質授受の発生源データとモデルを用いた解析である。

本研究課題では、従来研究が困難であった春季の4月に集中観測を行うことを計画した。この時期は冬の季節風から春の移動性高気圧・低気圧に支配される気象条件へと変化する時期であり、

また黄砂も頻繁に見られる季節であって、この時期のデータの重要度は高い。そのため(1)～(3)については平成18年4月上旬の中国航空機観測をはじめとする大規模集中観測を行い、平成18年3月から(1)および(2)の観測を開始して、(3)を含む大規模集中観測に合流し観測を進めた。また、サブ課題(6)と協同した解析を行うため、(4)の観測を平成17年度より継続して行った。またこれら観測と並行してモデルによる解析(5)を進めた。

2. 研究目的

本サブ課題では、東アジアにおける大気汚染物質の大規模な発生源である中国、および風下に位置し受容地域である沖縄と、その輸送途上にある福江島を主要な研究対象地域とし、輸送プロセスとその間の化学変化を明らかにすることを目的とする。このために中国本土における航空機観測・地上観測と福江および沖縄における地上観測を行い、東アジアからの輸送に伴うエアロゾルの変化を輸送の経路に沿って同時に解析する。また、ライダー観測の長期的データから、(1)エアロゾルと雲の鉛直分布に関する季節変動を抽出してエアロゾル分布の鉛直構造がどのような気候条件によって規定されているかを明らかにし、(2)特徴的なエアロゾルイベントについてはその時空間構造や光学特性の詳細について解析を行う。さらに、ユーラシア北部の影響を明らかにするため日本海に面する新潟県においてガスおよびエアロゾル化学成分を捕集・分析し、観測データと発生源データに基づき全体像をモデルによって解析する。

3. 研究方法

(1) 沖縄および福江における地上エアロゾル化学成分の連続観測

沖縄辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション(以下辺戸ステーション)において有機エアロゾルを含む大気エアロゾルのキャラクタリゼーションを行うため、エアロゾル質量分析計(Aerosol mass spectrometer; AMS / Aerodyne Research Inc.)を導入し、サンプル空気中に存在するエアロゾルの化学成分や粒径分布の情報をきわめて高い時間分解能で観測した。同時に、TEOM(RP1400)を用いて粒子重量濃度を、カーボンモニター(RP5400)を用いてエアロゾル中の有機炭素成分(OC)、元素状炭素成分(EC)、ナイトレートモニター(RP8400)を用いて粗大粒子に含まれるナイトレートを測定した。そのほか、集中観測時には10点グローバルサンプラー(GS-10; 東京ダイレック製)や低圧インパクター(LPI; 東京ダイレック製)を用いてフィルターサンプリングによる無機エアロゾルの組成分析も並行して行った。

輸送による化学的変質を観測するため、2006年、2007年春季に長崎県福江島においてAMSを導入し、エアロゾルの化学成分や粒径分布を観測した。また中国環境科学院と共同で中国国内の東シナ海沿岸部においてガス・およびエアロゾルの観測を行った。

有機エアロゾルなどの組成分析(PAH)のためフィルターサンプリングの観測を辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおいて2005年12月から2007年7月の間に計6回の集中観測を行った(表1)。エアロゾルを、ハイボリュームサンプラー(柴田化学、HV-1000F)を用いて石英繊維フィルターに捕集した。吸引速度は毎分1 m³だった。1サンプルの吸引時間は約12時間だった。捕集の前後にフィルターを秤量し、全浮遊粒子(TSP)濃度を決定した。捕集した試料を有機溶媒中で超音波抽出して抽出液を分離後、PAH類を含む画分をガスクロマトグラフィー質量分析法で分析

した。3-7 環の代表的な PAH 成分14 種を検出・定量した。

(2) 沖縄および福江におけるライダーによるエアロゾルの空間分布と濃度の変動の観測

国立環境研究所のライダーネットワークにおいては、全地点で天候によらない自動観測を行っており、15分毎に532nm/1064nmにおける後方散乱係数の鉛直分布が得られる他、532nmにおいては偏光解消度(粒子の非球形性の指標)も計測している。このデータセットに関して、1064nm 後方散乱係数の鉛直勾配から雲の検出を行い、晴天時に関しては後方 Fernald法(Fernald, 1984)により532nm 粒子消散係数の鉛直プロファイルを推定する。更に Shimizu et al. (2004)の手法を用いてこれをダストによる消散係数と球形(人為汚染)粒子による消散係数とに分離する。この他、高高度エアロゾルに関しては前方 Fernald 法も併用した。

(3) 中国における大気汚染物質・エアロゾルの航空機観測



図2：YUN12型飛行機

中国航空機観測に用いた飛行機は中国製の YUN-12 型飛行機とした(図2)。航空機に搭載された主な大気・気象の測定機器は、 O_3 計、 NO_x 計、 SO_2 計、CO計、PM10エアロゾルサンプラーおよびPM2.5エアロゾルサンプラー、外気温度・湿度計、観測データ記録装置、GPS 航跡記録装置、DC-AC 変換器、である。これらの測器の搭載を、飛行機の基地である常州で行い、テストフライトを行った

後、北京に回航し、北京・天津の周辺で8回の観測飛行を行った。図3には飛行コースの一部を示す。

(4) 新潟巻酸性雨測定局における大気中のガス状および粒子状成分の濃度変動

越境大気汚染の解明のために、日本海側に面した新潟巻酸性雨測定局における大気中のガス状および粒子状成分の濃度変動を明らかにし、その要因を明らかにすると同時に酸性雨長距離輸送モデルの検証データを集積した。10ライン・グローバルサンプラーを用いて、日単位で粒子状およびガス状大気汚染物質を捕集して、化学分析により SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NH_4^+ (粒子状成分)、 SO_2 、 HNO_3 、 NH_3 (ガス状成分)の濃度を測定した。

(5) 東アジア地域での大気汚染物質授受の発生源データとモデルを用いた解析

地域気象モデルRAMS(Regional Atmospheric Modeling System)と結合した化学物質輸送モデルCMAQ(Community Multiscale Air Quality)を用い、①観測キャンペーンACE-Asiaにおける炭素粒子の発源地域別寄与、②冬季に九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響、③日本周辺域の酸性沈着に対する越境汚染の寄与、を評価することを目的とした3種

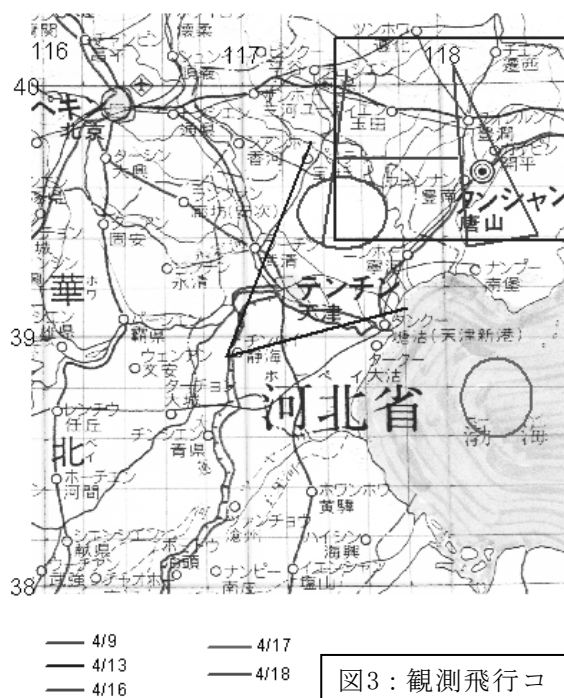


図3：観測飛行コースの一部

類のソース・リセプター解析を実施した。

4. 結果・考察

(1) 沖縄および福江における地上エアロゾル化学成分の連続観測

① 2005年11月の黄砂飛来時の観測

沖縄気象台は2005年11月7日から9日にかけて黄砂を観測したと発表した。沖縄に黄砂が飛来するのは5年ぶりであった。図4に同時期のAMS、カーボンモニター、TEOMの結果を示す。AMSでの測定では11月7日の午前零時ごろと午後ピークが観測され、その後濃度は減少した。主成分はサルフェート（以下 SO_4 ）、アンモニア、有機物であり硝酸塩は非常に少なかった。EC、OCも同様の挙動を示し、11月8日正午ごろまで濃度が高い。 SO_4 、アンモニア、有機物、EC、OCともに高濃度であることから、11月7日から8日にかけては人為起源エアロゾルが観測域に流入したと考えられる。11月8日の午後からはTEOMのみ20から $40\mu\text{g m}^{-3}$ とバックグラウンドレベル（ $10\mu\text{g m}^{-3}$ 以下）に比べ高濃度であった。

気象台の発表とも一致しており、黄砂だと考えられる。同時期のライダーの結果もAMS、カーボンモニター、TEOMの結果と一致していた。人為起源汚染は黄砂より少し早く観測域に到達しており、これまで長崎や福江島での観測と同じような現象を観測した。

寒冷前線背後の強い北西風によってダストが発生し、黄砂は日本に輸送される。ダストは寒域の下層内に閉じ込められたまま前線とともに東へ移動し、前線面付近に達すると地表面付近に保たれたまま低気圧の中心に向かって輸送される。このようなダストの輸送は、エアロゾルについても同様に言えると思われる。

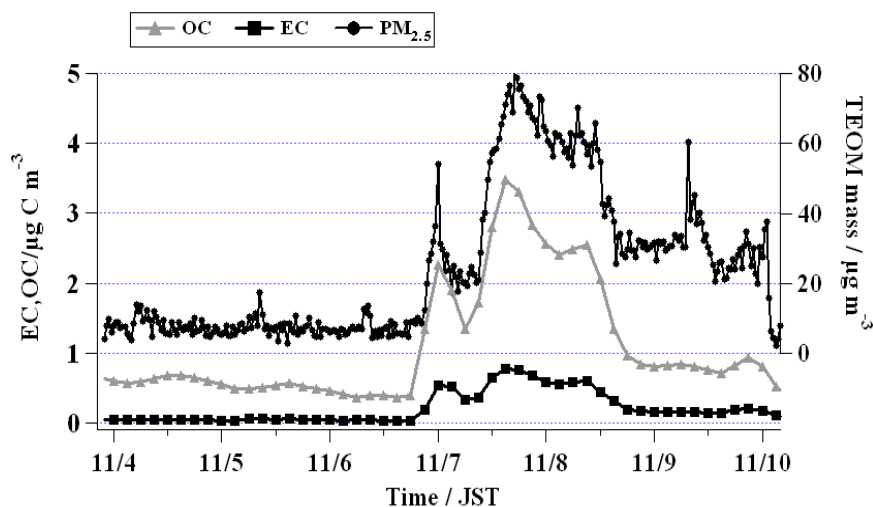
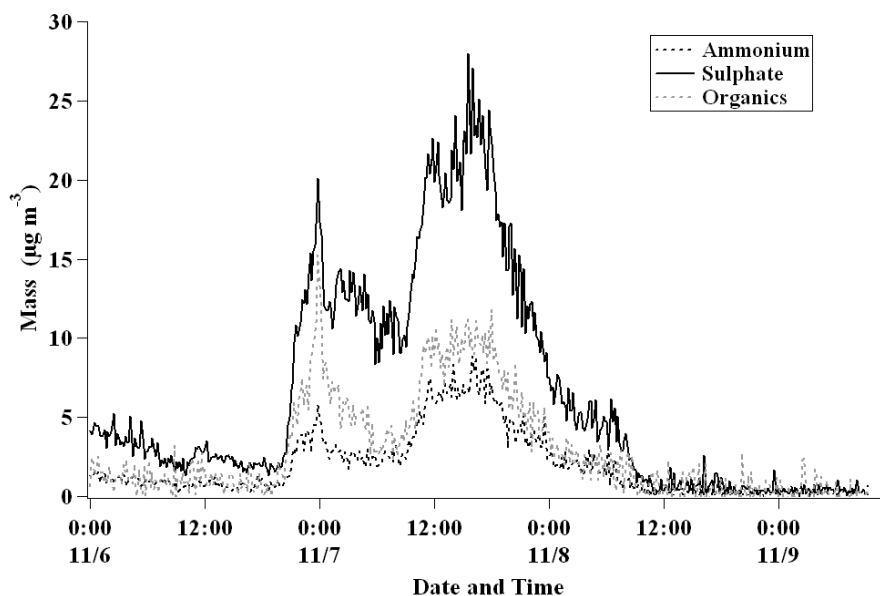


図4：2005年11月の黄砂飛来時のAMS（上）、カーボンモニター、TEOM（下）の結果観測

11月5日に中国大陸にあった温帯低気圧は発達しながら日本付近を通過し、低気圧の南西に伸びた寒冷前線が東シナ海から沖縄を含む日本の南海上を東進していた。地上における前線面が沖縄を通過したのは11月7日0:00JST頃であったと推測される。前線が通過する直前と思われる時間帯の11月6日21:00JSTに急激に濃度が上昇し、11月7日0:00JSTに一度ピークとなり、 $PM_{2.5}=54.1\mu g m^{-3}$ 、 $OC=2.27\mu g Cm^{-3}$ 、 $EC=0.53\mu g Cm^{-3}$ であった。その後やや下がったのち、再度11月7日15:00JST から18:00JSTにかけて上昇し、最高値($PM_{2.5} = 80.4\mu g m^{-3}$ 、 $OC = 3.48\mu g Cm^{-3}$ 、 $EC = 0.77\mu g Cm^{-3}$)を記録した。その後はゆっくりと減少に向かった。この期間のバックトラジェクトリーでは、主に中国の華北地方および東北部を通過しており、中国の大気汚染質が捕捉されたと考えられる。

②AMSの捕集効率について

一般的にAMSの捕集効率 (Collection efficiency: CE) は0.5とされているが、エアロゾルの組成により捕集効率は変化する。このCE=0.5という値は都市部での観測をもとに決められている。辺戸ステーションにおけるAMSの捕集効率を決めるため、LPI (低圧インパクター) によるエアロゾルの捕集を行い、イオンクロマトグラムを用いて組成分析を行った。LPIで観測された SO_4 とAMSで観測された SO_4 を比較したのが 図5である。CE=0.5とした場合AMSで観測した SO_4 はLPIで観測した SO_4 の約2倍となる。辺戸ステーションでの観測ではCE=1が適切であることをはじめて見出した。

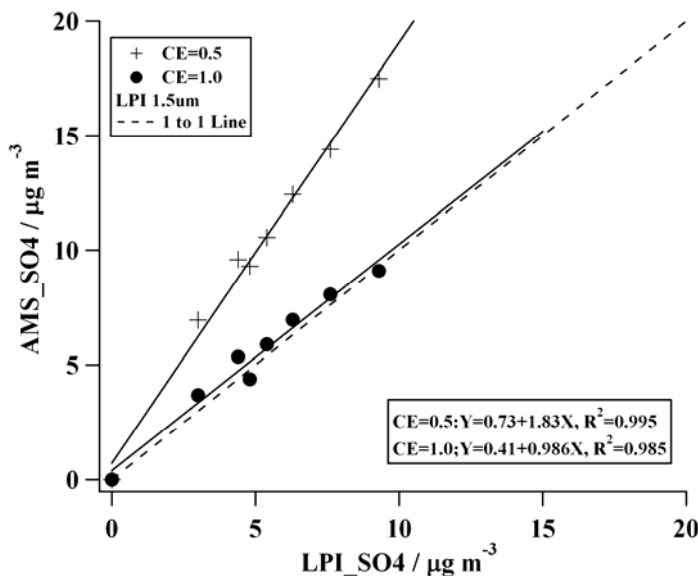


図5：辺戸ステーションでLPI、AMSを用いて観測した SO_4 の比較。● CE=1、+ CE=0.5

福江観測所でも同様にフィルターサンプラを用いてエアロゾルを捕集し SO_4 を比較した。その結果、福江観測所ではCE=0.5で良いことがわかった。これはエアロゾルの化学組成に起因すると考えられ、次節で説明するように、辺戸ステーションと福江観測所において2台のAMSを用いて同期観測を行い、組成分析を行った。

