

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
(3) 福江・沖縄・小笠原におけるエアロゾルの変動の観測と放射強制力の推定

独立行政法人産業技術総合研究所

環境管理技術研究部門 地球環境評価研究グループ 兼保直樹

<研究協力者> 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター 高村民雄

平成17～19年度合計予算額 10,379千円

(うち、平成19年度予算額 3,164千円)

※上記の合計予算額には、間接経費2,396千円を含む

[要旨] アジア大陸からの汚染物質の輸送・変質およびその気候影響を評価するため、中国本土を含む広域観測の一部として、配置測点のなかで輸送経路の最も東端(風下)に位置する小笠原父島、および輸送経路上にある沖縄辺戸岬においてエアロゾルの地上観測を実施した。

硫酸塩の実時間測定のために導入したSulfate Particulate Analyzer の出力値は、 SO_4 から SO_2 への変換率が不明のため、48時間捕集されたフィルターサンプルの分析値と比較することにより値付けした。2007年春季の集中観測(3～4月)では、 SO_4 の輸送イベントが高い頻度で測定され、高い濃度(最大 $20\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)かつ幅広(3日～)の輸送パターンがいくつか観測された。

そのうち、4月9～12日の輸送イベントは、黒色炭素粒子に対して SO_4 濃度割合が高く、高気圧辺縁を廻ることで海上に長く滞留したため SO_2 酸化が進行した aged な気塊であると考えられる。一方、4月16～17日の高濃度イベントは、寒冷前線の通過による大陸からの速い輸送によるものであり、辺戸では黒色炭素粒子に対する SO_4 濃度割合が7程度と低く、安定した割合を保ち、発生源地域での特徴を反映した状態での気塊が捉えられたと考えられる。この気塊が翌日には父島付近に到達するが、寒冷前線通過直後の黒色炭素粒子に対する SO_4 濃度割合は17程度と辺戸の2倍に増えており、 SO_2 からの酸化による生成が検出された。

さらに、辺戸においては、国立環境研究所によるエアロゾル質量分析計の運用に並行して低圧型インパクターにより主要エアロゾル成分の粒径分布を測定した。この結果、従来報告されている硫酸塩の粒径分布よりモード径の大きな分布が継続的に観測された。これはdroplet modeと呼ばれる雲過程を経た粒子に特有の粒径分布と類似しており、アジア・太平洋岸地域の硫酸塩エアロゾルの特徴である可能性がある。

[キーワード] 酸性物質、黒色炭素、硫酸塩、長距離輸送、実時間分析

1. はじめに

西部北太平洋域においては、Pacific Exploratory Mission (PEM)-West や Aerosol Characterization Experiment (ACE)-Asia など、大気中の微量物質輸送やその気候影響をターゲットとした大規模観測プロジェクトが次々に実施され、大気化学研究の注目地域となっている。ところが、ごく近年まで、この地域は大気化学に関する観測データの空白地帯であった。日付変更線の西側に浮かぶ

ミッドウェイ諸島と、東経145度付近を南北に連なるマリアナ諸島および北に続く小笠原諸島との間には、(マーカス島を例外として)ほとんど島のない広大な海原が横たわるのみで、観測の拠点となる島が存在しないためである。Savoie and Prospero (1989)¹⁾は、太平洋上の13の島々に設置された広大な観測網 Sea-Air Exchange (SEAREX) Program において1981年から1987年にかけて得られた観測結果をもとに、北太平洋上のエアロゾルの組成に対して人為起源の硫黄はonly small impact を持つようだと述べている。しかし、SEAREX ネットワークは、世界最大の石炭消費地域を風上に抱えるという点で重要となる中緯度偏西風帯での観測データが、ミッドウェイ島のものを除いて欠落している。

今後の大幅な経済発展が見込まれる中国およびアジア諸国からは、大気汚染物質の放出も大きく増加すると考えられる。本サブ課題研究では、発生源および偏西風の風下の各地点に配置した観測点において一次汚染物質が風下に移流拡散していく状況、および輸送過程での二次汚染物質の形成や変質を把握するという全体計画のなかで、配置測点のなかで輸送経路の最も東端(風下)に位置する小笠原におけるエアロゾルの地上観測を中心として、沖縄または福江島においても集中観測に加わり、エアロゾルの化学組成・微物理特性と光学特性を繋ぐ観測的研究を実施するものである。今後の化石エネルギー消費の増大により、アジア大陸から北西太平洋域に輸送される大気エアロゾル成分のうち、量的にもっとも顕著なものとしては硫酸(硫酸塩)エアロゾルと黒色炭素(煤、black carbon: BC)が挙げられる。前者は環境の酸性化に関与することから古くから注目され、断片的ではあるが長距離輸送のデータも国内各地の観測例が報告されている。後者もまた、都市大気汚染物質として国内の大都市域において比較的多くの観測データ(大部分は元素状炭素として)が存在する。この両物質が大陸規模の汚染の観点から注目されているのは、単にその排出量の多さのみならず、前者が最も普遍的な光散乱物質、後者が最も強力な光吸収物質であり、両者がエアロゾルの放射強制力の正・負を支配するエアロゾル単一散乱アルベドを決定する最大の原因物質であると考えられるからである。しかし、両物質の濃度については日平均値といった時間分解能の観測データが報告される例が多く、時間単位の同時観測例は当該地域ではこれまで存在しなかった。

2. 研究目的

アジア大陸から約1800 kmの距離にある小笠原父島において、黒色炭素と硫酸塩の濃度比の時間変化を高時間分解で測定し、そのものは疎水性である黒色炭素と、水溶性であり雲核活性を持つことから湿性除去を受けやすい硫酸塩の挙動の違いを明らかにする。両者の比は、二次生成物質でもある硫酸塩濃度の距離変化を考える上で、一次発生物質である黒色炭素を基準とするという観点からも必要となる。この比が、アジア大陸東岸から約800 kmの距離にある沖縄辺戸岬と約1800 kmの距離にある父島でどのように変化するのは、長距離輸送過程での硫酸塩の生成と除去の状況を解析する上での重要なデータとなる。

また、沖縄本島におけるAMS(エアロゾル質量分析計)観測地点において、インパクター・サンプリングを同時実施して、主要無機成分および有機物等のエアロゾル構成物質の粒径分布を測定し、AMSの測定データの解釈に資するとともに、エアロゾル構成物質の微物理特性や混合状態を調べる。

3. 研究方法

父島の海拔 240 m の地点において、大気エアロゾル中の black carbon (BC)濃度の一時間値を Aethalometer (Magee, AE-16U)により、散乱係数 σ_{sp} を Integrating Nephelometer (TSI, 3550)により測定している。これまでの同地での測定では、硫酸塩濃度はフィルターサンプリングにより10日平均のデータを得ていたため、個別の輸送イベントを捉えることはできなかった。そこで、空力学径 2.5 μm 以下の硫酸塩を高温で分解し SO_2 に還元し、 SO_2 計での検出を測定原理とする Sulfate Particulate Analyzer (SPA, Model-5020, TECO)を本研究費により導入した。ただし、SPAは SO_4 から SO_2 への変換(還元)効率が時間と共に低下することが問題となり、その補正を行うことが不可欠である。このため、2005年春には10日平均のPM2.5フィルターサンプルとの比較により感度補正を行ったが、2006年春季の集中観測時に感度が急速に低下していく状況が生じ、時間分解能10日の検定データでは十分に対応できなかった。そこで、2007年3月の集中観測時に2日平均でのPM2.5フィルターサンプリングを実施し、補正に用いた。さらに、硫酸塩の粒径分布について辺戸岬において低圧型インパクター(LPI)観測を2006年に実施した。この結果について、インパクション・プレート(捕集平面)の素材によって、粒子捕集特性に違いが生じ、粒径分布測定結果に影響を与える可能性も指摘されているため、最終年度である2007年の春季集中観測では、インパクション・プレートの材質として繊維質のシートに加え、平板であるアルミシートを用いた観測も実施した。

