

B-8 有機エアロゾルの地域規模・地球規模の気候影響に関する研究

(1) 有機エアロゾルの輸送と放射強制力に関する研究

③ バイオマス燃焼に伴う一酸化炭素の輸送と分布の解析に関する研究

東京都立大学大学院工学研究科応用化学専攻

梶井克純

〈研究協力者〉 東京都立大学大学院工学研究科応用化学専攻 加藤俊吾
科学技術振興機構戦略的創造研究事業地球変動のメカニズム領域
博士研究員 松本淳
博士研究員 定永靖宗
日本学術振興会派遣研究員 松永壮

平成14～16年度合計予算額 6,034千円
(うち、平成16年度予算額 1,906千円)

[要旨]

バイオマス燃焼に伴う一酸化炭素の動態を把握することを目的とし以下の3項目について①長期連続観測データの解析および連続観測、②シベリア森林火災の影響および③海洋大気酸化能について検討した。得られた主な結果は、中高緯度帯でのVOC濃度の季節変動は主にOHラジカルの反応により制御されているということ、沖縄のような中低緯度帯では夏季以外は大陸の影響が大きく汚染物質が高頻度で飛来すること。また、特に春期は低気圧の通過に伴い大陸起源の高濃度オゾンおよび一酸化炭素が周期的に輸送されることが明らかとなった。冬季における炭化水素濃度は発生源からの輸送時間で規定されていることから化学反応ではなく主に、希釈過程により濃度が決まる。沖縄で観測された中国由来の汚染物質はVOCと一酸化炭素濃度の測定結果から、中国南西部沿岸域から飛来する空気塊でも、都市型の汚染空気であり、バイオフェューエルの寄与は大きくない可能性が示唆された。海洋上での生物活動による反応性の高いVOCが観測された。これらは日射の強い、低緯度帯で比較的高濃度で観測された。植生の存在しない海洋上での光化学反応において、海洋上でのVOC発生がある場合、局所的にOHラジカル濃度が低下することから、DMSの酸化過程に影響を与える可能性があることが示唆された。

[キーワード] 一酸化炭素、オゾン、長距離輸送、輸送時間、バイオマス燃焼

1. はじめに

一酸化炭素は化石燃料燃焼や、バイオマス燃料の燃焼に伴い大気中に放出され、種々の大気光化学反応過程において重要な化学成分であると考えられている。また、メタンや他の揮発性有機化合物の光酸化によっても大気中で生成されることが知られており、大気中での一酸化炭素濃度の変動要因の研究は、排出強度に対する知見、オゾンの光化学的生成過程に対する知見、燃焼プロセスの指標などの観点から多くの研究がなされている。

アジアにおける大気質は北米大陸や、ヨーロッパのそれとは本質的に異なると考えられる。人間活動の活発な点や、窒素酸化物の大気濃度の観点では北米・ヨーロッパ同様、東アジア地域の汚染も重大である。一酸化炭素濃度の発生源については、先進諸国では主に移動発生源が重要である。しかるに、アジア諸国では移動発生源に加えてバイオフェューエルの使用による一酸化炭素の発存量も大変重要である。さらに、東南アジア方面で盛んに発生しているワイルドファイアーや、シベリアの森林火災などの影響も存在する。わが国に飛来する空気塊の大気質はこれらの過程で発生した汚染物質に強く支配されているといえる。それ故、一酸化炭素の濃度測定から汚染物質の発生源に対する情報が得られる可能性がある。

日本列島のリモート地域での過去の一酸化炭素濃度の測定結果および、本プロジェクトでの連続観測による結果、揮発性有機化合物の濃度観測を通して、日本列島に飛来する空気塊の大気質について調査し、東アジアにおけるバイオマス燃焼に伴う一酸化炭素の輸送と濃度分布について全体像を把握することは大変重要な課題となる。