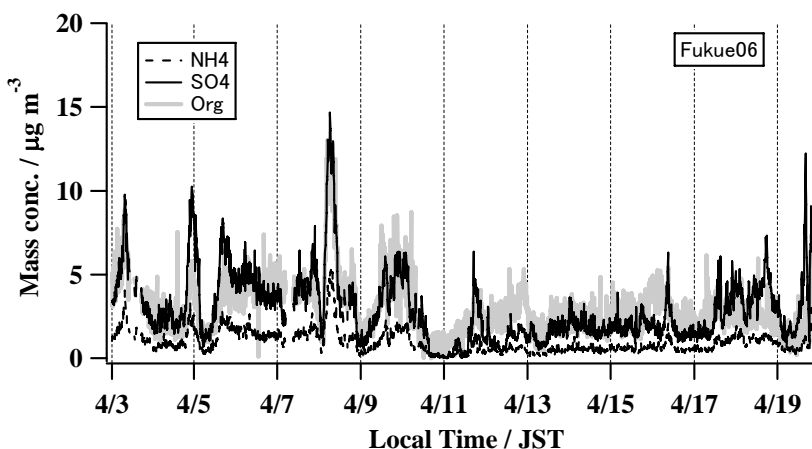


図6a：AMSによる観測（福江観測所）アンモニウム（破線）、サルフェート（黒実線）、有機物（灰色実線）の経時変化。

③ 沖縄辺戸および長崎福江島における同期観測とエアロゾル組成の違い

2006年3～4月にかけて、沖縄・辺戸ステーション (26.9N、128.3E) および長崎県五島列島福江島にある総合地球環境学研究所・大気環境観測施設 (以下福江観測所; 32.8N、128.7E) においてAMS、GS-10、LPIなどを用いて集中観測を行った。

AMSを用いた組成分析の結果を図6aおよびbに示す。両地域とも微小粒子側 (粒径 $<1\mu\text{m}$) の主成分は SO_4 と有機物 (Org)であった。辺戸においては有機物と SO_4 の重量比 (Org/ SO_4) は1以下、すなわち SO_4 が卓越して

いたが、福江ではOrg/ SO_4 は1以上の場合が多くOrg

が卓越していた (図7)。我々は以前より、日本近海の東シナ海域では北部と南部でエアロゾルの組成が非常に異なることを指摘していたが、今回初めて同時観測を行うことにより実証した。

組成の差は上記捕集効率が辺戸ステーションでは1であることの原因にもなっている。都市部での観測によって捕集効率は決められてきたが、そこでは、主として硫酸塩、硝酸塩、有機物が主成分であった。エアロゾルはどちらかという固相として存在しており、硫酸塩もほぼ中和されており硫酸アンモニウム: $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ として存在していた。福江観測所の結果は図7に示すとおり有機物が相対的に多く、硫酸塩もほぼ中和されており捕集効率を0.5としてもフィルターサンプラやTEOMなど他の測定結果と矛盾はしない。一方、辺戸ステーションでは SO_4 が主成分であり、組成が異なる。モル比や当量比を計算すると、硫酸アンモニウム: $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ と亜硫酸アンモニウム: NH_4HSO_4 の混合物となっていることがわかった。また時には NH_4/SO_4 のモル比が0.5より低いこともあり、 H_2SO_4 も混在していたと考えられる。 NH_4HSO_4 の潮解点は相対湿度40%程度と低く、 NH_4HSO_4 の割合が高

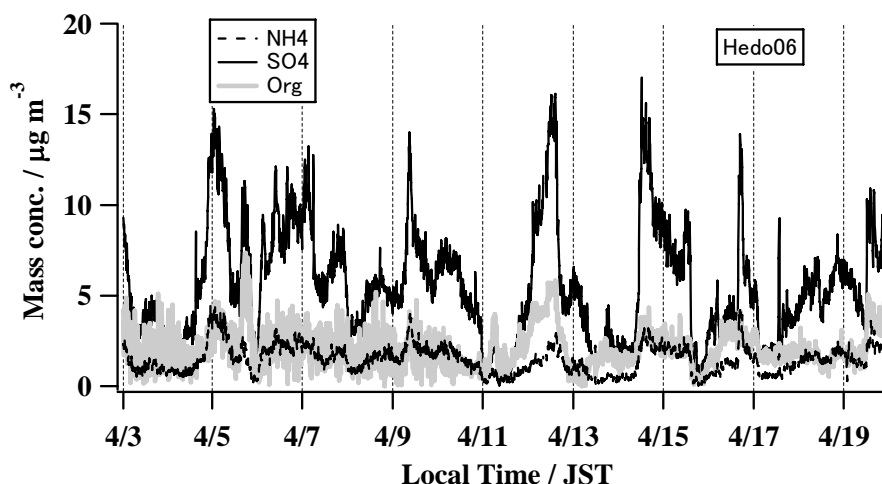


図6b: AMSによる観測 (辺戸ステーション) アンモニウム (破線)、サルフェート (黒実線)、有機物 (灰色実線) の経時変化。

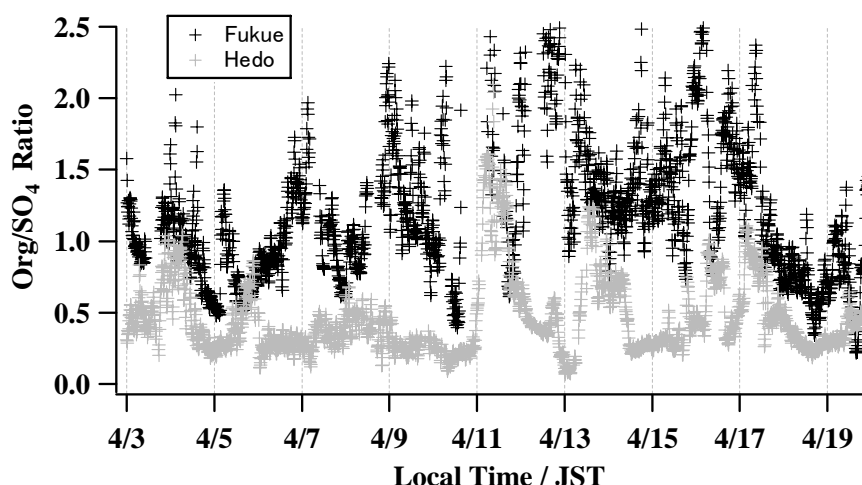


図7: 福江観測所 (黒) および辺戸ステーション (灰色) においてAMSを用いて測定した有機物とサルフェートの重量濃度比

エアロゾルは液相に近い状態であったと考えられる。室内実験により硫酸アンモニウムから亜硫酸アンモニウムを経て硫酸になると捕集効率率は1に近づくことが知られており、今回の場合もエアロゾルは液相に近い状態であったため捕集効率を1としたほうが適切であったと考えられる。

④ 気塊の起源によるエアロゾルの組成について

組成の差が見られる原因としては、気塊起源の差、および気塊が輸送される間の化学変化に由来すると推定される。後方流跡線解析によると、福江では韓国や日本を起源とする気塊も多く見られ、また陸地にも近いため輸送時間が短く化学変化もあまり進行していない。一方、辺戸の場合には、低気圧の通過と高気圧の移動に伴う中国大陸からの汚染気塊の移流がSO₄や有機物濃度の上昇をもたらす。移流に要する時間も相対的に長いことためSO₂からSO₄への酸化が進み相対的にSO₄が多くなると考えられる。

⑤ 移流によるエアロゾル変質

辺戸ステーションにおいてナイトレートモニター (RP8400) を用いて硝酸塩をほぼ通年で観測した。全窒素化合物NO_y は大阪府立大学坂東グループのデータを用いた。また微小粒子中の硝酸イオン濃度はAMSの観測を用いた。図8 に季節ごとの濃度変化を示す。夏場に低く、春と秋冬が比較的高濃度になる。夏場は太平洋高気圧に覆われているため比較的清浄な空気塊が辺戸ステーションに到達するが、春および秋冬は北西の季節風が吹くため大陸の影響を受けやすい。気塊の起源の差が季節変化をもたらしている。

硝酸塩の熱分解で生じた硝酸ガスは長距離輸送中、粗大粒子(海塩やダスト)に付着すると考えられる。図9 に辺戸ステーションで測定した硝酸塩の観測結果を示す。時間ゼロは中国環境科学院との共同研究により中国青島で測定した硝酸塩での値である。図9 では後方流跡線解析により計算した輸送時間に対して粗大粒子と微小粒子の割合をプロットした。中国国内では微小粒子中に硝酸塩が相対的に多く含まれるが、輸送時間が長くなるにつれて粗大粒子の割合が多くなることわかる。長距離輸送にお

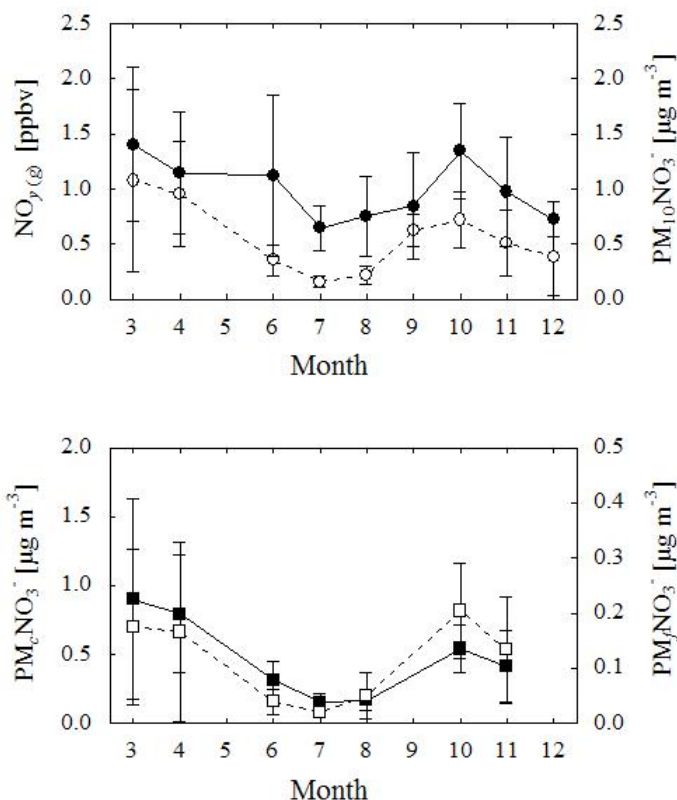


図8：辺戸ステーションで観測した粒子状硝酸の季節変化。NO_y：全硝酸、PM₁₀NO₃⁻：粒子状硝酸、PM_cNO₃⁻：粗大粒子中の硝酸、PM_fNO₃⁻：微小粒子中の硝酸

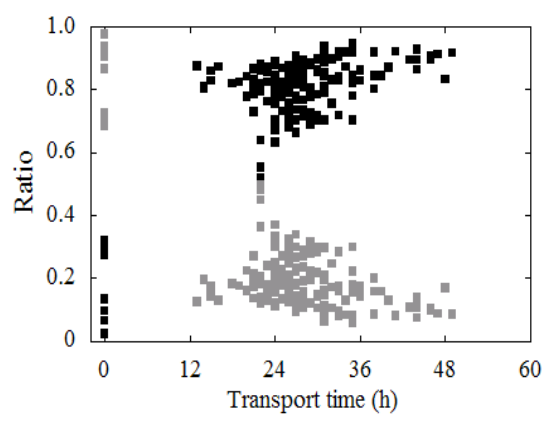


図9：輸送時間の経過に伴う粗大粒子 (■) と微小粒子 (■) の割合の

いて硝酸塩が粗大粒子側に多く含まれることを観測により実証した。

福江観測所を通過したあと辺戸ステーションに到達する気塊を選び、ガスやエアロゾルの化学組成がどのように変化するかを検討した。SO₂とSO₄の値を見ると、福江から辺戸に気塊が移動するとSO₂は減少しSO₄は増加する。平均値ではSO₂は0.92ppbv (2.4μgm⁻³)減少し、SO₄は2.9μgm⁻³増加していた。減少については拡散など物理的な損失も考えられるため、図10に示したように、COとの相関を取りその傾きを比較した。福江ではSO₄のCOに対する傾きは3.5(±0.4) × 10⁻²であるのに対し辺戸では5.7(±0.7) × 10⁻²であった。一方、福江でのSO₂のCOに対する傾きは2.4(±0.2) × 10⁻²であるのに対し辺戸では0.17(±0.12) × 10⁻²であった。SO₄/COは福江から辺戸に移流する間に増加し、SO₂/COは減少している。AMSを用いた同期観測によって初めて気塊がラグランジュ的に2地点間を移流する間に、SO₄が増加しSO₂が減少することを定量的に示した。

有機物についてm/z=44 (mは質量数、zは電荷) シグナルはCOOフラグメントと考えられ有機物の酸化の指標となる。m/z=44のシグナルと全有機物の比を取り比較した。その結果、福江では0.092(±0.013)であったのが、辺戸では0.16(±0.03)となっていた。COOフラグメントと考えられるm/z=44が増加していることは、有機物が移流の間に酸化されていることを示している。これはSO₄がSO₂から酸化されて増加していることと矛盾なく説明できる。