4. 結果・考察

(1) 父島における硫酸塩濃度実時間観測の開始とエアロゾル光学的特性

アジア大陸辺縁の太平洋上では、これまでの観測によりBC濃度の比較的短時間(1日～数日)の上昇が約1週間程度の間隔で繰り返されることが判明している。これは寒冷前線に引連れられた pollution front として大陸起源物質が次々と輸送されることに対応する(Kaneyasu et al., 2000²⁾)。このような pollution front によって、BCとともに人為起源の主要成分である硫酸塩が輸送される。ところが、これまでの同地での測定ではフィルターサンプリングにより10日平均のデータを得ていたため、個別の front による輸送を捉えることはできなかった。そこで、硫酸塩(空力学径 2.5 μm 以下)を高温で分解し SO_2 に還元し、 SO_2 計での検出を測定原理とするSPAを本研究費により導入した。SPAは、つくばの産業技術総合研究所において2005年7～8月の2ヶ月間試験運転を行い、所期性能の確認、ゼロ・スパンキャリブレーションの実施、各種測定パラメータの調整等を実施した。つくばでは、夏季の日中に7～8 $\mu\text{g m}^{-3}$ の最大値をみる日変化を問題なく捉えることができたが、濃度が 1 $\mu\text{g m}^{-3}$ 付近の低濃度状態での応答については当該状況が実現せず、現場での実験を待つこととなった。

2005年9月下旬に父島にSPAを設置し、28日より連続観測を開始した。図1は上段にAethalometerで測定したBC濃度、下段にSPAで測定した SO_4 濃度を示す。夏季～秋季に優勢であった海洋性気団支配下での低濃度状態から、10月21日午後以降の大陸性気団中での高汚染状態に不連続的に遷移する状況が、BC濃度と同期して SO_4 濃度の上昇として明確に捉えられた。なお、機器の故障により11月以降に欠測期間が生じ、 SO_4 濃度の連続観測は2006年2月末に開始された。

2005年の初冬季に入って最初の大規模な汚染物質輸送イベントである10月23日～29日に注目して、単一散乱アルベドおよび BC/ SO_4 重量濃度比の時系列を図2に示す。22日午前までの清浄状態では単一散乱アルベドは 0.98 程度の高い値であるが、pollution front 通過時に一旦 0.94 付近

まで低下する。

ところが物質濃度が最大となる23日未明に一旦0.98付近に戻り、その後、日中から24日にかけて徐々に再低下する状況がみられる。一回のpollution front 通過イベント内でこのような複雑な光吸収性の変動が生じる原因の一つとして、主たる光吸収物質であるBCと主たる光散乱物質である sulfate の濃度比が時間とともに変動していくことが挙げられる。BC/SO₄ 重量濃度比は pollution front 通過前は両物質とも測定限界付近の低濃度であるため不安定であるが、通過後は比較的安定した値を示しつつ0.05付近から24日未明の0.2付近まで単調に増加、単一散乱アルベドの低下傾向と対応している。単一散乱アルベドの変化に寄与する要因は、粒子状有機物の量や相対湿度変化による水溶性物質の膨潤なども存在し、上記2物質の濃度のみで規定されるわけではないが、物質濃度と単一散乱アルベドの変化の関連が時間単位で観察されたのは初めてのことである。

24日以降の濃度比は概ね0.1~0.2の間に収まっており、Kaneyasu and Murayama (2000)³⁾が船舶により北太平洋中心部の中緯度帯で観測した高濃度時の値0.11と一致している。石炭燃焼から排出されるエアロゾルの主要成分である硫酸塩および黒色炭素は、排出時には燃料中硫黄分の大部分はSO₂の形態であることから相対的にBCの比が高いが、輸送距離とともにSO₂から生成された硫酸