2. 研究目的

ユーラシア大陸から飛来する空気塊の大気質を調査し、一酸化炭素をはじめとする反応性微量大気成分の濃度について検討し、一酸化炭素濃度の分布、排出源の特定、長距離輸送過程などの情報を得ることを目的として以下に示す項目を設定し研究を進めた。

3. 研究方法

(1) 長期連続観測データの解析および連続観測

現在展開されているリモートな観測地点（北海道母子里、長野県八方尾根、小笠原父島、沖縄辺戸岬）での長期観測データ（オゾン、一酸化炭素および一部の揮発性有機化合物）を用い、流跡線解析により、飛来する空気塊のオリジンごとにわけて大気質を調査した。また、沖縄辺戸岬においては本プロジェクトによりオゾンおよび一酸化炭素濃度測定装置を導入し長期観測を始めた。北海道母子里および沖縄辺戸岬では2週間ごとにキャニスターによる揮発性有機化合物濃度の分析も行った。

(2) シベリア森林火災の影響

1998年に発生した大規模なシベリアの森林火災のグローバルな描像得るためにアメリカ海洋大気局(NOAA)の提供する人工衛星データの高分解能赤外面像写真(AVHRR)を解析することにより、森林火災の発生日の特定と、その地点の炭素密度および燃焼温度の見積もりから窒素酸化物(NO_x)、メタンおよび一酸化炭素の発存量を推定し、大気質への影響について調べた。

(3) 海洋大気の酸化能

大陸から輸送される空気は海洋上で種々の化学的変換過程を経て大気質は変質していく。洋上に浮かぶ離島での観測も海洋大気測定として有効ではあるが、多量の炭化水素などを放出する植物の影響などを避けて純粹に海洋大気を測定することはできないので、船舶による洋上観測の結果を分析して海洋大気の酸化能について検討した。

4. 結果・考察

(1) 長期連続観測データの解析および連続観測

採用した観測データの得られた地点は北海道の母子里、長野県の八方尾根、隠岐、沖縄の辺戸岬であり、図1にこれらの位置を示す。それぞれの地点の特徴は以下のとおりである。母子里は緯度が高く、中国や韓国からの放出の影響を受けにくい、シベリア森林火災の影響をうけることもある。八方は高度が高い地点なので、発生地点で上昇し高い高度で汚染大気が輸送される汚染大気を捕らえることができる。隠岐は韓国からの影響を強く受ける。辺戸岬は夏季には海洋性の清浄な大気が観測されるが、冬は西からの季節風が卓越し、中国沿岸部からの汚染大気の輸送の影響を強く受ける。東アジアでは一般的にCO及びO₃の季節変化は冬から春に高濃度、夏に低濃度になる濃度変化を示す。定性的な説明として、OHラジカルの少ない冬には除去過程の進行が遅く高濃度となり、OHラジカルの多い夏には除去過程が促進され濃度が減少する。さらに日本では冬季の大陸性気団と夏季の海洋性気団の入れかわりにより濃度も影響を受けている。図2に母子里で行ったキャニスターサンプリングによるVOCの測定の季節変化を示す。いずれも冬に高濃度で、夏に低濃度となる季節変となっており、COとほぼ同様な変化となっている。また、アルカンの炭素数が増加するほど濃度が減少しているが、これは炭素数の増加とともにOHラジカルとの反応速度が大きくなることを反映している。それぞれの物質について図3に冬季/夏季濃度の比をOHラジカルとの反応速度定数に対してプロットしてある。OHとの反応性が増すにつれてより大きな季