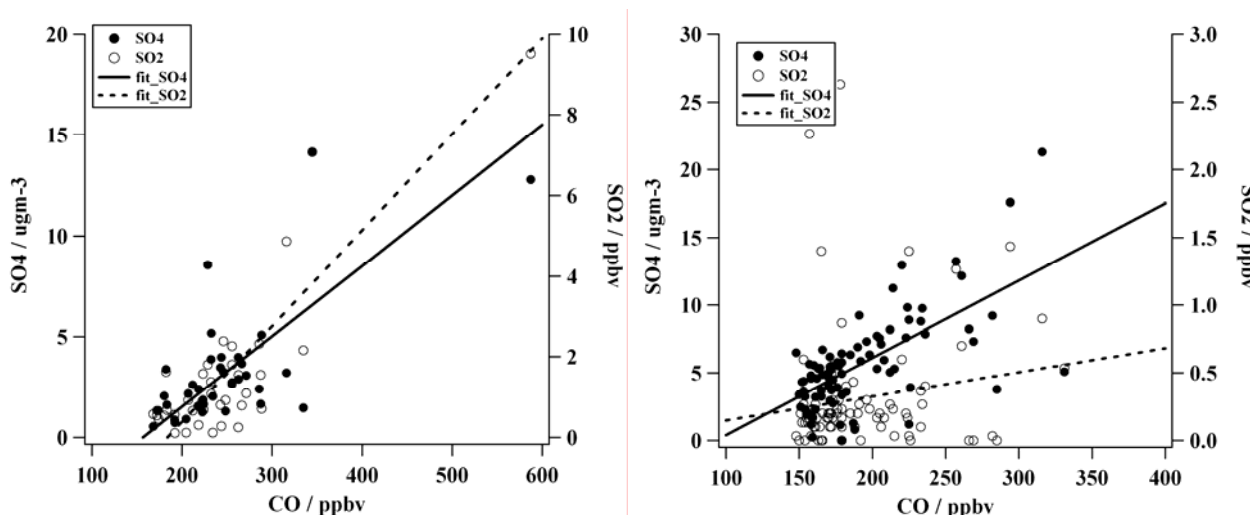


図10：福江および辺戸におけるCOに対するSO₂、SO₄の比

⑥PAHの測定

中間報告では、液体クロマトグラフィー紫外吸収法による分析結果を報告したが、最終報告である本稿では、より選択性が高いガスクロマトグラフィー質量分析法を用いて行った分析結果を報告する。本稿のデータ解析ではさらに、以前の報告では考慮していなかった、PAHの回収率(20~100%)を考慮に入れてデータ処理を行った。表1に観測期間ごとのTSP濃度及び総PAH濃度を示す。14種類のPAH類の濃度を合計して計算された総PAH類濃度は、0.01-23.5(平均1.85) ng m⁻³だった。平均値は以前の中国14都市の観測結果(117 ng m⁻³)の値に比べて低かったが、遠隔地である父島の観測結果(0.11 ng m⁻³)よりも高かった。辺戸岬のライダーで黄砂現象が観測された2006年3月17日に、全期間中最大の総PAH濃度(23.5 ng m⁻³)が観測された。この値は、国内の都市域で観測される総PAH濃度に匹敵する値であった。以上の結果から、沖縄辺戸岬で観測されるPAHは主にア

アジア大陸からの汚染輸送の影響を受けているものと解釈される。冬及び春のベンゾ[a]ピレン/ベンゾ[e]ピレン比の平均は0.48だった。ベンゾ[a]ピレンの寿命は、ベンゾ[e]ピレンの場合よりも短いことが知られる。従って、ベンゾ[a]ピレン/ベンゾ[e]ピレン比が低下するほど粒子中のPAHの酸化が進行していることを示す。辺戸岬で測定された値(0.48)は以前に中国14都市で測定された結果(平均0.85)に比べて低く、輸送中に起こる光化学反応の影響によって、発生源地域に比べてPAH類の酸化が進んでいると考えられる。ベンゾ[a]ピレン/ベンゾ[e]ピレン比の結果からも、辺戸岬で観測されたPAH類が輸送の影響を受けていると確かめられた。本研究の結果は、辺戸岬で観測された有機エアロゾルが長距離輸送中に光化学反応の影響を受けているというAMSを用いた辺戸岬と福江島での同期観測の結論を支持していた。

表1： PAHの観測期間、平均気温、総浮遊粒子濃度(TSP)および総PAH濃度(Σ PAH)

観測期間	試料数	TSP ^a ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Σ PAH ^a (ng m^{-3})
12/6-12/15 (2005)	18	63 (27-117)	1.65 (0.05-6.00)
3/16-4/13 (2006)	30	82 (25-195)	2.55 (0.07-23.5)
6/19-6/22 (2006)	6	15 (14-17)	0.02 (0.01-0.03)
3/20-4/27 (2007)	13	54 (22-163)	1.14 (0.06-5.85)
7/18-7/21 (2007)	4	51 (49-55)	2.58 (0.13-7.79)
全観測期間	71	65 (14-195)	1.85 (0.01-23.5)

^a値は平均値を、括弧内の値は最大値および最小値を表す。

(2) 沖縄および福江におけるライダーによるエアロゾルの空間分布と濃度の変動の観測

① 気候学的なエアロゾル分布の特徴

まず、窒素系酸化物の輸送中の反応に関わると考えられる粗大粒子のうち東アジア域で特徴的な黄砂の分布を抽出した。図11は、2006年3月から5月にかけて福江島と辺戸岬で観測された黄砂消散係数の時間高度断面図である。これによると、福江島ではこの季節には持続的に黄砂が到達しているのに対して、辺戸岬ではイベント的に輸送されてくる黄砂は顕著であるもののそれ以外の時期には黄砂の影響は小さい。また個々のイベントについて、日本では一般に上層で先に黄砂が現

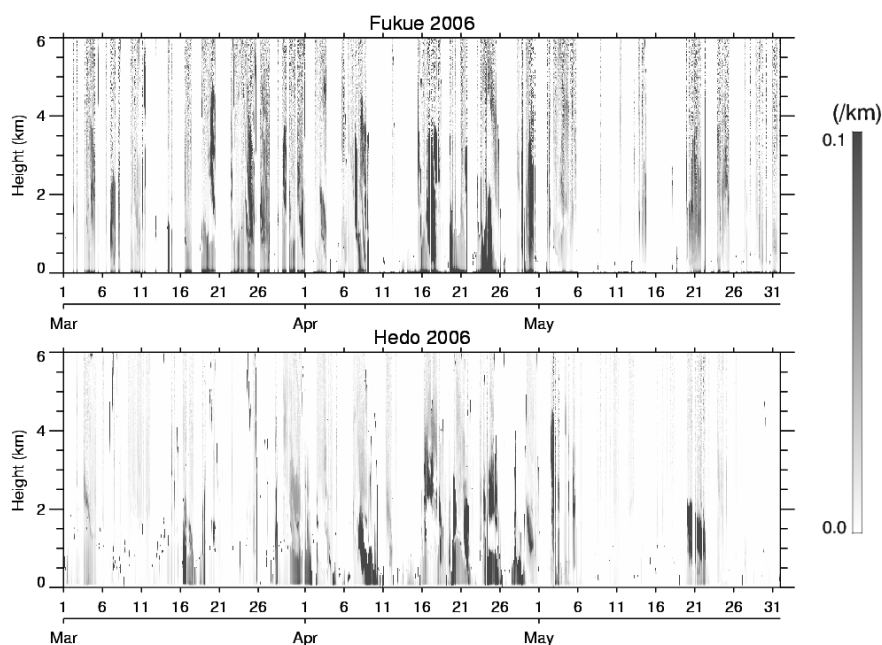


図11：黄砂消散係数の時間高度分布(上：長崎県福江島、下：沖縄県辺戸岬)。横軸は2006年3月1日から5月31日まで。

れてその後低高度でも検出されるケースが多いが、福江島では上空に現れてから数時間で地表へ達することが多いのに対して、辺戸岬では上空に1日以上遅れて地上で黄砂となるケースが多い(図11で濃い黄砂の領域の傾きが辺戸岬の方が小さい)。これは、発生源から観測地点まで達する時間が福江島よりも辺戸岬の方が長く、水平風速の鉛直シアの影響を辺戸岬へ届いたプルームの方がより多く受けているためと解釈できる。

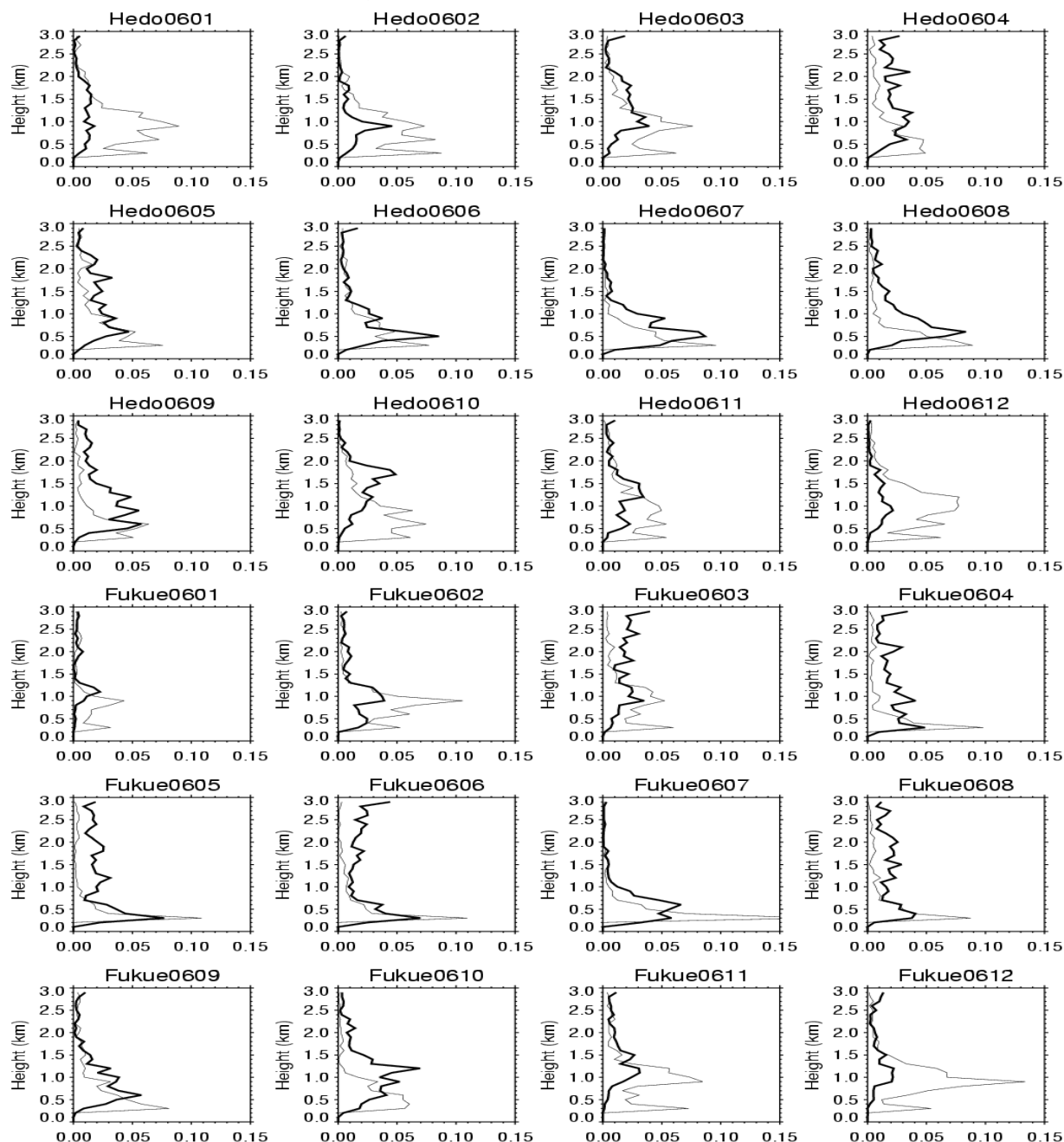


図12：福江島（上）と辺戸岬（下）における、各月毎の境界層上端高度の頻度分布（太線）および雲底高度の頻度分布（細線）。横軸は、厚さ100mの層毎の出現頻度確率を示す。

また、大気質の輸送・反応においては特に大気境界層の厚さが重要なパラメータとなる。従来ラジオゾンデ観測による温位プロファイルから混合層高度は得られていたが、ライダーではエア

ロゾルの分布を直接観測できるので実際に物質がどの高度まで混合されていたかを直接知ることが出来る。ここでは、後方散乱強度の鉛直勾配が閾値以下になる高度(上方へ向って散乱が急速に弱まる高度)を混合層上端とし、同じく後方散乱強度勾配が正の極大になる雲底高度と共にその出現高度頻度分布を福江島と辺戸岬について2006年1月～12月の各月毎に解析した。この結果を図12に示す。まず境界層の上端高度(太線)は、両地点とも冬季には高度0.5-2kmの間に幅広く分布し、下記には高度1km以下に集中して分布するという季節変化を示す。これは下層の湿潤な夏期には対流が発生するとより低高度で空気塊が飽和して雲が発生し、それ以上の高度と地表との間で混合が起きにくいことと対応している。両地点とも雲底高度分布(細線)によると夏期には500m以下に高い頻度で雲底が見られ、上層への物質輸送を妨げていることが確認できる。また春季には両地点とも2km以上にも境界層上端が見られ、これは先に触れた黄砂によるエアロゾル層を検出していると考えられる。一方両地点での差異については、1月・2月の雲出現頻度が辺戸岬の方が各高度で高い。これは水温の高い海面にて生じる海洋性の積雲が亜熱帯の辺戸岬周辺では通年で生じていることを示している。

②光化学スモッグ時期のエアロゾル時空間分布に関する解析

2007年5月8日から9日にかけて、西日本各地で光化学スモッグ注意報が発令されたことは報道等で広く知られている。この期間について、長崎県大村市のライダーによる観測結果を解析したところ、人為汚染粒子のみならず黄砂も上空に存在したことが明らかになった。図13に、ライダーにより観測された黄砂と人為汚染粒子の時間高度断面図を示す。

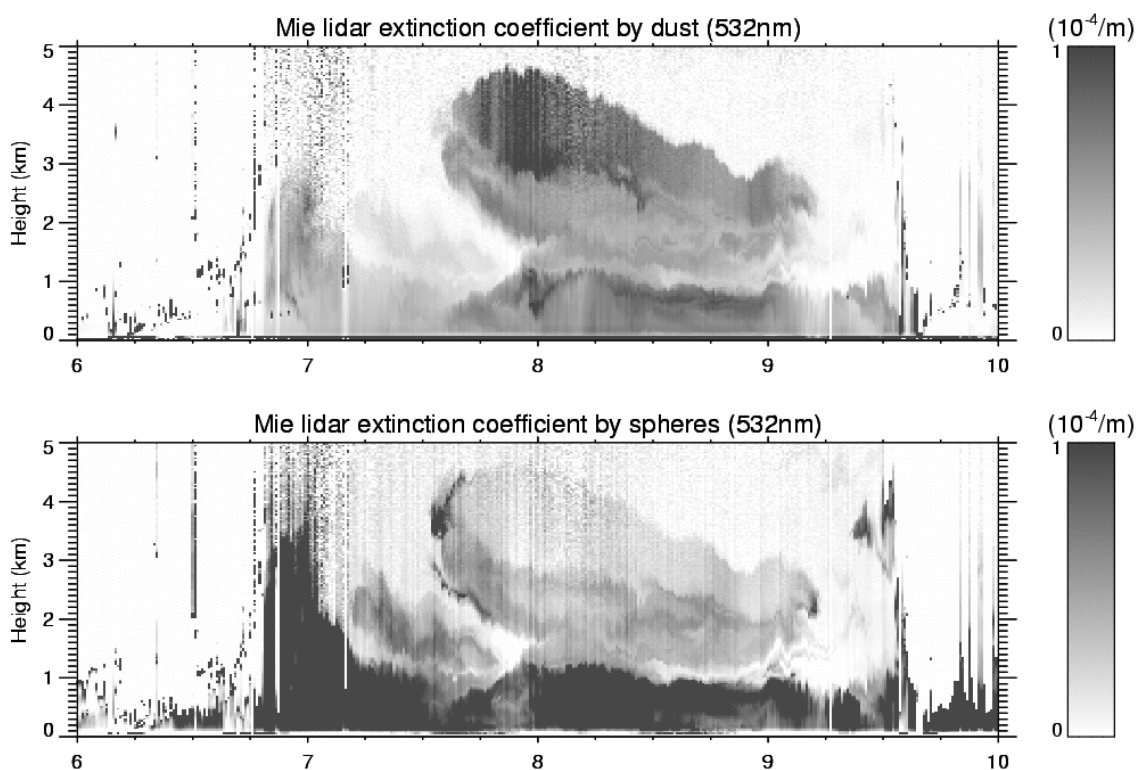


図13：長崎県のライダーにより観測された黄砂(上)および人為汚染粒子(下)による消散係数。横軸は2007年5月の日付（世界標準時）。

5月7日には既に高濃度の人為汚染粒子（図13下段）が確認されるが、その後上空に黄砂層が現れ（図13上段）、その高度は徐々に低下して8日午前には大気境界層まで届いている。それ以外にも、下層で非球形粒子（黄砂）のシグナルが7日から弱いながらも観測されており、この時の空気塊全体が黄砂を含むものであったことを示している。光化学汚染の前駆物質である窒素酸化物の反応は黄砂等の粗大粒子表面で促進される可能性があるため、この光化学汚染イベント時にライダーにより黄砂粒子が観測されたことは、記録的な光化学汚染の生成に黄砂が寄与したことを示唆するものである。