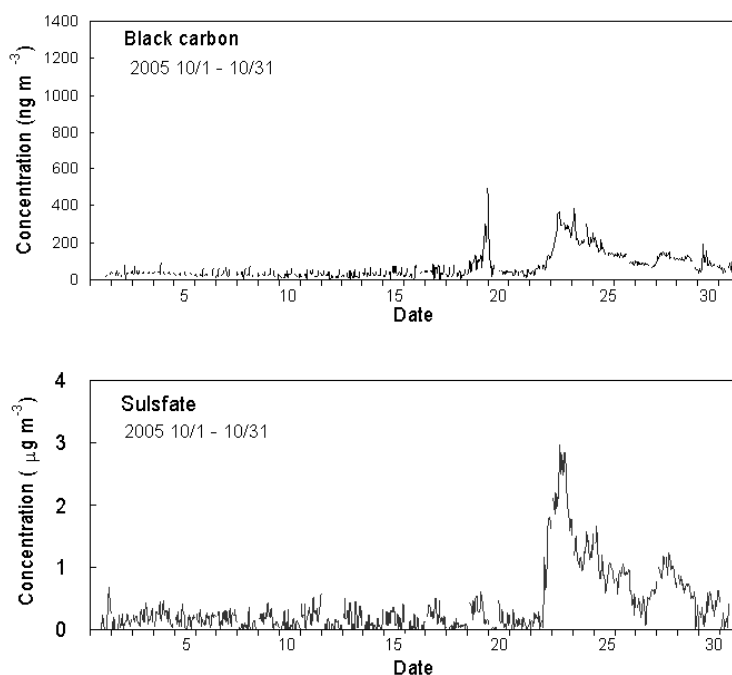


Fig.1 小笠原父島におけるblack carbon濃度(上段)およびSO₄濃度(下段)の揭示変化(2005年10月1日~31日)。

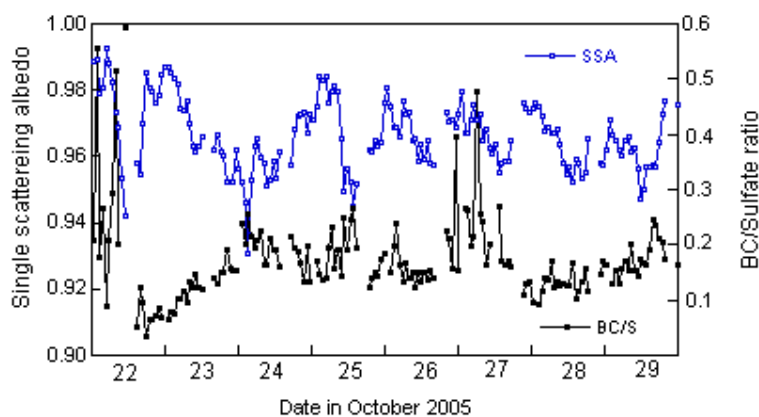


Fig.2 父島における2005年10月22~29日のエアロゾル単一散乱アルベド(左軸)とBC/SO₄重量濃度比(右軸)の時系列

塩の比が上昇すると考えられる。この点については、よりデータ数の集積がなされた2007年春のデータで検討する。

(3) 父島における硫酸塩濃度のキャリブレーション

SPAの出力生データを検定するため、2007年3月～4月の約2ヶ月間、PM2.5インレット付きのフィルターサンプラー(R&P Partisol FMR-2025Plus)により48時間平均のエアロゾルを捕集し、SPA出力の同時帯の平均値と比較したのが図3である。両者の相関は高く($R^2 = 0.97$)、 SO_4^{2-} /SPA出力値の換算係数2.71を得た。換算係数2.71は、2005年度のSPA稼働開始時(2005年10～11月)の10日平均のフィルターサンプルによる値2.53(図4)と近いが、2006年度はデータ数、散らばりの両面から信頼性の高い換算係数を得ることができた。なお、この換算係数算出には、全国的に高い濃度で黄砂が観測され、父島にも到達した3月30日～4月1日のデータは除外した。このときのPM2.5フィルターサンプルの SO_4 濃度は $12.2 \mu\text{g m}^{-3}$ と非常に高かったが、黄砂時の SO_4 は CaSO_4 態であるものの割合が大きいと予想され、SPAの測定では 1000°C での加熱によっては揮発せず、 SO_2 に変換されないと考えられる。

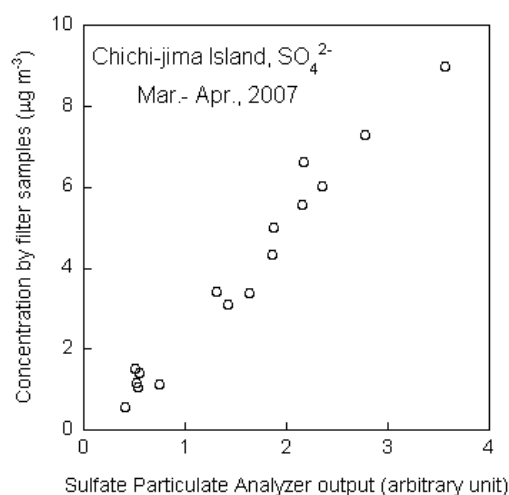


図3 小笠原父島においてPM2.5インレット付きサンプラーフィルターにより捕集された SO_4^{2-} 濃度およびSulfate Particulate Analyzer出力値の比較(2007年3月12日～4月14日)。

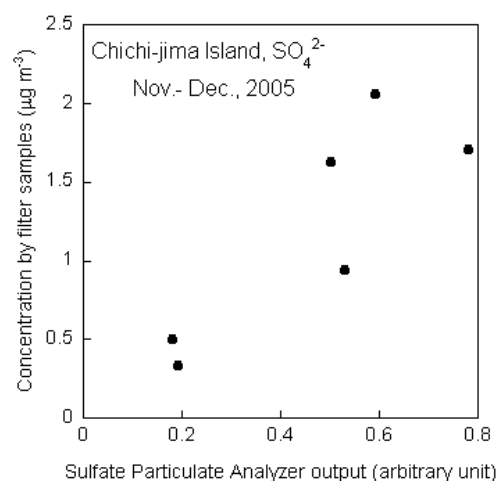


図4 同、2005年に実施した10日平均フィルターサンプルとの比較(2005年11～12月)。

(4) 2007年春季集中観測時の SO_4 および黒色炭素の濃度変動

上記の検定により補正された SO_4 濃度の実時間変動の測定値を図5に示す。濃度レベルとしては、 $0.3 \mu\text{g m}^{-3}$ 付近をベースとして、輸送イベントに最大で $20 \mu\text{g m}^{-3}$ 程度まで上昇している。大きな輸送イベントは週に1回程度みられ、3～4日間の高濃度が続く比較的幅広なものであることがわかる。また、両成分の濃度変動はほぼ完全に同期しているが、詳しく見ると3月20日からのイベント

では SO_4 の増加にBCの増加が追従しておらず、また3月30日からの黄砂イベントの後半(4月2日以降)では、 SO_4 濃度は低下傾向にあるがBC濃度は再び増加に転じている例など、両成分の挙動に違いがみられる例もある。そこで、いくつかの輸送イベントに分けて両成分の濃度の対応を検討する。

図6に示すのは、父島における集中観測時のBCと SO_4 濃度の関係である。図中で印を分けてある期間は図5下段の上部に対応する期間が示されている。これまでの数日~1ヶ月といった低い時間分解能での観測では、データがほぼ一直線上に乗った比例関係を示す図が描かれる場合が多かったが(Kaneyasu et al., 2000²⁾; Kaneyasu and Murayama, 2001³⁾; Kaneyasu and Takada⁴⁾; Matsumoto et al., 2003⁵⁾)、本研究による1時間の時間分解能で個々の輸送イベントを分離すると、イベントによって比例関係の傾きがかなり異なることがわかった。特に、図中にPeriod 2と記される3月18~25日のイベントでは、BC濃度に対して SO_4 濃度が非常に高く傾きが0.03程度となっている点が注目される。同イベントは図5上段に示されるように高気圧下で生じており、寒冷前線に引き連れられた pollution front とはパターンが異なる。考えられる形成メカニズムは、大陸から流出した汚染気塊が帯状高気圧の辺縁を回り

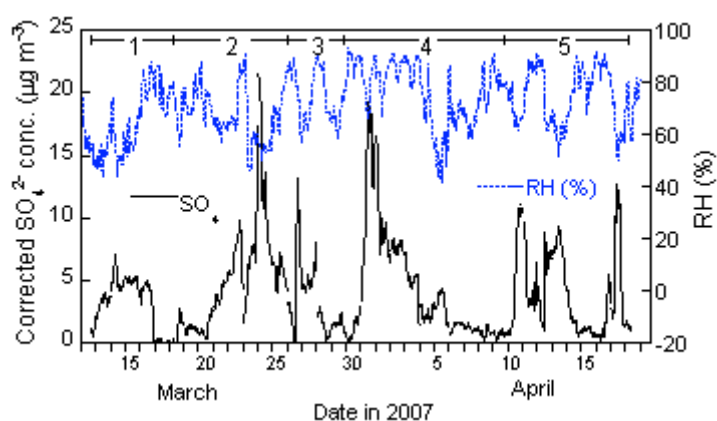
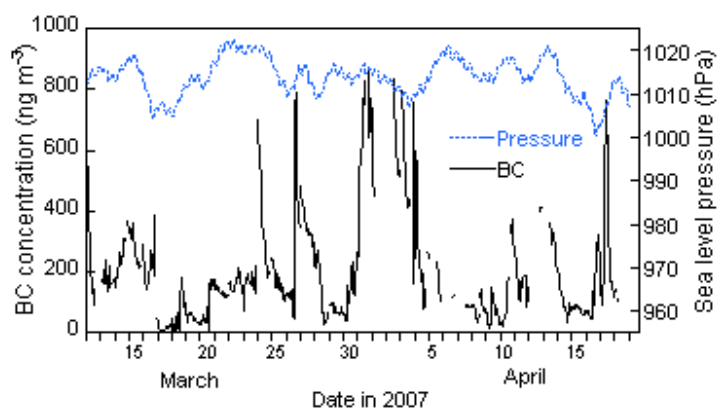