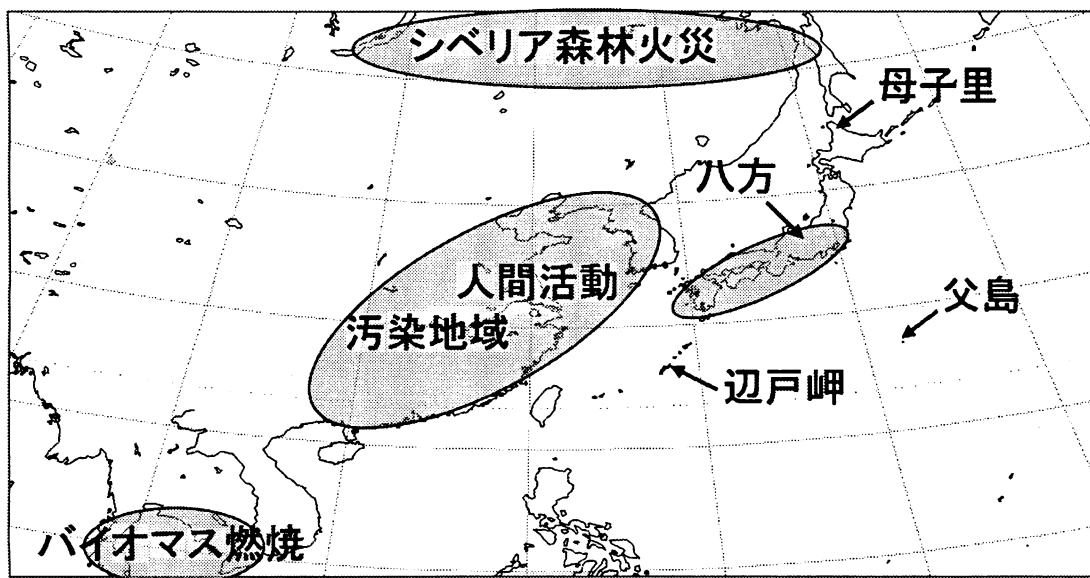


図1 解析に用いたデータを得た観測地点

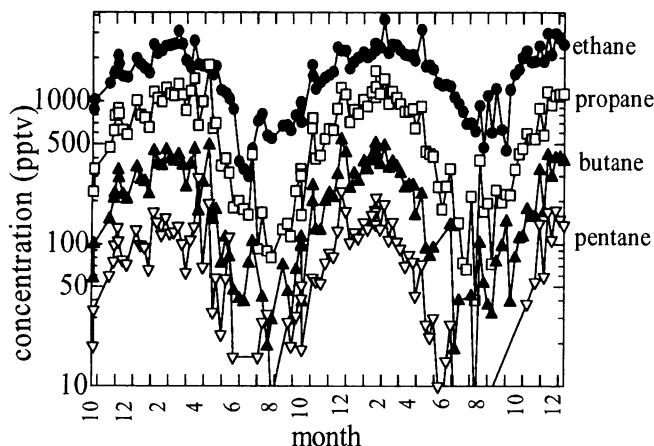


図2 母子里で観測された炭化水素の季節変化

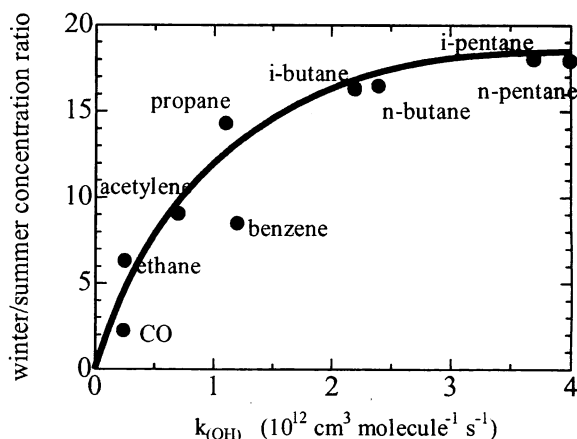


図3 炭化水素の冬と夏の比とOHラジカルとの反応速度定数の関係

節変化があることを示している。これらの測定結果からアルカン季節変化はOHの季節変化によりほぼ説明が可能であり、この測定地点がローカルなVOC発生源の影響を受けていないことを示している。母子里の観測所では名古屋大学により太陽光を光源としたFTIRによる微量大気成分のカラム量測定が継続して行われている。地上観測のCOとFTIRの測定結果の比較を行った。図4の上図は比較を行った結果である。地上観測はその場所での濃度であり、カラムカラム量はほぼ対流圏中での全量に相当するため、直接比較はできない。