③森林火災起源エアロゾルに関するエアロゾルの光学特性解析

2007年6月には、モンゴル・シベリア方面において森林火災が多く発生していたことが MODIS 画像等で確認されている。この火災から発生した炭素性エアロゾルと思われる層が6月10日に長崎に高高度で観測された。このエアロゾル層について *Sasano and Browell (1989)* の方法で532nm/1064nmの2波長について解析した結果を図14 に示す。

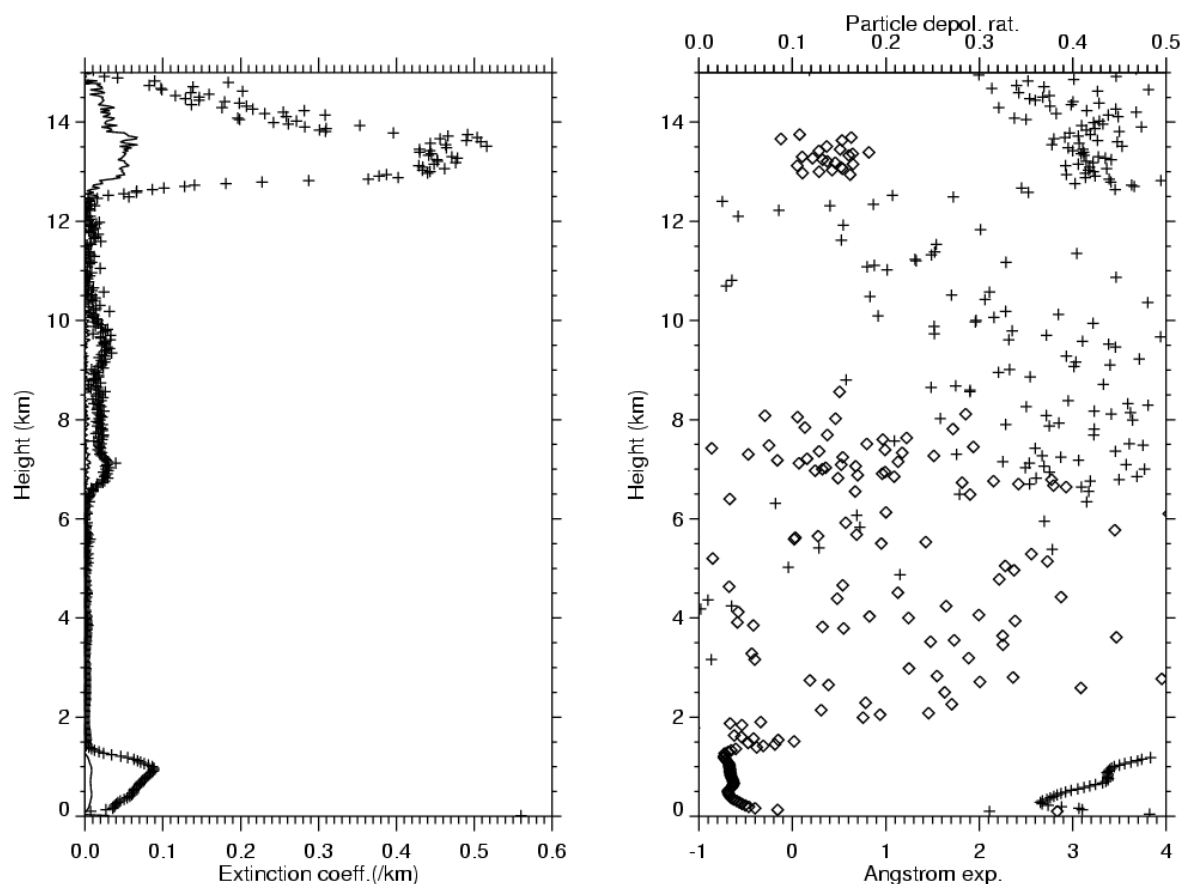


図14：2007年6月10日午後6時から1時間平均の（左）エアロゾル消散係数（+：532nm，実線：1064nm）と（右）粒子偏光解消度（◇）・オングストローム指数（+）の鉛直プロファイル。

この時、高度12.5kmから15kmにかけてこの高度としては非常に濃いエアロゾル層が観測されている。この層の粒子偏光解消度は10から15%程度で、黄砂ほどではないが硫酸塩などに較べると有意に大きな値である。即ちこの層には BC あるいはフライアッシュ等不定形の粒子が多く含まれていたと考えられる。また、この解析ではライダー比を60sr (532nm)、70sr (1064nm) としたところ、

エアロゾル層内でオンゲストローム指数が約3でほぼ一定となった。この値は対流圏下層で見られるエアロゾルに較べると大きく、小粒子が卓越していたことを示す。このエアロゾル層の光学的厚さは可視光(532nm)では0.67とかなり大きく、このような炭素性エアロゾルの層がこの地域の放射影響に与えるインパクトは非常に大きい。この層は12km以上という高高度に存在したため地表付近の大気環境には直接影響を与えないが、放射影響を通じて気候に与えるインパクトを想定すると、このように長距離輸送されてきた炭素性エアロゾルの監視は今後非常に重要になると考えられる。

(3) 中国における大気汚染物質・エアロゾルの地上・航空機観測

① 航空機観測によるガス状成分測定

中国の北京・天津周

辺及び渤海湾上空に

おいて平成18年4月9

日～5月1日大気汚染

物質の航空機観測を

行った。地上付近にお

けるCO は非常に高く、

3～4ppm に達した。また

SO₂ 濃度やNO_x 濃度

も高く、最高で前者が

70ppb、後者が40ppb

に達していた(図15)。

しかし、オゾン濃度は

相対的に低かった。また、

過去に上海周辺で行った

April 17, 2006

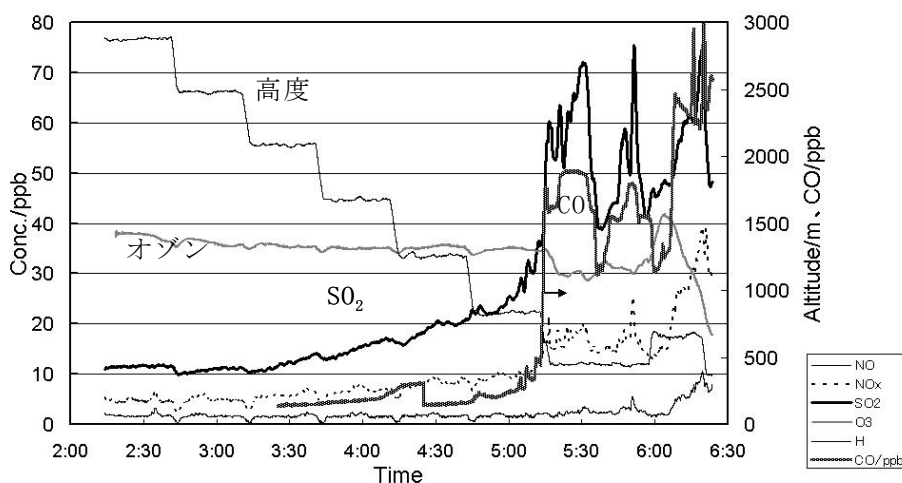


図15：2006年4月17日の観測におけるガス状汚染物質の濃度変化。

O₃ vs NO_x 060422 (<1200 m)

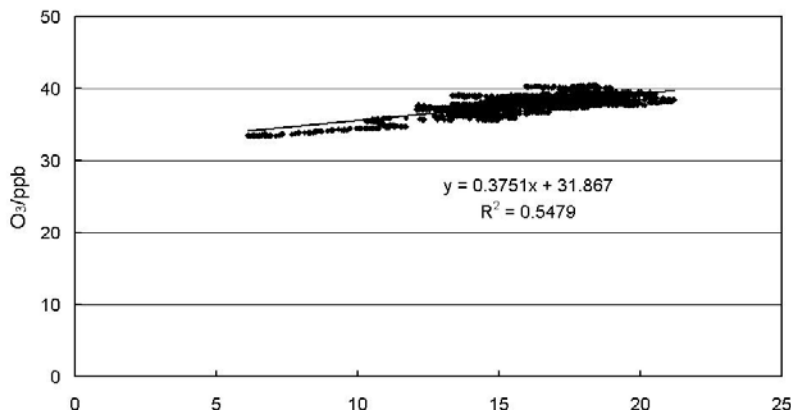


図16：2006年4月22日の観測におけるオゾンとNO_xの相関。

観測ではNO_x とオゾンの間に明瞭な負の相関が見られ、発生源近傍の気塊の特徴が明瞭であったが、今回の観測ではそのような明瞭強い負の相関は見られなかった(図16)。

② 航空機観測でのエアロゾルイオン成分

一方、エアロゾル化学成分を見ると、図17に示したように、NH₄⁺よりもCa²⁺が高濃度を示すケースが多い。特に4月18日には日本で黄砂が観測されており、4月17日のCa²⁺の高濃度は中国国内における黄砂の影響を強く受けていたものと思わ

れる。これまでの中国国内における観測ではほとんどの場合、 NH_4^+ のほうが Ca^{2+} よりも高濃度を示したが、今回の結果は黄砂の影響を強く受けていたといえる。

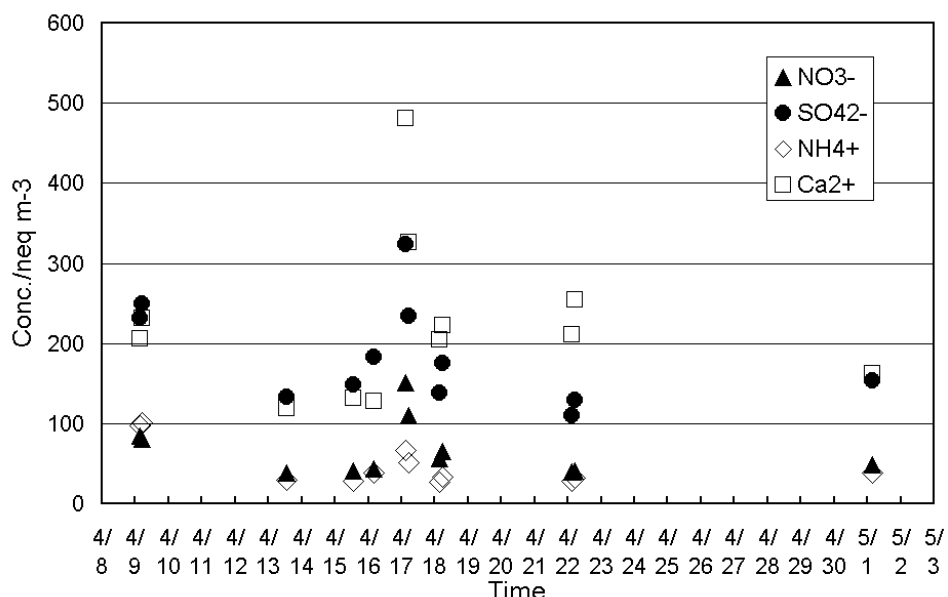


図17：北京・天津周辺における航空機観測で測定されたエアロゾル化学成分濃度

③中国地上観測でのエアロゾルイオン成分

中国の大連および青島での地上観測におけるエアロゾルイオン成分の濃度は、両地域の特性を如実に表していて興味深い。これまでの我々の観測では、中国の中部以南および西部において、エアロゾル中の陽イオン成分としては NH_4^+

が最も高く、これが SO_4^{2-} とほぼ1:1で存在していた。しかし今回の観測では、4月7日、4月18日など黄砂が報告されている日以外でも大連においては Ca^{2+} 濃度の方が NH_4^+ 濃度より高かった(図18a)。一方青島においては上記両日及び4月22日などの黄砂イベント日でも、 Ca^{2+} は高いものの NH_4^+ がこれを上回っており、大連とは逆の傾向であった(図18b)。

後方流跡線解析を行うと、大連には主に北西部の黄砂発源地周辺から気塊が到達しているのに対して、青島には中国中東部から気塊が到達しており、それぞれ黄砂の影響とアンモニア発生地帯の人為的エアロゾルの影響を受けやすい状態であったことがわかった。