図5 小笠原父島におけるblack carbon濃度(上段)および SO_4 濃度(下段)の掲示変化(2007年3月12日~4月18日)。地上気圧および相対湿度も図中に波線で示す。

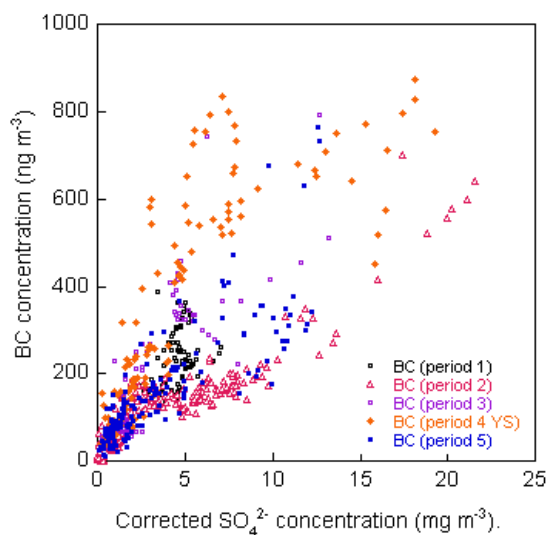


図6 小笠原父島におけるblack carbonおよび SO_4 濃度

ながら海上で長期間滞留し、 SO_2 から SO_4 への酸化が進行するという状況であり、これに似た気塊形成パターンについて、筆者らは1993年冬季の日本海で航空機観測により捉えている(Kaneyasu et al., 2000²⁾)。

(5) 2007年春の辺戸岬での観測値との比較

本研究課題の目的は、大陸上の発生源から太平洋上への輸送過程での輸送・変質プロセスを追うものであるが、現在のところ国立環境研究所辺戸岬ステーションで高見が運用するAMSによる SO_4 濃度との比較が可能である。また、千葉大高村が運用する Multi Angle Absorption Photometer(Thermo Electron. MAAP)によるBCの測定データを利用して、父島との比較を行う。なお、父島でのBC測定は Aethalometer を用いて行っており、MAAPとは類似の測定原理ではあるが、両測器による測定値には若干の差があることが知られている。そこで、2006年1月に八丈島において実施した両測器の比較実験の結果(図7)より直線回帰により換算式を求め、辺戸でのMAAPの測定値を Aethalometer 測定値相当に変換した。

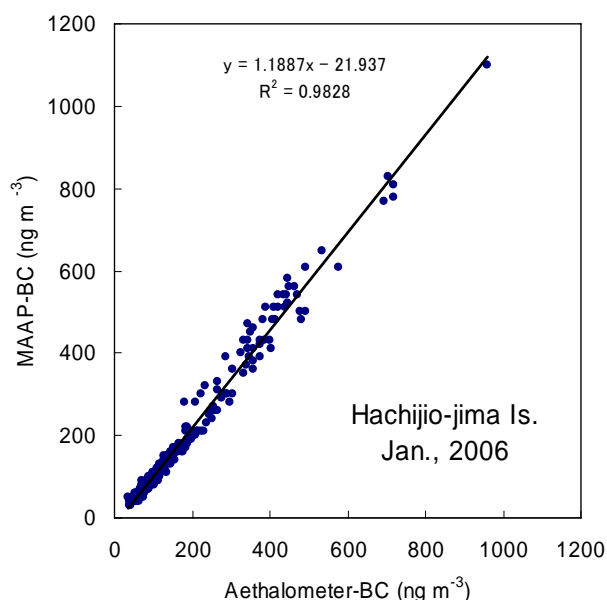


図7 八丈島におけるMAAPとAethalometerの測定値の比較

以上の計算で得られた辺戸のBC濃度およびAMSにより測定された SO_4 濃度を用いて、 SO_4/BC の濃度比を求め、2007年4月の2回の輸送イベントについて父島と比較する。まず、高気圧の辺縁周回流型の輸送パターンとして図8に4月9日の地上天気図および辺戸サイトからの後退流跡線を示す。このとき、上海付近の移動性高気圧が東シナ海上に出てきた状況で、辺戸付近の気圧傾度は緩く、国立極地研究所のプログラムによる後退流跡線によると、辺戸上空500mの気塊は北京付近から約3日を掛けてゆっくり輸送されてきたものと解釈される。これは、移動性高気圧の辺縁流による時計回りの輸送である。この後は移動性高気圧が本州上空に東に進み、10日に父島上空の高度500mに到達した気塊は、本州南岸付近を離れてから高気圧の前面を回って約2日半を掛けて輸送されたことが示されている(図9)。この状況に対応するのが、図10に示される SO_4 濃度の時系列にみられる立ち上がり(辺戸:9日、父島:10日)である。このタイプの輸送イベントの特徴は比較的長い期間にわたって継続することであり、辺戸の場合はゆっくりと濃度低下をしつつ約4日間、父島の場合は途中12~13日の濃度低下を挟んでやはり4日間の幅広の輸送が続いている。 SO_4 の濃度レベルそのものは辺戸の方が父島より高いが、 SO_4/BC 濃度比は辺戸で最大25程度であるのに対して、父島では最大50を超えている。これは、エアロゾルを含む汚染物質が拡散および湿性沈着等による除去を受けつつ長距離輸送されていく過程で、 SO_2 から SO_4 への酸化が進行し、相対的に SO_4 濃度比の高い組成へと変質しとことを伺わせる。ただし、4月10日に父島上空に到達した気塊は辺戸上空を通過したものではないため、酸化率などの普遍性のある値を導くことはできない。

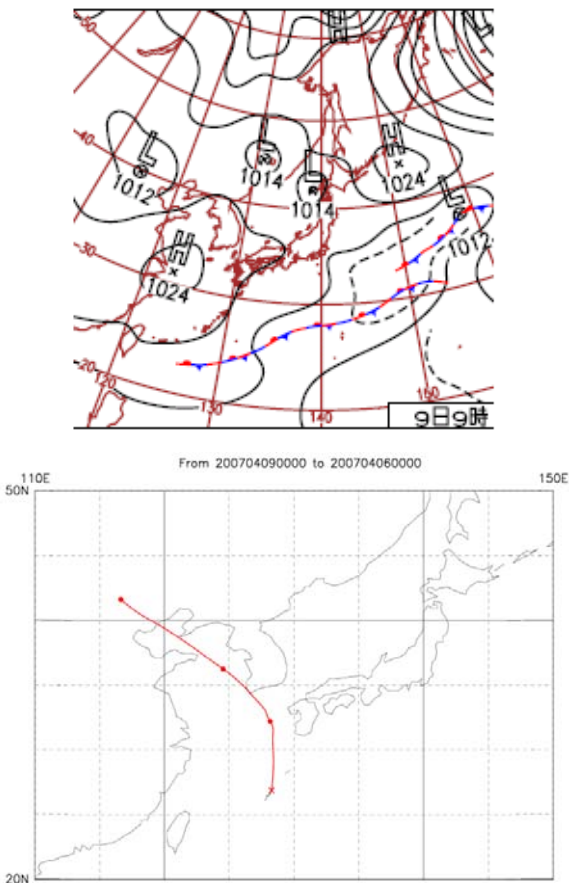


図8 2007年4月9日0900JSTの地上天気図(上段)および辺戸上空高度500mより3日間の後退流跡線(下段)。流跡線計算には国立極地研究所のプログラムおよびNCEP/DOE再解析データを使用。