単純に濃度変動のパターンを比べると夏季にFTIRの値が地上観測ほど低下しないという差が見られる。そこで、対流圏内でCOが一様に混合していると過程して、地上観測濃度からカラム量を求めて比較を行った。圏界面は季節によって変化するため、札幌の圏界面データも用いた。地上測定値をカラム値に変換して比較した下図を見ると、絶対値がほぼ同様な値になっており、対流圏内でCOなどはある程度均一に混合しているという仮定が正しいことが分かった。また、夏季で両者の差が少なくなり、より良い一致を示すようになった。地上測定の方がスパイク状に高濃度

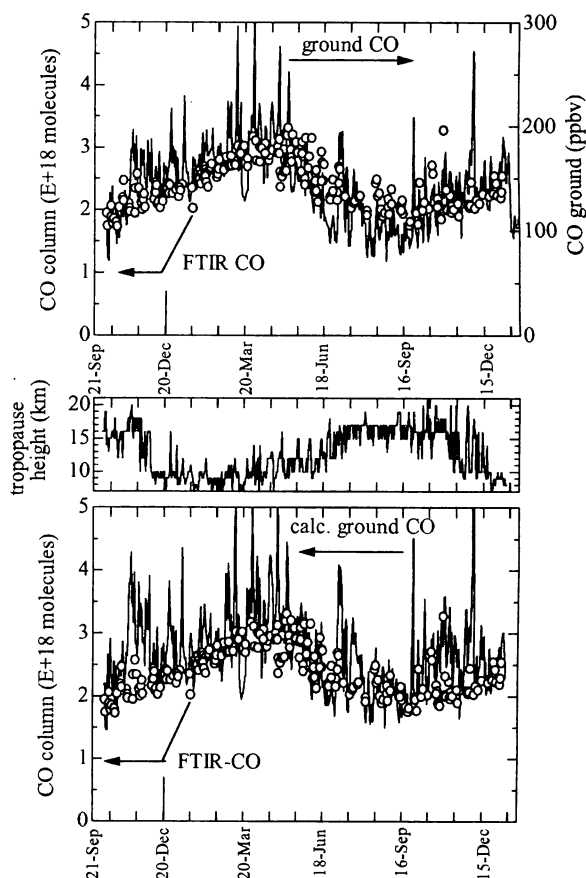


図4 母子里におけるCOの地上観とFTIR観測の比較

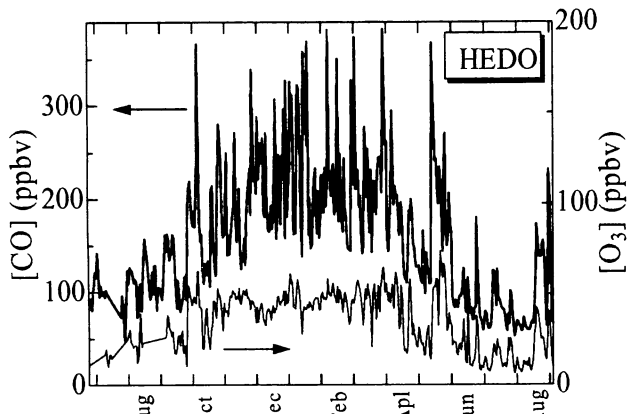


図5 沖縄でのCO、O₃の季節変化
(細線：オゾン、太線：CO).