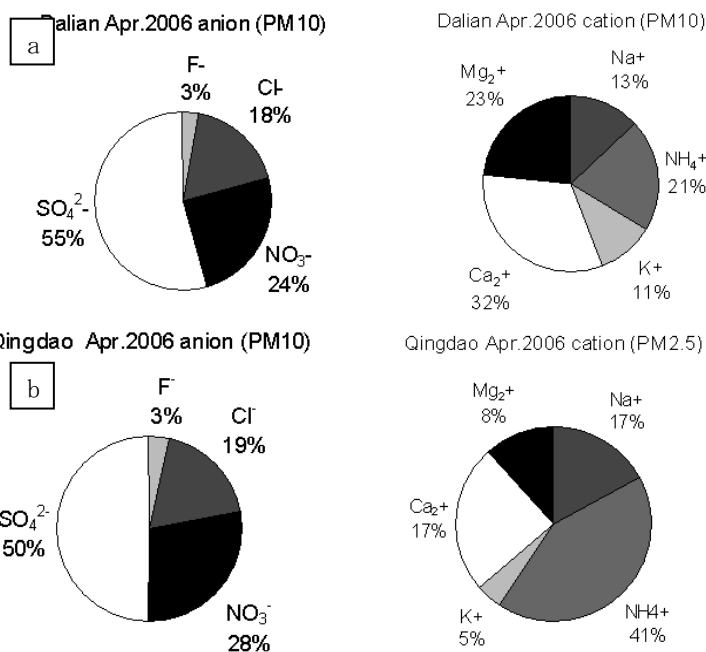


図18: 大連(a)および青島(b)で捕集されたエアロゾル中の化学成分の割合。

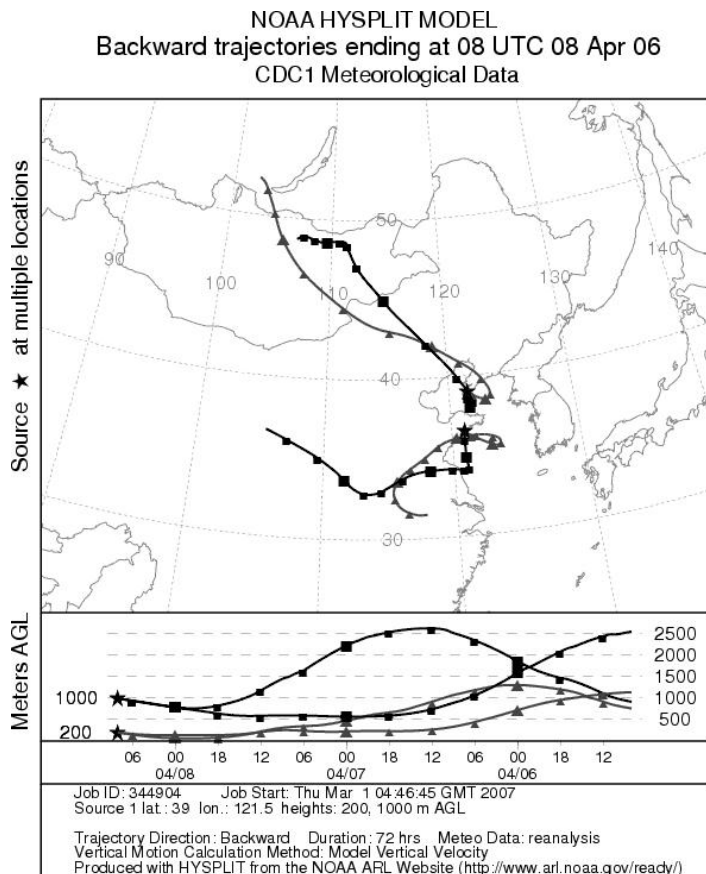


図19：2006年4月8日8時（国際標準時）に大連及び青島に到達した気塊の後方流跡線（NOAA Hysplitによる）。

4月8日について後方流跡線解析を行うと（図19）、大連には主に北西部の黄砂発源地周辺から気塊が到達しているのに対して、青島には中国中東部から気塊が到達しており、それぞれ黄砂の影響と人為的なエアロゾルの影響を受けていたことが明らかである。

また、4月18日には日本に黄砂が飛来し、北京においてもその影響が見られるのに対して、大連ではあまり影響が見られず、後方流跡線解析も1000mでは北西の黄砂発源地域から来ているのに、500m以下の地表付近は海から気塊が到達しており、その違いが出ている可能性がある。

4月中黄砂イベントの報告されているときに、青島でもほぼ同期して高濃度エアロゾルが出現しているが、いずれの時もカルシウム濃度などは高くなり、人為的なエアロゾルの影響が強い。

(4) 新潟巻酸性雨測定局における大気中のガス状および粒子状成分の濃度変動

越境大気汚染の解明のために、日本海側に面した新潟巻酸性雨測定局にお

ける大気中のガス状および粒子状成分の濃度変動を明らかにし、その濃度変動要因を明らかにすると同時に酸性雨長距離輸送モデルの検証データを集積した。10ライン・グローバルサンプラーを用いて、日単位で粒子状およびガス状大気汚染物質を捕集して、化学分析により SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NH_4^+ （粒子状成分）、 SO_2 、 HNO_3 、 NH_3 （ガス状成分）の濃度変動を明らかにした。

①大気濃度の時間変動

図20に2005年8月から2006年7月における主な成分の週間値（■：中央値、○：最高値、△：最低値）を示す。

1) 季節変動

SO_2 を除いた非海塩成分では、夏期の濃度が高く、冬期に低濃度となる傾向がみられた。 SO_2 に関しては大きな季節変動はみられなかった。 Na^+ をはじめとする海塩成分は、冬期に高濃度となり、日本海からの海塩の影響が大きいことが分かる。非海塩成分については、12月に月平均値が低くなった。これは、例年に比べ降雪量が多かったため、雪に取り込まれたことによるものと考えられる。7月も、集中豪雨により降水量が多く、低濃度となる結果が得られた。

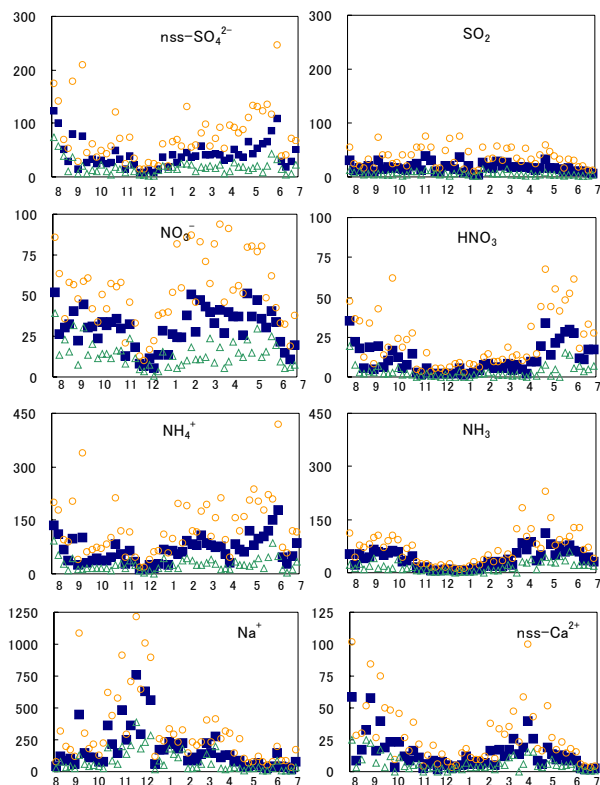


図20: 主な成分の濃度変動 単位: nmol

2) 日変動

2005年8月から2006年7月の日別値における nss-SO₄²⁻ の最高値は247、中央値は30.2、SO₂については、最高値は75.5、中央値は17.4nmol m⁻³であった。nss-SO₄²⁻ の日変動幅は大きく、高濃度のピークは夏季に多くみられた。それに対し SO₂は、変動幅はnss-SO₄²⁻ に比べると小さいが、冬季でも高濃度のピークがみられ、硫黄酸化物 (SO₂+nss-SO₄²⁻) に対し冬季にガスの割合が大きくなっていった。NH₄⁺ は、nss-SO₄²⁻ と同様の挙動を示し、各月の月間最高値は全て同じ日だったことから、nss-SO₄²⁻ と共に移流してきていることが示唆された。nss-Ca²⁺ は、4月に黄砂に伴うピークがみられた。

② 後方流跡線解析

図21に示したようにnss-SO₄²⁻ とSO₂ は、中国大陸・朝鮮半島地域 (エリア3) を通過した気団が移流してきた場合の濃度が最も高かった。NO₃⁻、NH₄⁺ もnss-SO₄²⁻ と同様にエリア3 から、HNO₃、

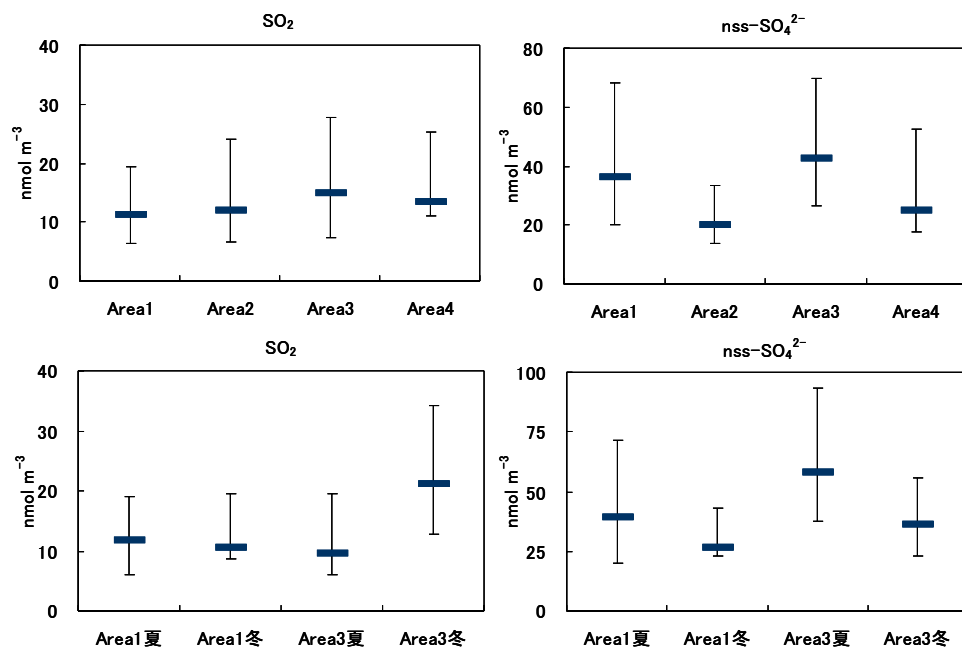


図21: 気団の流入経路と成分濃度の関係 (硫黄酸化物)
 75% 中央値 25%
 エリア1: 太平洋・日本周辺
 エリア2: 中国北部・ロシア

NH₃については、日本周辺 (エリア1) からの気団が流入した場合が最も高濃度であった。これは、ガスは滞留時間が短いため近傍の発生源の影響が大きく、また、輸送過程で光化学反応などにより粒子化されるため、長距離輸送の影響は粒子で顕著であるためと考えられ

た。さらに、夏季 (4-9月)、冬季 (10-3月) の比較から、nss-SO₄²⁻ は夏季、SO₂ は冬季にエリア3 から気団が流入した場合に濃度が高いことが明らかになった。このことから、大陸由来の硫黄酸化物は季節を問わず、日本海側に輸送されており、夏

には粒子化され ss-SO_4^{2-} として到達するのに対し、冬期は SO_2 のまま輸送されていることが示唆された。この理由としては、夏は気温が高いため粒子化する反応速度が速く、冬は反応速度が小さいため未反応のまま到達していることが考えられた。

(5) 東アジア地域におけるソース・リセプターモデルの精緻化

地域気象モデルRAMS (Regional Atmospheric Modeling System) と結合した化学物質輸送モデルCMAQ (Community Multiscale Air Quality) を用い、①観測キャンペーンACE-Asiaにおける炭素粒子の発生源地域別寄与、②冬季に九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響、③日本周辺域の酸性沈着に対する越境汚染の寄与、を評価することを目的とした3種類のソース・リセプター解析を実施した。

① 観測キャンペーンACE-Asiaにおける元素状炭素粒子の発生源地域別寄与

ACE-Asia (Asian-Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment) 集中観測期間中である2001年3-4月の元素状炭素 (EC) の東アジア域における動態を解析し、ソース・リセプターマトリックスを作成した。最初に、シミュレーション結果を実測データと比較することによりモデルの有効性を検証した。CMAQによってシミュレートされた EC は、日本の離島や周辺海上で観測された濃度の基本的な特徴を再現する (図22)。シミュレーションの結果を用いて、2001年3-4月の東アジアにおけるECの平均濃度分布と発生源寄与を明らかにした。3-4月の平均濃度は、地上において風の収束域となる中国南西部で $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え最も高濃度になり、中国沿岸部や朝鮮半島、日本でも濃度は高い。また中国北東部沿岸から朝鮮半島や日本海においては大陸からの流れ出しが顕著である。このように、中国南西部の内陸地域においてECが高濃度となり、その長距離輸送によって日本海や日本、朝鮮半島におけるEC濃度も上昇することが示された。また、①日本の地上におけるECにおいて、国内の排出寄与は46%、中国の排出寄与は37%であり、中国の影響が大きいこと、②中国東・中部から排出されたECは、北朝鮮、韓国、日本におけるECの地上濃度に対して大きく影響を与えること、などが分かった (表 2)。更に、ACE-Asia観測キャンペーンにおいて観測船ロン・ブラウンによって観測された海洋上の EC 濃度の発生源地域別寄与率を定量的に把握

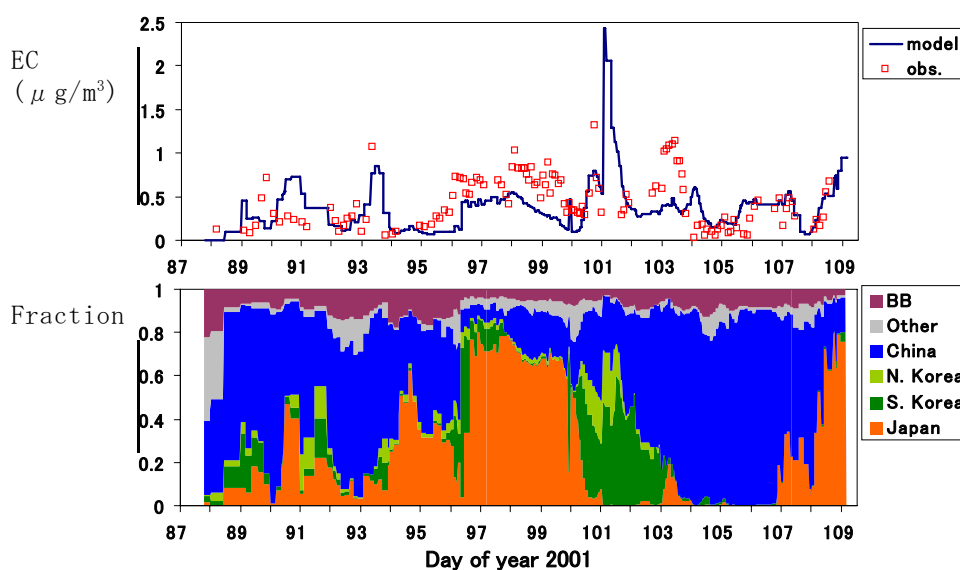
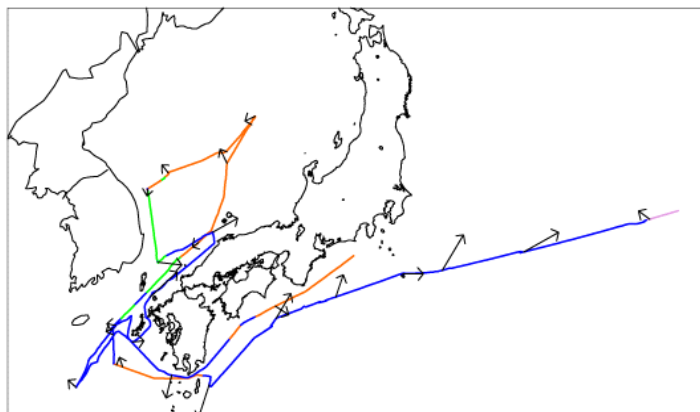


図22：観測船ロン・ブラウンで観測されたEC濃度と計算された発生源地域別割合



した（図23）。

図23：観測船ロン・ブラウン航路上のEC濃度の主要発源地域（カラーは図22下段と同じ）

表2 EC濃度のソース・リセプターマトリックス

Receptor region	BB ^{a)}	Source region of fuel combustion									
		Japan	S. Korea	N. Korea	China				SE Asia	Other	
					Eastern	Central	Western	All			
Japan	6	46	5	3	16	18	3	37	1	2	
S. Korea	5	1	41	11	24	14	2	40	1	2	
N. Korea	4	0	4	41	28	18	3	48	0	2	
China	Eastern	6	0	1	1	60	26	3	88	2	2
	Central	7	0	0	1	15	63	8	87	4	1
	Western	9	0	0	0	3	17	51	72	19	1
	All	7	0	0	1	30	39	15	84	7	1
SE Asia	19	0	0	0	2	3	1	6	73	1	
Other	14	6	4	4	25	25	5	55	11	6	
All domain	11	3	2	2	17	27	18	62	18	2	