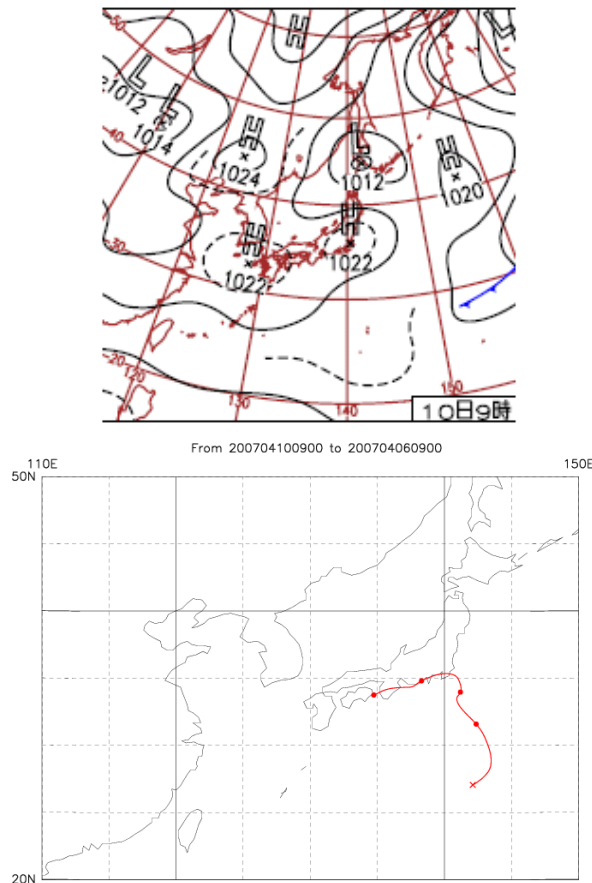
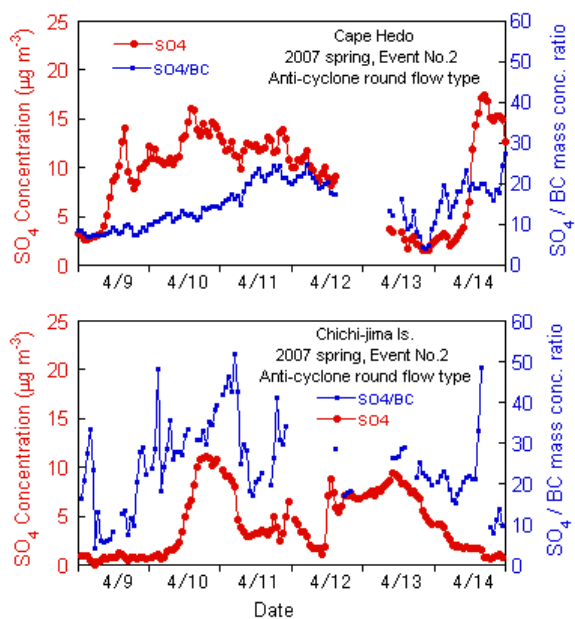


図9 2007年4月10日0900JSTの地上天気図(上段)および1800JSTの父島上空高度500mより3日間の後退流跡線(下段)。流跡線計算には国立極地研究所のプログラムおよびNCEP/DOE再解析データを使用。

図10 2007年4月9日～14日の辺戸と父島におけるSO₄濃度時系列およびSO₄/BC濃度比率の時系列



次に、2007年4月16～17日にみられた別のタイプの輸送パターンについて検討する。図11上段に示されるように、16日未明に沖縄本島を通過した寒冷前線は、図12上段にみられるように翌17日には父島を通過している。このとき、東シナ海上に出た低気圧の発達に伴う強い北西風により、大陸上の上海付近上空の気塊は一日で辺戸上空に到達している(図11下段)。風速は低気圧の発達に伴いさらに増加し、17日午前9時に父島上空に到達した気塊は、一日前には奄美大島西方の東シナ海上付近を通過したものと計算された(図12下段)。流跡線は完全には沖縄上空を通過していないが、17日に父島上空に到達した気塊と前日に辺戸上空を通過した気塊は、比較的近い発生源地域(上海付近およびその北西部)を通過したものと考えられる。

このときの SO_4 濃度および SO_4/BC 濃度の時系列が図13に示されるが、前線通過に対応するのは辺戸では16日正午前後、父島では17日6時前後にみられる SO_4 濃度の急増である。辺戸では前線通過直後には SO_4/BC 濃度比が7であるがその後も比較的安定した値を保ち、輸送イベントの後半に次第に増加して10程度に落ち着いている。一方、父島では前線通過直後の SO_4/BC 濃度比は17と辺戸に比べて倍増しており、 SO_2 からの酸化生成の状況が検出された。なお、17日の正午以降、父島での SO_4/BC 濃度比は40～55程度に急増しており、イベントの後半で発生源地域の異なる気塊が流入した可能性がある。