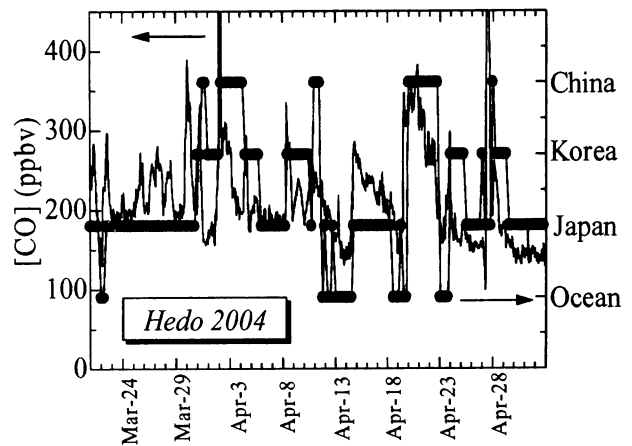


図6 春季沖縄のCO濃度と空気塊起源

となるところが多数見られるが、これらは高度の低い大気層だけ汚染大気物質の影響を受けている期間であると考えられる。このようなカラム量と地上観測を同地点で行っている観測点は他になく、両者を比較できる貴重なデータセットを得ることができた。

沖縄は低緯度に位置する離島であるが、予想に反して大気が清浄な地点ではない。図5にCOおよびO₃の季節変化を示す。COについては明確な季節変化が見られる。冬季・春季には中国からの影響が大きく、しばしば250 ppbvを超える高濃度の輸送イベントが数多く見られる。一方夏季には海洋性の清浄な大気の影響を受けるため、かなり低濃度となっている。図6に春季のCO濃度変化とバックワードトラジェクトリーによる空気塊の起源を示す。高濃度期間に中国方面や韓国方面から大気が輸送されており、海洋性の大気が卓越している期間に低濃度となる様子がよく対応づけられている。汚染大気の発生源による分類だけでなく、汚染大気発生源である陸地を離れてから観測地点に到達するまでの時間（輸送時間）についても検討を行った。バックワードトラジェクトリー計算を地図と照らし合わせることで輸送時間を求めることができる。