②冬季に九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響

1999年2月前半に九州地域で観測された高濃度エピソードを対象に、東アジアにおける硫黄化合物（SO_x）と窒素化合物（NO_y）の動態をシミュレーションし、北京と上海からの寄与を解析した。モデルは、九州地域の地上や東シナ海上の航空機による観測結果の変動の特徴をほぼ再現する（図24）。シミュレーションから、7～11日に九州地域で観測された高濃度は、中国の東部沿岸域で発生した高濃度汚染気塊が輸送されたためであることが明らかとなった。この中国東部沿岸域における高濃度汚染の発生と西日本への長距離輸送には、東シナ海上の移動性高気圧が重要な役割を果たしており、この時の移動性高気圧は東シナ海上に約4日間存在したことから、九州地域の高濃度も7～11日に及んだと考えられる。北京と上海から排出されたSO₂とNO_xが西日本の大気質に与える影響を感度解析した結果、7～11日の高濃度時には上海起源の寄与が大きく、長崎県福江島における上海起源の濃度は、SO_xで最大0.26

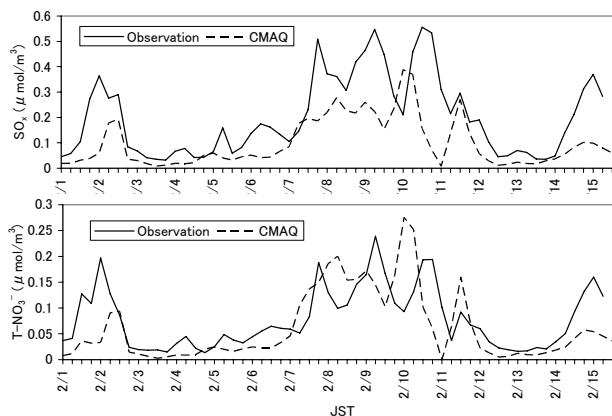


図24：福江で観測されたSO_x、T-NO₃⁻濃度とモデル計算濃度の比較

μmol/m³で最大0.26

$\mu\text{mol}/\text{m}^3$ (寄与率67%)、 NO_y で最大 $0.21\ \mu\text{mol}/\text{m}^3$ (寄与率67%)に達し、その期間平均濃度は前後の期間に比べて約7倍も高い。福江島における北京起源と上海起源の寄与は交互に1~4日間にわたって大きくなる特徴があり、東アジアスケールの気圧配置の変化に大きく影響されている。西日本における北京起源と上海起源の濃度を地域別に比較すると、 SO_x と NO_y ともに北京起源は中国地域で最も高く、上海起源は九州地域で最も高い。北京起源と上海起源を合わせた寄与率は西日本地域で SO_x 18%、 NO_y 12%に達し、北京と上海からの排出物質が西日本の大気質に大きな影響を与えていることが明らかとなった(図25)。今後の課題として、地上でモデルの硫黄化合物濃度が過小となる原因等を解明してモデルの再現性を高めることや1年間を通じた長期間での評価を行うことなどがあげられる。

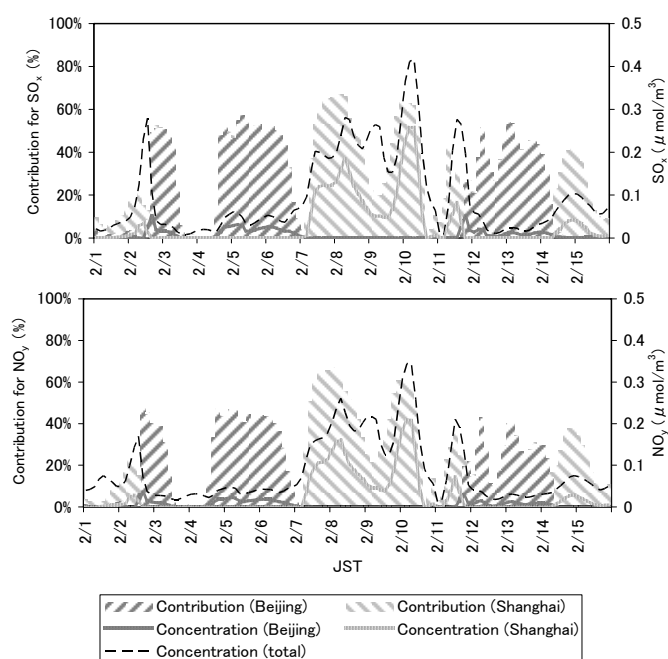


図25：福江における SO_x 、 NO_y 濃度に対する北京・上海周辺地域の寄与濃度と寄与率

③日本周辺域の酸性沈着に対する越境汚染の寄与

気象モデル(RAMS)と物質輸送モデル(CMAQ)を用いた二重ネスト計算(水平分解能：東アジア域80km、日本周辺域20km；図26)により、日本列島における酸性沈着量分布を精緻にシミュレートし、アジア大陸からの越境汚染の寄与率を評価した。ネスト計算をすることにより、降水量分布が精緻に再現され、実測分布とも良く整合する(図27)。また、酸性沈着量についても精緻な空

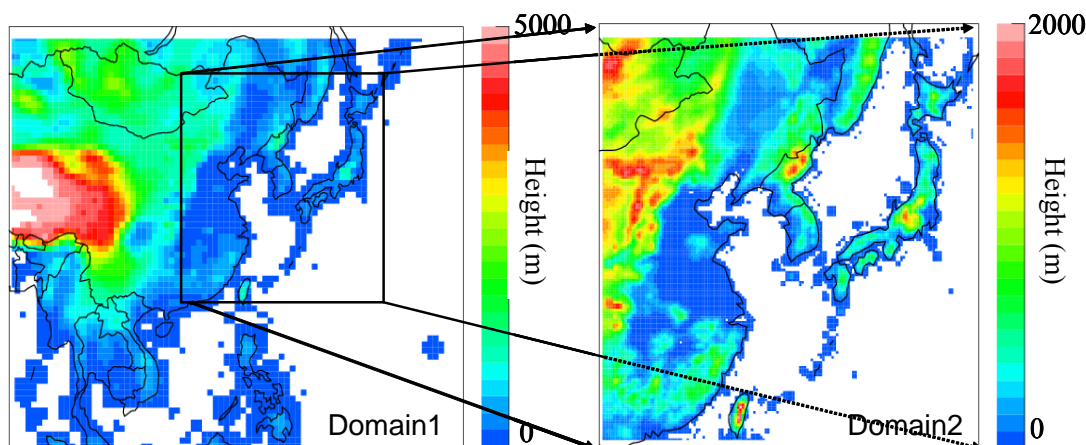


図26：モデル計算領域(色分けは標高を示す)。

間分布が再現される(図28)。1月は日本海沿岸と中部山岳西側に沈着量が多く、6月は太平洋沿岸と北関東で沈着量が多い。1月は、アジア大陸からの長距離輸送によって、日本海側の沈着量が多くなる。また、中部山岳の西部では、日本海からの流入と西日本や中部地方から輸送により沈

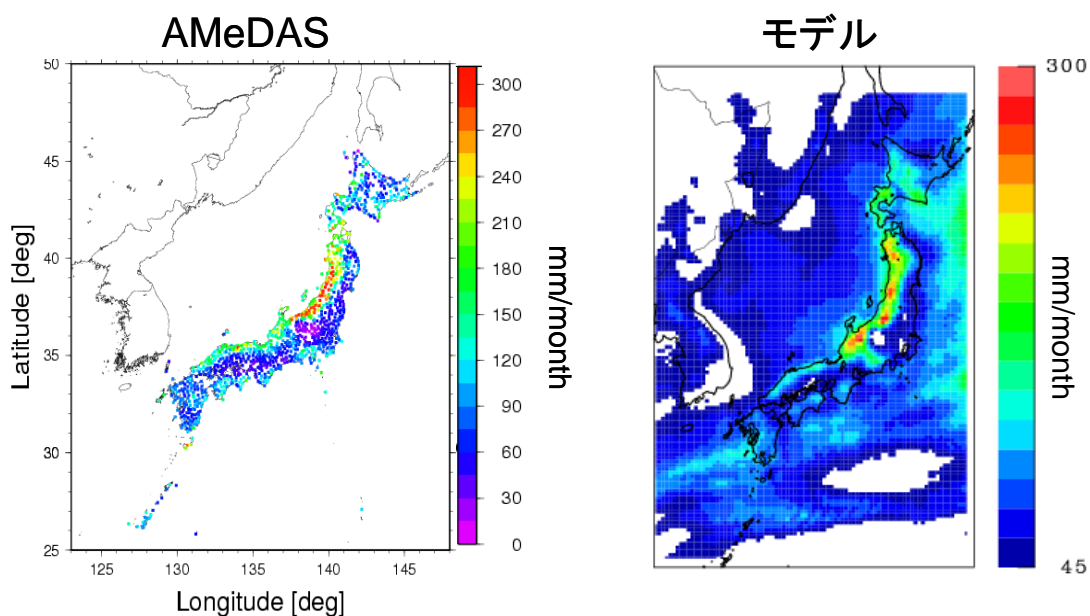


図27：2000年1月の降水量分布の観測結果とモデルの比較

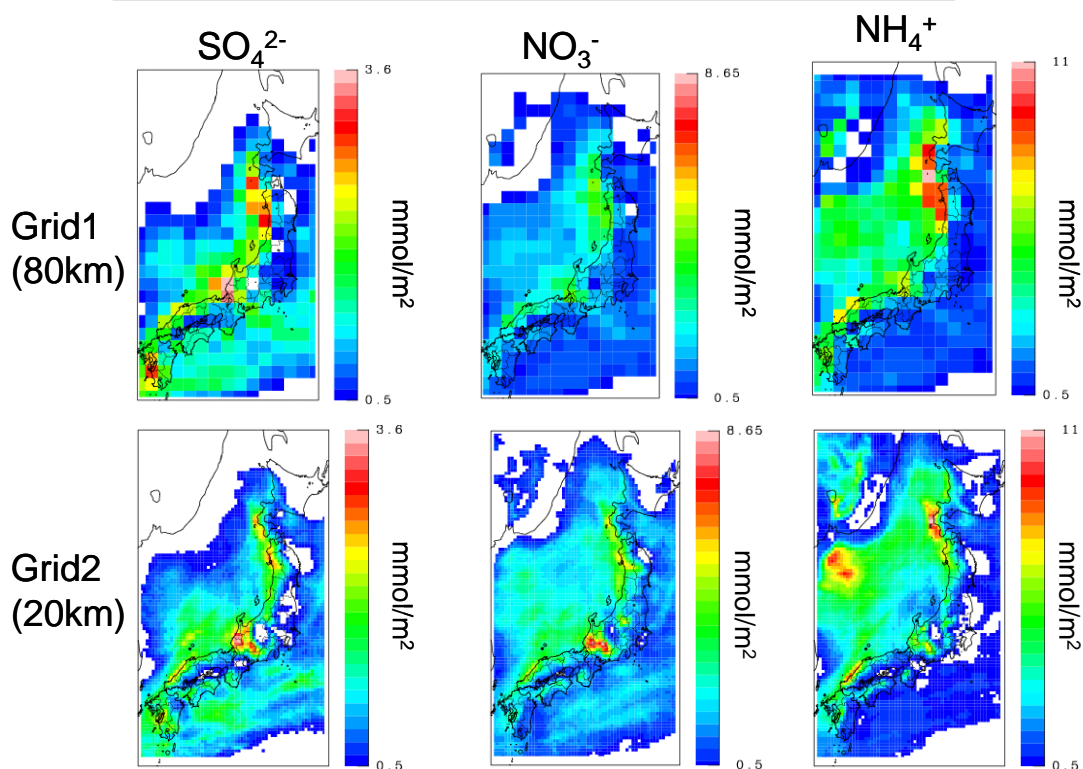


図28：2000年1月の酸性沈着量分布（Grid1とGrid2の比較）

着量が多くなる（図28）。一方、6月には、南西風による東京湾周辺域の発生源から内陸への輸送が示唆される。アジア大陸からの長距離輸送の影響を解析した結果、特に1月の日本海沿岸は、アジア大陸起源の寄与が大きく、6月の沈着量の多い地域は、国内起源の寄与が大きい（図29）。また、1月と6月における日本列島への沈着量を定量的に解析すると、越境汚染寄与率は、1月が硫黄

酸化物(SO_4^{2-}):70%、窒素酸化物(NO_3^-):64%、アンモニウム(NH_4^+):58%であり、6月は SO_4^{2-} :57%、 NO_3^- :44%、 NH_4^+ :44%であり、1月と6月ともに越境汚染の影響が大きい。このような越境汚染の寄与率は、1月は北西季節風が支配的となるため、1ヶ月を通して変化は少ない。一方、6月は梅雨前線が停滞する位置により、アジア大陸からの寄与率が大きく変わる。その要因は、梅雨前線に沿った気流の収束域のためであり、梅雨前線が九州南部に停滞する時は、九州において国内寄与が大きくなるが、梅雨前線が九州北部に移動した時は、アジア大陸寄与が九州南部で大きくなる。

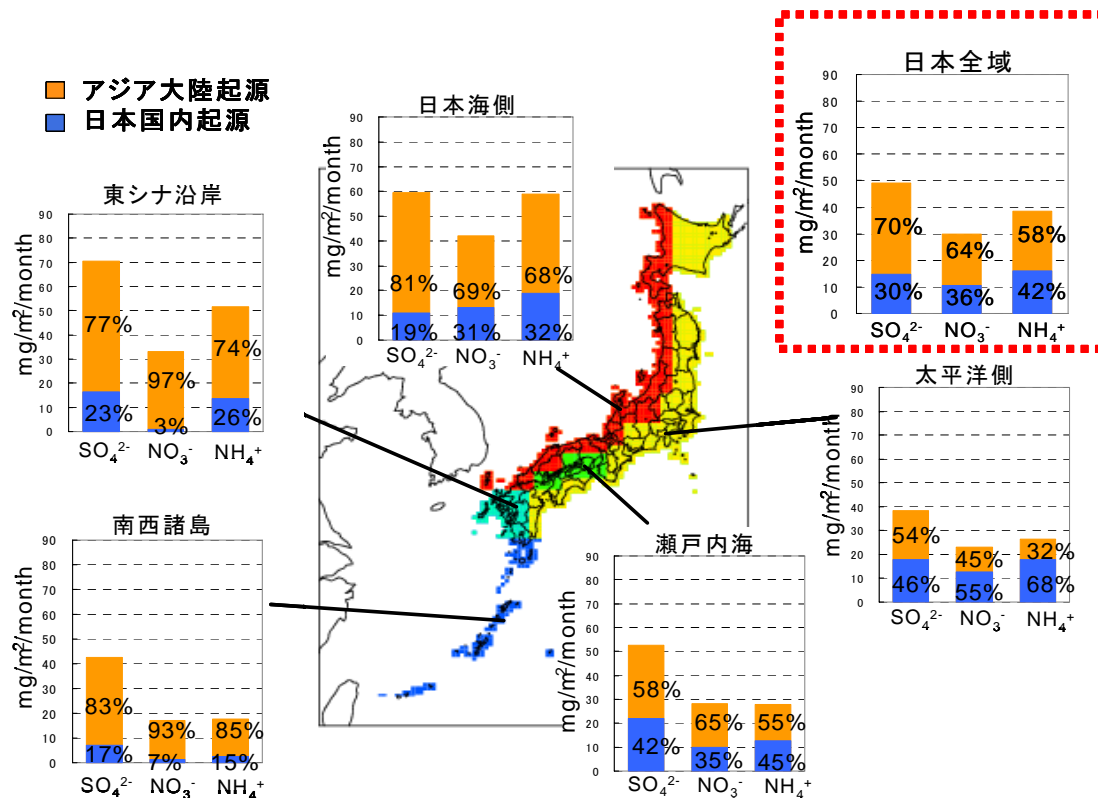


図29：2000年1月の酸性沈着量の大陸起源と国内起源の割合

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

本研究により以下のような成果をあげることができた。これらに基づき、中国から東シナ海を経て日本の南西部へ、およびロシアから日本海を経て日本の中部へ輸送される大気汚染物質・エアロゾルの解析を行う準備が、観測およびモデルの両面から整った。