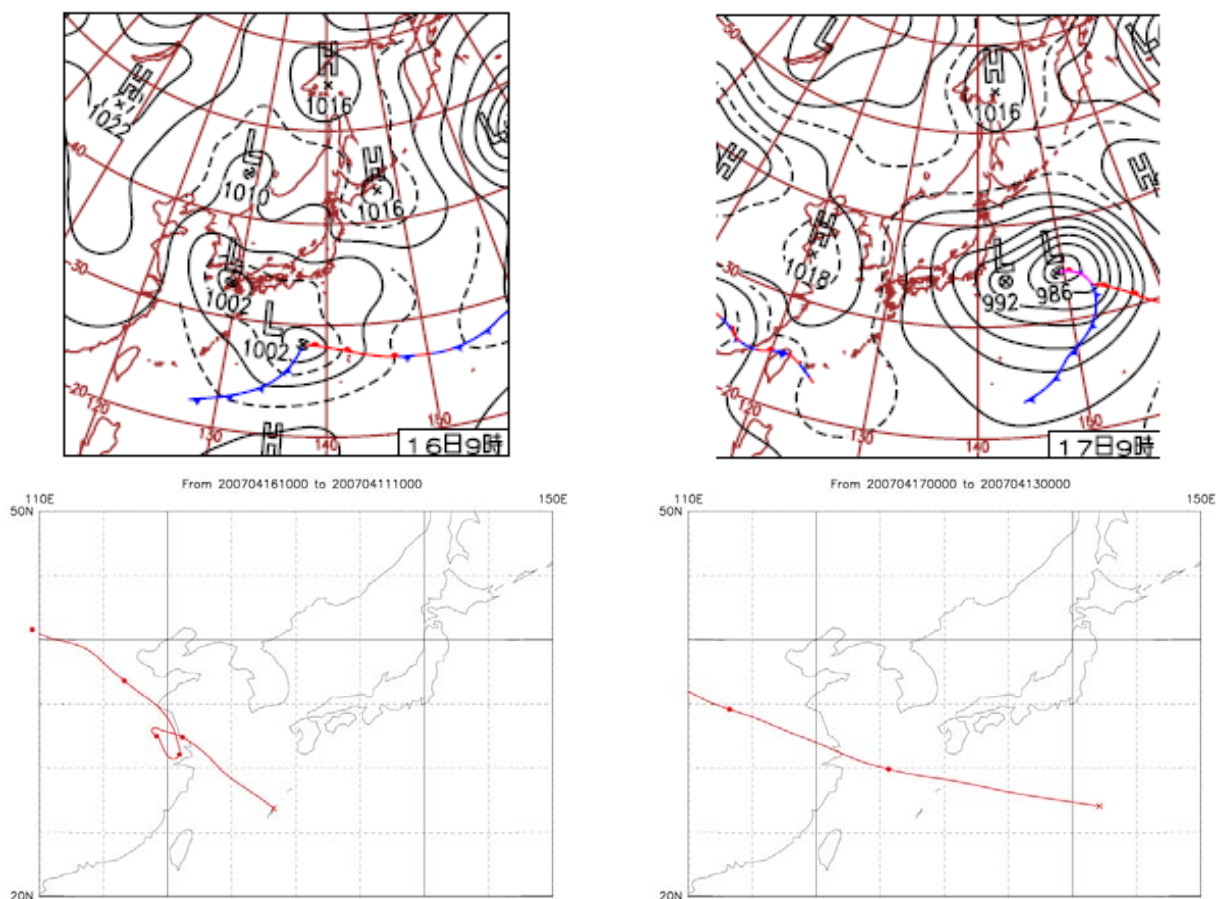


図11 2007年4月9日0900JSTの地上天気図(上段)および辺戸上空高度500mより3日間の後退流跡線(下段)。流跡線計算には国立極地研究所のプログラムおよびNCEP/DOE再解析データを使用。

図12 2007年4月17日0900JSTの地上天気図(上段)および父島上空高度500mより3日間の後退流跡線(下段)。流跡線計算には国立極地研究所のプログラムおよびNCEP/DOE再解析データを使用。

アジア大陸からのoutflow に含まれるBCとSO₄の実時間の濃度変動がラグランジュ的な流跡線に沿った2地点で観測されたのは今回が初めてである。今回は4月16～17日の輸送イベントのみに注目したが、今後、2007年春季の輸送イベント中で類似のパターンを探し、解析することにより、SO₂酸化によるエアロゾルの変質に関する情報をさらに抽出できると期待される。

なお、本研究では、従来型のフィルターサンプリングによるSO₄の長期測定も実施しており、SPAが故障等で稼働していなかった期間も含めて、SO₄濃度の年間の濃度変化を分析中である。この結果は、1990年代後半にMatsumoto et al.(1998)⁶⁾が報告した通年観測データと比較して、どの程度増加しているかについては、その間の東アジア域での経済発展との関わりから、興味を持たれるものとなる。

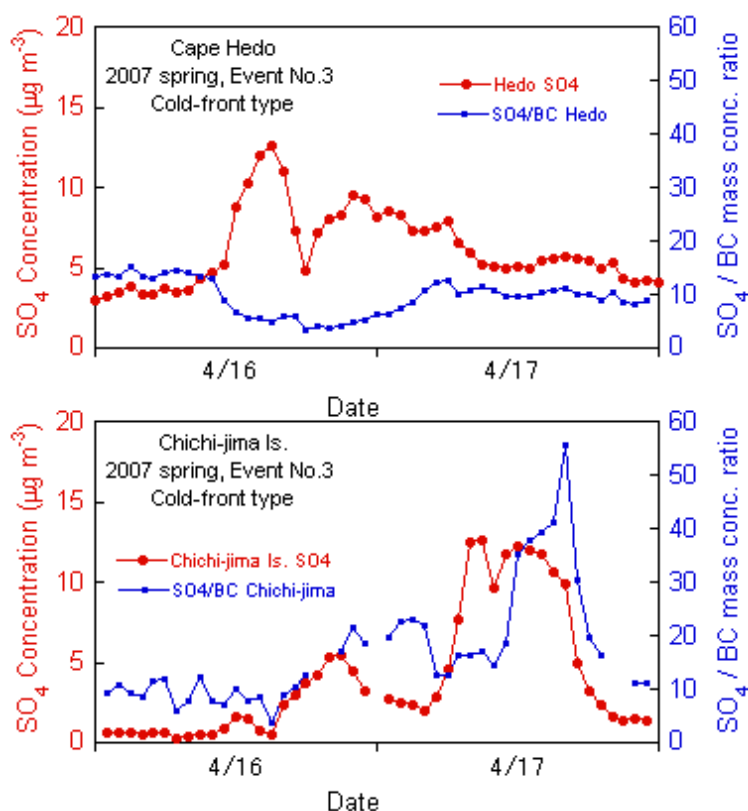


図13 2007年4月16日～17日の辺戸と父島におけるSO₄濃度時系列およびSO₄/BC濃度比率の時系列

(6) 硫酸塩の粒径分布に関する観測

2006年春季の集中観測では、辺戸岬サイトにおいて、国立環境研究所によるAMS観測と並行してLPIによるエアロゾル粒径分布観測を実施した。このうち、2006年3月14～21日にLPIにより捕集されたSO₄粒径分布と、AMSによりTime-of-Flightで測定されたSO₄の粒径データを同期期間分にわたって算術平均した結果を図14に示す。この結果で注目されるのは、重量濃度ペースでの粒径分布のモード径が従来から報告されている0.3μmより大きく、LPIで0.5–0.7μmのステージ、またAMSで0.51～0.58μm付近となっていることである。これはHering and Friedlander (1982)⁷⁾が“droplet mode”と名付けた雲過程を経験した粒子の特徴と一致する。さらに、同様のモード径は太平洋中心部での船舶観測で得られた硫酸塩の粒径分布にもみられ(Kaneyasu and Murayama, 2000⁶⁾)、アジア-太平洋岸地域での硫酸塩の粒径分布の特徴である可能性がある。

LPIの捕集インパクション・プレートの素材に、2006年はテフロン被覆石英繊維フィルターを用いたが、このような繊維質の素材を用いると、粒子が内部に浸透して捕捉されることで、測定粒径が大きい側に移動する可能性があるとの研究例がある。これはフィルトレーション効果と呼ばれるアーティファクトであるが、環境濃度のエアロゾルでは見られないとの報告もある(Fujitani et al., 2006⁸⁾)。

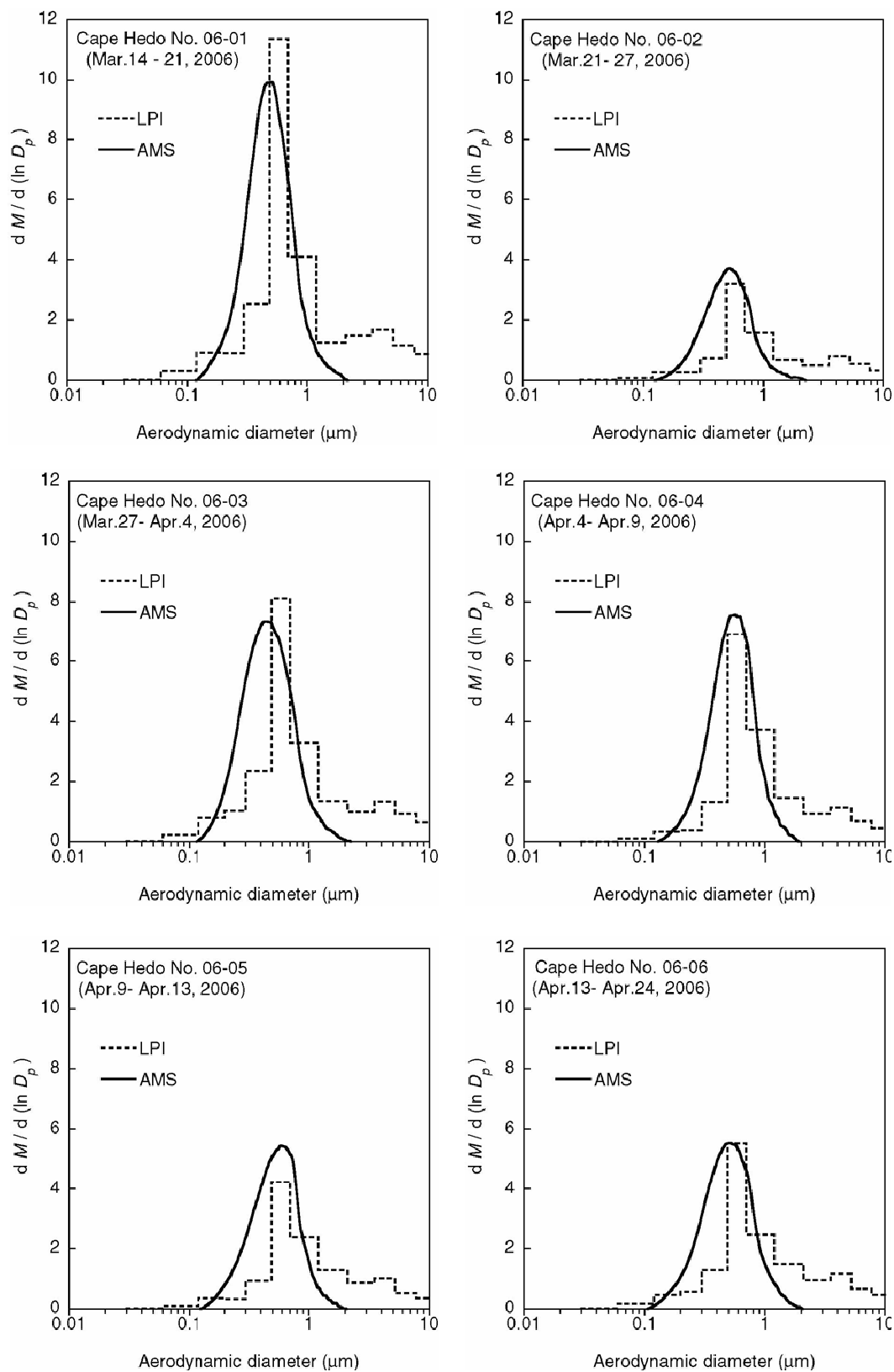


図14 辺戸における LPI およびAMSによる SO_4 粒径分布(2006年3月～4月; LPIは空力学径、AMSは減圧下空力学径)。

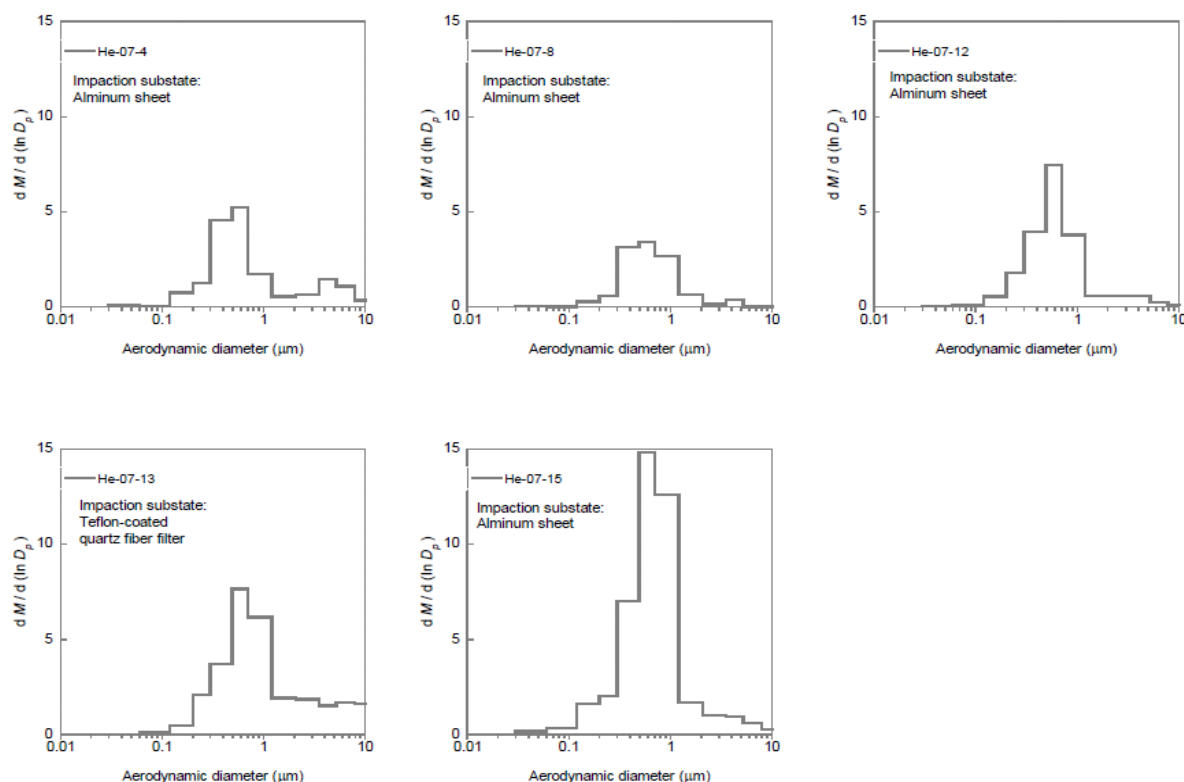


図15 辺戸における LPI による SO_4 粒径分布の測定結果(空力学径: 2007年3月～4月)。

そこで、2007年春季の集中観測ではアルミシートをインパクション・プレートに使用した観測を行った。図15に示すように、アルミシートを用いた粒径分布測定結果も、同図中のテフロン被覆石英繊維フィルターを用いた結果あるいは図12の結果と変わらず、 $0.5\text{-}0.7\mu\text{m}$ のステージでモード径が観測された。このことから、 $0.5\text{-}0.7\mu\text{m}$ にモード径を持つ Asian outflow に特徴的な粒径分布が存在することが確認された。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

アジア大陸からの汚染物質の輸送・変質およびその気候影響を評価するため、中国本土を含む広域観測の一部として小笠原父島での硫酸塩の連続観測を開始した。これまで1日～10日平均でのみ得られていた硫酸塩粒子の経時変化が、測定濃度の値付けをされた Sulfate Particulate Analyzer の運用により実時間で観測可能となり、アジア起源物質の輸送イベントBCおよび硫酸塩濃度の変動を時間単位で捉えることに成功した。すなわち、硫酸塩の濃度をBCと同程度(1時間)の時間分解能で得られるようになったことから、ともに石炭燃焼起源物質である両物質の濃度比の変化を輸送イベント毎に調べることが可能となり、 SO_2 酸化程度の異なる輸送イベントを分別できるようになった。