1) 沖縄辺戸で初めて汚染気塊と黄砂をほぼ同時に観測した。人為起源汚染は黄砂より少し早く観測域に到達しており、これまで長崎や福江島での観測と一致した。東シナ海北部の長崎福江、南部の沖縄辺戸においてエアロゾルの化学成分を同時に観測し、組成の差、変質の過程について初めて明らかにした。微小粒子では福江では有機物成分が卓越し、南部ではサルフェートが卓越していた。辺戸のようなサルフェートが卓越するリモートな地域では、AMSの捕集効率が1であることを初めて示した。また、輸送中の化学変化を初めてラグランジュ的な観測を通じて検討した。

福江と辺戸の同期観測によって気塊が2地点間を移流する間に、SO₄が増加しSO₂が減少することを定量的に示した。また、ナイトレートは輸送時間とともに粗大粒子側に多くなることがわかった。

有機エアロゾル類の観測では代表的な粒子状の一次汚染物質であるPAH類がアジア大陸から国内にまで長距離輸送されていること、汚染輸送時には最大で国内都市域の平均レベルに匹敵する量のPAHが輸送されることを初めて明らかにした。

2) ライダーによる長期的なエアロゾルと雲の鉛直分布観測データから、大気鉛直混合状態を示す境界層上端高度の季節変動を抽出した。福江島と辺戸岬の比較においては、輸送過程の違いによる黄砂高度分布の差や、緯度の差による対流活動の違いが境界層構造に反映されていることを示した。特定のエアロゾルイベントに関しては、西日本で光化学オキシダントが検出された時期に黄砂も到来していたことを明らかにし、またユーラシア大陸北部から日本の上空へ到達した森林火災起源のプルームが炭素性エアロゾルの特徴を示す光学特性を持ち、その光学的厚さは可視波長域の放射収支に無視できない大きさであることを示した。これらの情報は、境界層内における不均一反応などの研究における参考材料としても重要な意味を持つ。

3) 中国の首都であり、大規模汚染源でもある北京の周辺で航空機観測を国際共同研究として初めて実施し、そこでのデータを取得・解析することができた。春季の4月には北京周辺では特別な黄砂イベントの時でなくても常に黄砂の影響を受けて、正イオン成分としてカルシウムが高濃度で存在していることが分かった。一方、黄砂時期であっても青島では南西からの気塊が入って人為的エアロゾルの影響を大きく受けていることが分かった。このように黄砂と同期した汚染気塊の移動とその中に含まれる化学成分の分布を中国国内で得られた意義は非常に大きい。

4) 日本海に面した新潟県での測定から、大陸由来の硫酸化物は季節を問わず、日本海側に輸送されており、夏には粒子化され $nss-SO_4^{2-}$ として到達するのに対し、冬期はSO₂のまま輸送されていることが示唆された。この理由としては、夏は気温が高いため粒子化する反応速度が速く、冬は反応速度が小さいため未反応のまま到達していることが考えられた。これらのデータはユーラシア北部からのバックグラウンド汚染の解析に有用である。

5) シミュレーションモデルRAMS/CMAQによって、日本に飛来する大気汚染物質の発生源寄与率は従来以上に中国由来のものが大きいことが示された。東アジア地域における大気汚染のダイナミクスを解明することは、同地域の大気環境構造とその変動を理解する上で重要である。

(2) 地球環境政策への貢献

1) UNEP (国連環境計画) では南アジア・東南アジアの上空にかかる密度の高いエアロゾル層 (ABC) が地球規模の気候変動にも影響を与えうることから、世界的な体制でこれを監視・研究することとし、体制を整えている。我が国でもこのプロジェクトに応分の寄与が期待されており、これに対応する体制を構築しつつある。本研究は我が国におけるABC研究の一つに位置づけられるものであり、辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーション (CHAAMS) は、モルジブおよび韓国コーサンの2つのUNEPスーパーサイトと同等の、UNEPメジャーサイトに認定され、UNEPのプログラムオフィサーら多くの外国研究者の見学を受けている。また、文部科学省の 科学技術・学術審議会研究計画・評価分科会地球観測推進部会がとりまとめた「平成19年度の我が国における地球観測の実施方針」のなかで、分野間・機関間連携の具体的施策の一つとして採用された。

2) 越境大気汚染についてのパターンを明らかにし、どのような状況で越境大気汚染がひどくなるかを高時間分解能の測定器を用いて明らかにした。越境大気汚染の科学的知見の集積により各国

の大気汚染に対する対策に資する。今後、UNEPのABCプロジェクトを通じて、成果の広報・普及に努めることで地球環境政策へ貢献する予定。

3) 本研究で利用したライダーネットワークのデータはリアルタイムでも自動処理され、黄砂成分に関してはその結果ファイルを環境省サーバーへ転送し、「環境省黄砂飛来情報」のページ (<http://soramame.taiki.go.jp/dss/kosa/>) から広く一般に公開されている他、環境省黄砂実態解明調査においても用いられている。

4) 大規模発生源地域近傍での大気汚染の状況、黄砂イベントと同期した汚染物質輸送の振る舞いが明らかとなり、ユーラシア北部からのバックグラウンド汚染のデータを含め、化学輸送モデルなどによって北半球全体に及ぶ東アジアからの大規模汚染の実態の解明を進めることが可能となった。

5) 東アジア地域の大気汚染を対象に、ソース地域とリセプター地域の関係を定量的に明らかにすることは、越境大気汚染に係る政策・対策の基礎資料となる。

6. 引用文献

Fernald, F. G. (1984), Analysis of atmospheric lidar observations: Some comments, *Appl. Opt.*, 23, 652-653.

Shimizu, A., N. Sugimoto, I. Matsui, K. Arao, I. Uno, T. Murayama, N. Kagawa, K. Aoki, A. Uchiyama, and A. Yamazaki (2004), Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE-Asia, *J. Geophys. Res.*, 109(D19), D19S17, doi: 10.1029/2002JD003253.

Sasano, Y and V. Browell(1989), Light scattering characteristics of various aerosol types derived from multiple wavelength lidar observations, *Appl. Opt.*, 28(9), 1670-1679

7. 国際共同研究等の状況

(1) 北京周辺における航空機観測および渤海湾周辺での地上観測

王瑋・中国環境科学研究院・中国、日中共同での航空機観測および青島、大連での地上観測。

(2) LTP Project、日中韓 3カ国による長距離越境大気汚染の共同観測

Sung Num Oh, Jun Seok Cha・韓国環境科学研究院・韓国、日中韓 3カ国による地上および航空機観測

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) 高見昭憲、日暮明子、三好猛雄、下野彰夫、畠山史郎、エアロゾル研究、**20**、352-354 (2005) “東シナ海日本側の北部と南部におけるエアロゾル化学組成の差異”
- 2) 井上雅路、大原利眞、片山学、村野健太郎、エアロゾル研究、**20**、333-344 (2005) “数値シミュレーションモデルRAMS/HYPACTによる東アジアにおける硫黄化合物の年間ソース・リセプター解析”
- 3) 畠山史郎、高見昭憲、三好猛雄、王瑋、エアロゾル研究、**21**、147-152 (2006) “中国から東

シナ海を経て沖縄まで輸送されるエアロゾル中の化学成分の変化”

- 4) 高見昭憲、今井孝典、清水厚、松井一郎、杉本伸夫、畠山史郎、エアロゾル研究、 **21**, 341–347 (2006) “沖縄辺戸で観測された人為起源エアロゾルと黄砂の輸送”
- 5) Aikawa, M., Hiraki, T., Tamaki, M., Kasahara, M., Kondo, A., Uno, I., Mukai, H., Shimizu, A., and Murano, K., *Environ. Monitoring Assessment*, **122**, 61–79 (2006) “Field Survey of Trans-Boundary Air Pollution with High Time Resolution at Coastal Sites on The Sea of Japan during Winter in Japan”
- 6) Wang, W., H. Liu, X. Yue, H. Li, J. Chen, L Ren, D. Tang, S. Hatakeyama, and A. Takami, *J. Geophys. Res.*, **111**, D18207, doi:10.1029/2005JD006753 (2006) “Study on acidity and acidic buffering capacity of particulate matter over Chinese eastern coastal areas in spring”
- 7) Wang G., Kawamura K., Hatakeyama, S., Takami, A., Wang, W., *Environ. Sci. Technol.*, **41**, 3115–3120 (2007) “Aircraft Measurement of Organic Aerosols over China”
- 8) Takami, A., Miyoshi, T., Shimono, A., Kaneyasu, N., Kato, S., Kajii, Y., Hatakeyama, S., *J. Geophys. Res.* **112** D22S31, doi:10.1029/2006JD008120 (2007) “Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation”
- 9) Zhang, Q., , Jimenez, J.L., Canagaratna, M.R., Allan, J.D. Coe, H., Ulbrich, I., Dzepina, K., Dunlea, E., Docherty, K., DeCarlo P.F., Salcedo D., Alfarra, M.R., Sun, Y.L., Onasch, T. , Jayne, J.T., Takami, A., Miyoshi, T., Shimono, A., Hatakeyama, S., Takegawa, N., Kondo, Y., Schneider, J, Drewnick, F., Weimer, S., Demerjian, K., Williams, P., Bower, K., Middlebrook, A.M., Bahreini, R., Cotrell, L., Griffin, R., Rautiainen, J., Worsnop, D.R., *Geophys. Res. Lett.* , **34**, L13801, doi:10.1029/2007GL029979 (2007) “Oxygenated Species Dominate Organic Aerosols in Anthropogenically- Influenced Northern Hemisphere Mid-latitudes”
- 10) Suthawaree, J., Kato, S., Takami, A., Hatakeyama, S., Kadena, H., Togushi, M., Tomoyose, N., Yogi, K., Jaffe, D., Swartzendruber, P., Prestbo, E., Kajii, Y., 大気環境学会誌, **42**, 350–360 (2007) “Influence from long-range transport of Asian outflow during an intensive measurement campaign at Cape Hedo, Okinawa, in spring 2004”
- 11) 佐藤圭、田中友里愛、李紅、小川志保、畠山史郎、地球化学、 **41**(4)、125–133 (2007) “沖縄辺戸岬における有機エアロゾルの組成と季節変化：2005–2006年に観測された多環芳香族炭化水素”
- 12) Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., Murano, K., *Atmos. Environ.*, **41**, 3428–3439 (2007) Development of multiple-species 1 km x 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan”
- 13) 片山学、大原利眞、鶴野伊津志、村野健太郎、畠山史郎、大気環境学会誌、**42**、175–187 (2007) “冬季・九州地域で観測された高濃度エピソードに対する中国メガシティの影響”
- 14) Suthawaree, J., Kato, S., Takami, A., Hatakeyama, S., Kadena, H., Togushi, M., Tomoyose, N., Yogi, K., Kajii, Y., Observation of ozone and carbon monoxide at Cape Hedo, Japan: Seasonal variation and influence of long-range transport, *Atmos. Environ.* (In press)

- 15) Takiguchi, Y., Takami, A., Sadanaga, Y., Lun, X., Shimizu, A., Matsui, I., Sugimoto, N., Wang, W., Bandow, H., Hatakeyama, S., Transport and transformation of total reactive nitrogen over the East China Sea, *J. Geophys. Res.*, doi10.1029/2007JD009462 (In press)
- 16) 片山学、大原利眞、鶴野伊津志、原宏:大気環境学会誌、**43**、日本のSO₄²⁻沈着量における経年変動のモデル解析 (印刷中)

<その他誌上発表 (査読なし) >

- 1) 畠山史郎、国立環境研究所ニュース、**24**, No. 4、14-15 (2005) “国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションの開設”
- 2) 畠山史郎、エアロゾル研究、**20**、No. 3、262 (2005) “国立環境研究所辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションの開設のお知らせ”
- 3) Hatakeyama, S., “Measurements of Aerosols Transported from the East Asia at Cape Hedo Atmosphere and Aerosol Monitoring Station (CHAAMS) in Okinawa”, Proc. 8th International Symposium on Building and Urban Environmental Engineering (held in Tokyo July, 2006), 21-24 (2006).
- 4) Hatakeyama, S., A. Takami, W. Wang, “Aircraft Observations of Air Pollutants around Large Cities in China”, Proc. 8th International Symposium on Building and Urban Environmental Engineering (held in Tokyo July, 2006), 45-49 (2006).
- 5) Arao, K., M. Nishikawa, S. Hatakeyama, A. Takami, S. Matsuyama, and T. Hayasaka, *J. Environ. Studies, Nagasaki University*, **9**, 23-30 (2006) “Atmospheric turbid conditions due to fine particles in recent years at Nagasaki, Japan”
- 6) 高見昭憲、国立環境研究所ニュース、**25**(6)、7-9 (2006)、沖縄で微粒子を測る。
- 7) 村野健太郎、環境技術、**35**、806-811 (2006) “世界の酸性雨・越境大気汚染問題と国内研究の動向”
- 8) 村野健太郎、発生源インベントリーの開発—大気汚染物質はどこでどのくらい発生しているか—、国立環境研究所ニュース、**26**(1)、6-8 (2007)。

(2) 口頭発表 (学会)

- 1) 畠山史郎、高見昭憲、田中友里愛、鈴木涼太、王璋、「SO₄/NH₄の水平および垂直分布」第11回大気化学討論会 (2005)。
- 2) A. Takami, T. Miyoshi, A. Shimono, S. Hatakeyama, “Aerosol chemical composition measured at Cape Hedo, Okinawa using the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer”, ABC-EAREX 05 Workshop (2005)。
- 3) 高見昭憲、三好猛雄、下野彰夫、畠山史郎、「長崎県福江島と沖縄県辺戸岬で測定したエアロゾルの化学組成に関する研究」、第22回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2005)。
- 4) A. Takami, T. Miyoshi, A. Shimono, and S. Hatakeyama, “Aerosol chemical composition measured by AMS at Cape Hedo, Japan”, European Aerosol Conference, Ghent, Belgium, (2005)。
- 5) 畠山史郎、高見昭憲、「沖縄辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションの建設とエアロゾル

- の観測」, 第46回大気環境学会 (2005).
- 6) 三好猛雄、高見昭憲、下野彰夫、畠山史郎、「春季における長崎県福江島および沖縄県辺戸岬での大気中エアロゾル観測」, 第46回大気環境学会 (2005).
 - 7) J. Suthawaree, S. Kato, Y. Kajii, A. Takami, S. Hatakeyama, M. Togushi, Y. Tomoyose, K. Yogi, "Characteristic of atmospheric carbon monoxide and ozone at Okinawa", 第46回大気環境学会 (2005).
 - 8) S. Hatakeyama, "Spatial distribution of atmospheric aerosols in East Asia", Int. Symp. Atmospheric Environmental Impacts of Aerosols in East Asia, Kyoto (2005)
 - 9) A. Takami, T. Imai, T. Miyoshi, A. Shimono, and S. Hatakeyama, "An analysis of organic components in fine aerosol observed at Hedo, Okinawa", Int. Symp. Atmospheric Environmental Impacts of Aerosols in East Asia, Kyoto (2005) .
 - 10) 畠山史郎、高見昭憲、三好猛雄、王璋、「東アジアから東シナ海・沖縄に輸送される大気汚染物質・エアロゾルの観測」、日本地球化学会第52回年会 (2005).
 - 11) 北和之、瀬戸崇史、近藤豊、竹川暢之、宮崎雄三、小池真、畠山史郎、「東アジアから輸送された汚染気塊中における微小エアロゾル無機成分の変化」、日本気象学会2005年度秋季大会 (2005).
 - 12) N. Tanimoto, T. Ohara, I. Uno, M. Uematsu and S. Sugata, "A One-Year Simulation of Carbonaceous Aerosol in East Asia during 2001", The 16th Regional Conference of Clean Air and Environment in Asian Pacific Area, Tokyo (2005) .
 - 13) T. Ohara, M. Inoue, M. Katayama, K. Murano, "Annual source-receptor relationships of sulfur and nitrogen oxides in East Asia using a regional transport modeling system coupled with a meteorological model", Acid Rain 2005 7th International Conference on Acid deposition, Prague - Czech Republic (2005) .
 - 14) 北和之、瀬戸崇史、近藤豊、畠山史郎、「東アジア汚染気塊の輸送中の無機エアロゾル組成の変化」, 第16回大気化学シンポジウム (2006).
 - 15) 今井孝典、高見昭憲、三好猛雄、下野彰夫、加藤俊吾、梶井克純、畠山史郎、「沖縄辺戸岬で観測したエアロゾル炭素成分の季節変動と気塊履歴依存性」、第16回大気化学シンポジウム (2006).
 - 16) S. Hatakeyama, "An Outline of Cape Hedo Atmosphere and Aerosol Monitoring Station (CHAAMS) and Measurements of Chemical Components of Aerosols in CHAAMS", International Workshop on Regional Atmospheric Environment Monitoring and Long Range Transport, Taipei, Taiwan (2006) .
 - 17) S. Hatakeyama, "An Outline of Cape Hedo Atmosphere and Aerosol Monitoring Station (CHAAMS) and Measurements of Chemical Components of Aerosols in CHAAMS", International Workshop on Regional Atmospheric Environment Monitoring and Long Range Transport (2006) .
 - 18) 畠山史郎、今井孝典、滝口善洋、高見昭憲、「沖縄辺戸岬におけるEC/OCの長期観測」、第23回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2006) .
 - 19) A. Takami, T. Miyoshi, S. Hatakeyama, "Difference of aerosol chemical compositions measured at northern and southern areas of East China Sea", International Aerosol

- Conference /AAAR St. Paul Minnesota, USA (2006) .
- 20) Q. Zhang, A. Takami, 他23名, “Component analysis of organic aerosols in urban, rural and remote atmospheres based on aerosol mass spectrometry”, International Aerosol Conference /AAAR St. Paul Minnesota, USA (2006) .
 - 21) S. Hatakeyama, T. Imai, T. Miyoshi, A. Takami, “EC and OC transported from northern China accompanied by Asian yellow sand dust”, Joint CACGP/IGAC/WMO Symposium “Atmospheric Chemistry at the Interfaces 2006” (2006) .
 - 22) 高見昭憲、倫小秀、疋田利秀、下野彰夫、畠山史郎、「福江・辺戸におけるAMSを用いた同期観測」、第23回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2006) .
 - 23) 畠山史郎、今井孝典、滝口善洋、高見昭憲、「沖縄辺戸岬におけるEC/OCの長期観測」、第23回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2006) .
 - 24) 兼保直樹、高見昭憲、畠山史郎、「東アジア・太平洋域におけるエアロゾルと関連気体成分の地球化学」、日本地球化学会第53回大会 (2006) .
 - 25) S. Hatakeyama, A. Takami, T. Imai, and Y. Takiguchi, “Changes of chemical composition of aerosols measured at Cape Hedo, Okinawa after long-range transport from the East Asia with Asian dust”, International Workshop on Regional Ecology and its Environmental Effect, Beijing (2006) .
 - 26) A. Takami, T. Miyoshi, K. Shimono, S. Hatakeyama, “Long term observation of AMS”, 7th AMS users meeting (2006) .
 - 27) 高見昭憲 畠山史郎、「東アジアにおける大気汚染物質モニタリング」、第46回大気環境学会年会、特別集会「東アジア地域の大気環境問題」 (2006) .
 - 28) 高見昭憲 畠山史郎、“Transport and chemical evolution of air pollutants in East Asia”、第13回中国大気環境学会 (2006) .
 - 29) 佐藤圭、「トルエン光酸化の室内実験で生成する二次有機エアロゾルのLC-MS分析と組成分布の決定」、日本地球惑星化学連合2006年大会 (2006) .
 - 30) シンジャワ、小野美由紀、黒田絢子、佐藤圭、小尾欣一、畠山史郎、今村隆史、「植物起源アルデヒド—3-Hexenal—の大気寿命決定」、第12回大気化学討論会 (2006) .
 - 31) 李紅、佐藤圭、畠山史郎、「2004年に沖縄で観測されたエアロゾル中のn-アルカン類の組成分布と季節変化」、日本地球化学会第53回年会 (2006) .
 - 32) 田中友里愛、佐藤圭、畠山史郎、「2005年冬に沖縄で観測された多環芳香族炭化水素類の分析」、日本地球化学会第53回年会 (2006) .
 - 33) 佐藤圭、畠山史郎、今村隆史、「トルエンの光酸化で生成するエアロゾル組成の初期NO_x濃度依存」、第17回大気化学シンポジウム (2006) .
 - 34) N. Sugimoto, A. Shimizu, I. Matsui, X. Dong, J. Zhou, X. Bai, C.-H. Lee, S.-H. Yoon, H. Okamoto, I. Uno, Network observations Asian dust and air pollution aerosols using two-wavelength polarization lidars, 23rd Int. Laser Radar Conf., (2006) .
 - 35) 杉本伸夫、清水厚、松井一郎、亀井秋秀、柴田隆、村山利幸、関口美保、Muller D.、「ライダー(レーザーライダー)が捉えた東アジアのエアロゾルの動態と性状」、AIEシンポジウム「エアロゾルの大気環境影響」 (2006) .

- 36) 片山学、大原利眞、鶴野伊津志、山地一代、黒川純一、「東アジアにおける酸性沈着の長期シミュレーション」、第47回大気環境学会年会 (2006) .
- 37) 谷本直隆、大原利眞、鶴野伊津志、植松光夫、菅田誠治、「東アジアスケール大気質モデルによるEC発生源寄与の解析」、第47回大気環境学会年会 (2006) .
- 38) 大原利眞、谷本浩志、「東アジア地域における大気環境問題の特徴と研究の必要性・緊急性」、第47回大気環境学会年会特別集会 (2006) .
- 39) 伊藤晴佳、大泉毅、武直子、村野健太郎、臼井聡、「新潟県巻におけるガスおよび粒子状成分濃度の日変動」、第47回大気環境学会 (2006) .
- 40) 大泉毅、伊藤晴佳、武直子、村野健太郎、「新潟巻におけるガスおよび粒子状成分濃度の日変動 (第2報)」第48回大気環境学会 (2007) .
- 41) A. Shimizu, N. Sugimoto, "Aerosol Retrieval with Mie-Scattering Lidar by Outward-Fernald's Method", AOGS 4th Annual Meeting (2007) .
- 42) 清水厚、杉本伸夫、「前方積分手法による地上ミー散乱ライダーデータの解析」、第25回レーザーセンシングシンポジウム (2007) .
- 43) A. Takami, X. Lun, A. Shimono, S. Yonemura, W. Wang, S. Hatakeyama, Transformation of Aerosol Chemical Composition during Transport over East China Sea, IUGG 2007 (2007) .
- 44) N. Kaneyasu, A. Takami, and S. Hatakeyama, "Characteristic size distribution of sulphate aerosols influenced by Asian outflow", European Aerosol conference (2007) .
- 45) A. Takami, X. Lun, T. Miyoshi, A. Shimono, S. Hatakeyama, "Three years measurement of sulfate at Okinawa, Japan in spring period", 11J9 26th American Association for Aerosol Research(AAAR) (2007) .
- 46) 畠山史郎、高見昭憲、Wang Wei、相澤順子、「中国における大気汚染物質の航空機観測とこれに同期した地上観測 (2006年4-5月)におけるエアロゾル化学成分の特徴」、日本地球惑星科学連合2007年大会 (2007) .
- 47) 高見昭憲、滝口善洋、定永靖宗、坂東博、畠山史郎 :東アジア域における窒素系化合物の輸送と変質 日本地球惑星科学連合2007年大会 (2007) .
- 48) 濱名実、川上純一、定永靖宗、弓場彬江、竹中規訓、坂東博、高見昭憲、畠山史郎、鶴野伊津志、「沖縄辺戸岬でのNO_y、HN₃濃度の連続観測とCMAQモデルとの比較・解析」、日本地球惑星科学連合2007年大会 (2007) .
- 49) 高見昭憲、倫小秀、下野彰夫、畠山史郎、「エアロゾルの同期観測と輸送中の変質」、第24回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2007) .
- 50) 松見豊、成川正広、高橋けんし、松本淳、藪下彰啓、高見昭憲、畠山史郎、「沖縄辺戸岬におけるレーザーイオン化個別粒子質量分析計を用いた大気エアロゾル観測」、第24回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2007) .
- 51) 倫小秀、高見昭憲、三好猛雄、下野彰夫、畠山史郎、"Long-range transport of organic aerosol from continental origin to Cape Hedo, Japan", 第24回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2007) .
- 52) 畠山史郎、高見昭憲、相澤順子、Wang Wei、「2006年春の中国における大気・エアロゾルの航空機および地上観測」、第24回エアロゾル科学・技術研究討論会 (2007) .

- 53) 高見昭憲、Wang Wei、畠山史郎、「中国 舟山、武当山、峨眉山における大気汚染質の観測」、第48回大気環境学会年会 (2007) .
- 54) 畠山史郎、高見昭憲、Wang Wei、相澤順子、「中国北京・天津周辺における大気汚染物質の航空機観測と地上観測」、第48回大気環境学会年会 (2007) .
- 55) 兼保直樹、高見昭憲、畠山史郎、「アジア太平洋岸における硫酸塩エアロゾルの粒径分布」、日本気象学会2007年度秋季大会 (2007) .
- 56) 白岩 学、近藤豊、茂木信宏、L. K. Sahu、竹川暢之、高見昭憲、アジア大陸起源空気塊中の単一ブラックカーボン粒子の混合状態の測定 日本気象学会2007年度秋季大会 (2007) .
- 57) 白岩学、近藤豊、茂木信宏、L.K.Sahu、竹川暢之、高見昭憲、畠山史郎、「アジア大陸起源空気塊中のブラックカーボンの混合状態の測定」、第13回大気化学討論会 (2007) .
- 58) 相澤順子、高見昭憲、大原利眞、畠山史郎、「2006 年春季東アジア地域におけるエアロゾル化学成分の特徴ー中国と沖縄辺戸岬における観測から」、第13回大気化学討論会 (2007) .
- 59) Shankar G. Aggarwal, 北森康之, 持田陸宏, 河村公隆, 高見昭憲, 畠山史郎、「2007 年春季に沖縄辺戸岬で観測された海洋エアロゾル粒子の吸湿特性」、第13回大気化学討論会 (2007) .
- 60) 佐藤圭、畠山史郎、今村隆史、「トルエンの光酸化で生成するエアロゾル組成の初期NO_x濃度依存」、第17回大気化学シンポジウム (2007) .
- 61) 佐藤圭、「大気圧化学イオン化質量分析法による二次有機エアロゾルの既知組成分子の質量スペクトル」、日本地球惑星化学連合2007年大会 (2007) .
- 62) 成川正広、松本淳、高橋けんし、松見豊、藪下彰啓、佐藤圭、今村隆史、「シクロヘキセンのオゾン分解で生成した二次有機エアロゾルの生成機構：レーザーイオン化個別質量分析計による解析」、日本地球惑星化学連合2007年大会 (2007) .
- 63) 佐藤圭、畠山史郎、今村隆史、「トルエンの光酸化で生じる二次有機粒子：組成のNO_x依存性と反応機構の検証」、第23回化学反応討論会 (2007) .
- 64) 畠山史郎、高見昭憲、佐藤圭、滝口善洋、田中友里愛、「沖縄辺戸岬におけるエアロゾル化学成分の観測ーナイトレートの場合ー」、特定領域研究「大気海洋物質循環」シンポジウム「太平洋亜熱帯海域の大気組成と海洋起源物質ー島嶼大気定点観測と海洋観測との接点を探るー」 (2007) .
- 65) 佐藤圭、今村隆史、「イソプレンの光酸化で生成する二次有機粒子組成、第13回大気化学討論会 (2007) .
- 66) 小川志保、佐藤圭、田中友里愛、李紅、大原利眞、畠山史郎、「沖縄県辺戸岬における有機エアロゾルの組成と季節変化：2005-2006年に観測された*m*-アルカン類」第13回大気化学討論会 (2007) .
- 67) A. Takami, "Observation of ambient aerosol at Okinawa using an aerosol mass spectrometer", The 13th International Joint Seminar on Regional Deposition Processes in the Atmosphere (RDPA2007) (2008) .

(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

- 1) 読売新聞（2005年5月11日、全国版）
- 2) 日経新聞（2005年11月5日、全国版）
- 3) 常陽新聞（2005年11月9日、茨城版）
- 4) 常陽新聞（2005年11月16日、茨城版）
- 5) 常陽新聞（2005年11月23日、茨城版）
- 6) 常陽新聞（2005年12月7日、茨城版）
- 7) 週刊ポスト（2005年12月2日号）
- 8) NHKニュース（H17年9月18日、中国上空高濃度の硫黄酸化物について2分ほど紹介）
- 9) 共同通信（2006年6月8日、ウェブ版）
- 10) 朝日新聞（2006年12月12日、全国版）
- 11) 週刊プレイボーイ（2006年7月17日号、p54-57）
- 12) 週刊プレイボーイ（2006年10月23日号、p73）
- 13) 朝日新聞（2008年3月27日、全国版、次頁参照）

(6) その他

なし