また、辺戸岬での硫酸塩粒子の粒径分布観測結果は、これまで global model として鵜呑みにして用いられてきた硫酸塩の粒径分布モデルがアジア太平洋岸地域では不適切であるかもしれない可能性を示唆し、放射強制力の計算結果等にも影響がある可能性もある。

なお、評価委員会からの中間評価結果のなかで、放射強制力の研究は本研究課題の枠組みのなかでは行うべきではないとの勧告されたことから、本報告ではサブテーマ名に挙げられている該当部分の研究に関する記述を僅かなものとし、長距離輸送過程でのエアロゾルの変質や微物理特性に重点を置いて記述した。

(2) 地球環境政策への貢献

今後、本研究結果を学会等において積極的に発表し、成果の広報・普及に努める。

6. 引用文献

- 1) Savoie and Prospero: Comparison of oceanic and continental sources of non-sea salt sulphate over the Pacific Ocean, *Nature*, **339**, 685-687 (1989).
- 2) Kaneyasu, N., K. Takeuchi, M. Hayashi, S. Fujita, I. Uno and H. Sasaki: Outflow patterns of pollutants from East Asia to the North Pacific in the winter monsoon, *J. Geophys. Res.*, **105(D13)**, 17,361-17,377 (2000).
- 3) Kaneyasu N. and Murayama S.: High concentrations of black carbon over middle latitudes in the North Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, **105(D15)**, 19,881-19,890 (2000)
- 4) Kaneyasu, N., and H. Takada, H.: Seasonal variations of sulfate, carbonaceous species (black carbon and polycyclic aromatic hydrocarbons), and trace elements in fine atmospheric aerosols collected at subtropical islands in the East China Sea, *J. Geophys. Res.*, **109(D6)**, D06211 doi:10.1029/2003JD004137 (2004).
- 5) Matsumoto K., Uyama, Y., Hayano, T., Tanimoto, H., Uno, I., and Uematsu, M.: Chemical properties and outflow patterns of anthropogenic and dust particles on Rishiri Island during the Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment (ACE-Asia), *J. Geophys. Res.*, **108 (D23)**, 8666, doi:10.1029/2003JD003426 (2003).
- 6) Matsumoto K., Nagao I., Tanaka H., Miyaji H., Iida T., and Ikebe Y.: Seasonal characteristics of organic and inorganic species and their size distributions in atmospheric aerosols over the northwestern Pacific Ocean, *Atmos. Environ.*, **32**, 1931-1946 (1998)
- 7) Hering, S. V., and Friedlander, S. K. (1982). : Origins of Aerosol sulfur size distributions in the Los Angeles Basin, *Atmos. Environ.*, **16**, 2647-2656.
- 8) Fujinani, Y., Hasehawa, S., Fushimi, A., Kondo, Y., Tanebe, K., Kobayashi, S., and Kobayashi, T., Collection characteristics of low-pressure impactors with various impaction substrate materials, *Atmos. Environ.*, **40**, 3221-3229 (2006).

粒跡線の計算、及び図の作成には、NCEP/DOE再解析データ及び国立極地研究所粒跡線モデル (Tomikawa and Sato, 2005; <http://firp-nitram.nipr.ac.jp>) を用いた。

7. 国際共同研究等の状況

産業技術総合研究所環境管理研技術究部門と韓国済州大学化学科との間で交わされたMOUに基づきJoint study of long-range transport of air pollutantsが実施されている。カウンターパートはC-H. Kang教授であり、済州島ハルラ山1100 mサイトにおけるエアロゾルの長距離輸送観測データを共同で解析している。また、韓国梨花女子大学のY-P. Kim教授との共同で、韓国済州島ハルラ山1100サイトの多環芳香族炭化水素観測結果の解析を進めており、父島のデータとの比較を行っている。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) Takami, A., T. Miyoshi, A. Shimono, N. Kaneyasu, S. Kato, Y. Kajii and S. Hatakeyama:
J. Geophys. Res.,**112**, D22S31, doi:10.1029/2006JD008120 (2007)
“Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 兼保直樹、塩原匡貴：「エアロゾルの大気環境影響」第8.2章 エアロゾルの光学・化学特性、pp. 310～319、京都大学出版会（2006）

(2) 口頭発表（学会）

- 1) 兼保直樹、塩原匡貴：日本気象学会2006年春季大会(2006)「笠原父島におけるエアロゾルの光学的特性の季節変化」
- 2) Naoki Kaneyasu, *et al.*, International Symposium on Atmospheric Environmental Impacts of Aerosols in East Asia, 京都, 2005, “Chemical and Optical Properties of Aerosols Collected on an Island in NW Pacific in the Continentally Influenced Air”
- 3) Naoki Kaneyasu, *et al.*, IAMAS2005, 北京, 2005 “Optical properties and the direct radiative forcing of Asian Outflow aerosols measured on an Island in the western part of North Pacific Ocean”
- 4) 古賀聖治、兼保直樹、第11回大気化学討論会（2005）
「小笠原諸島父島で観測したエアロゾル粒子の個数粒径分布の特徴」
- 5) 古賀聖治、前田貴尚、兼保直樹、第11回大気化学討論会（2005）
「小笠原諸島の父島で観測したエアロゾル粒子個数濃度の変動要因の解析」
- 6) 兼保直樹、塩原匡貴：日本気象学会2006年春季大会(2006)
「笠原父島におけるエアロゾルの光学的特性の季節変化」
- 7) 兼保直樹、塩原匡貴：公開シンポジウム「エアロゾルの大気環境影響」（2006）
「アジア大陸から海上を2000km飛んできた微粒子—小笠原父島で観測を続けて分かってきたこと」
- 8) 兼保直樹、高見昭憲、畠山史郎：日本地球化学会53回年会（2006）
「沖縄辺戸岬および小笠原父島でのsulfateの実時間観測」

- 9) 後藤優、熊田英峰、兼保直樹、Kang Cang-Hee、都筑幹夫、内田達也：日本地球化学会53回
年会(2006)

「韓国Jeju島におけるPM2.5エアロゾル中多環芳香族炭化水素およびバイオマス燃焼由来指
標成分の季節変化」

- 10) 兼保直樹：第47回大気環境学会年会(2006)

「北西太平洋上島嶼における大気エアロゾル光学的の季節変化」

- 11) N. Kaneyasu, K. Takami, and S. Hatakeyama : European Aerosol Conference 2007, Salzburg,
Austria, 2007

“Characteristic size distribution of sulphate aerosols influenced by Asian outflow”

- 12) 兼保直樹、高見昭憲、畠山史郎：日本気象学会2007年秋期大会(2007)

「アジア太平洋岸における硫酸塩エアロゾルの粒径分布」

- 13) 熊田英峰、兼保直樹、Kang Chang-Hee、佐藤優、内田達也、都筑幹夫：日本地球惑星科学
連合2007年大会 (2007)

“Seasonal variation of PAH and molecular markers for biomass burning in fine particulate
mountain aerosol at Jeju, Korea”

- 14) Yong-Pyo Kim, Ji-Yi Lee, Naoki Kaneyasu, Kang Chang-Hee, The 5th Asian Aerosol
Conference (2007)

“Particulate PAHs levels at Mt. Hall site in Jeju Island, Korea; Transport patterns of PAHs in
Northeast Asia”

- (3) 出願特許

該当なし

- (4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

該当なし

- (5) マスコミ等への公表・報道等

該当なし

- (6) その他

該当なし