小笠原は沖縄とほぼ同緯度に位置するが、大陸からさらに離れているため、両地点を比較して汚

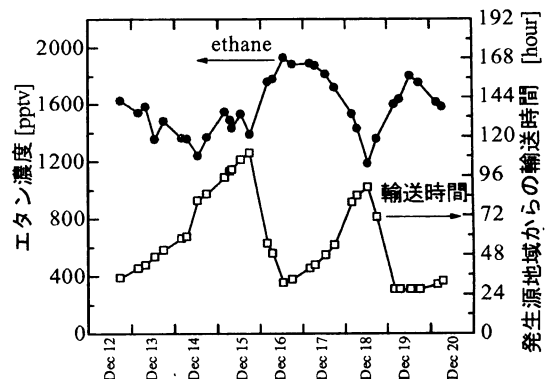


図7 小笠原でのエタンと輸送時間

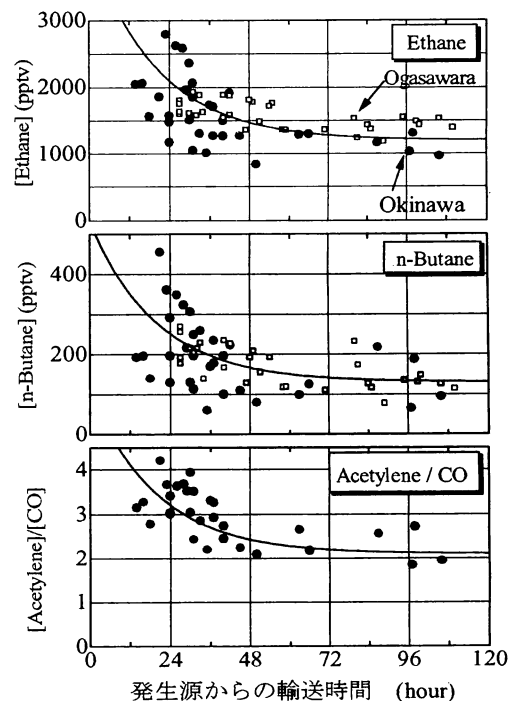


図8 炭化水素濃度と輸送時間

染大気の長距離輸送を観測することは興味深い。図7に冬季の小笠原で測定した炭化水素であるエタンと輸送時間の関係を示す。輸送時間が短いときにエタンが高濃度となり、輸送時間が長くなると低濃度になる傾向がはっきり見られる。図8に小笠原と沖縄で測定した炭化水素濃度を輸送時間に対してプロットした結果を示す。逆相関がみられ、空気塊が輸送されている間にバックグラウンド大気との混合により濃度が減少してゆく様子が見られている。両地点では発生源からの距離が違ってもかかわらず、一致する傾向になっている。また、これらの炭化水素は大気中での寿命が異なるのだが、いずれも48時間程度まで急激な減少傾向にあるという同様な変化となっており、OHラジカルとの反応でこのような減少がみられるのではなく、バックグラウンド大気との混合による影響が大きいといえる。大気汚染物質の濃度変動は発生源に近いとより大きくなり、発生源から遠いと変動が小さくなるという傾向がある。図9にそれぞれの物質について相対変動の対数値を大気中寿命に対してプロットした。発生源の都市などではこの傾きがゼロに近い値になり、発生源から遠くなればなるほど-1に近い傾きに近づく。沖縄と小笠原の両者とも青で示したいくつかの物質を除けば良く直線にのっており、それらの傾きは沖縄よりも小笠原のほうがより-1に近くなっている。このことから中国などからの大気汚染物質が長距離輸送されて、沖縄を通過し小笠原に到達するという傾向を見ることができる。

低緯度地域の離島での測定から、夏季は海洋性で清浄な大気となるが、冬季・春季には中国大陸などの発生源からの汚染大気輸送の影響を受け、スパイク状に高濃度となっているところが数多く見られる。今後の中国の発展に伴う汚染物質の長距離輸送の変化をモニターするのに適している測定地点であるといえる。ラジカル観測を行う地点としては、季節により大きく特徴が変わることに注意する必要がある。また、一年を通じて他の地点よりも光化学反応が起こりやすいため、アルコールやアルデヒドなどのOVOCが高濃度であり、ラジカル反応も特徴的なものとなっていることが予想される地点である。

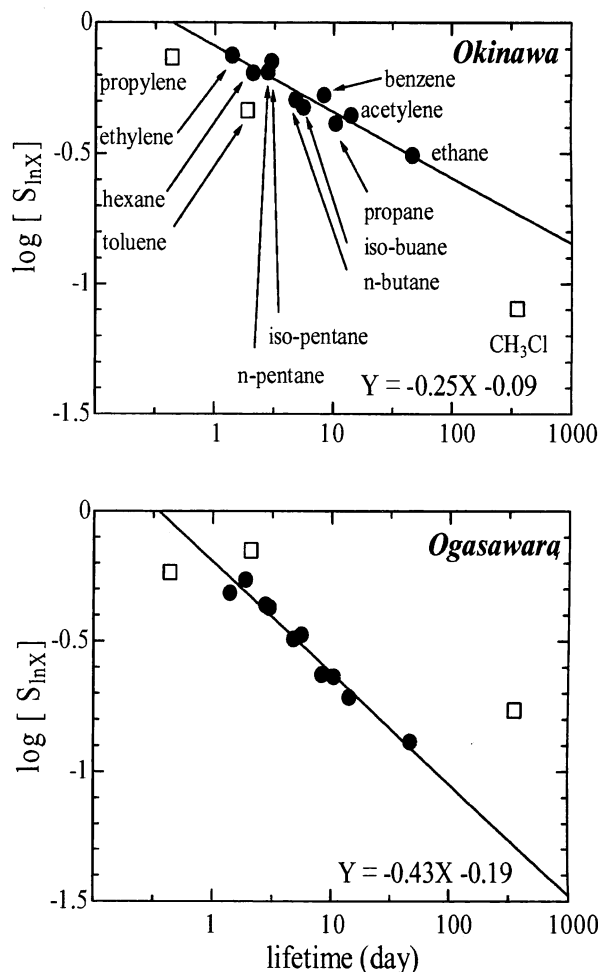


図9 炭化水素の測定値の揺らぎ(相対変動の対数値)と大気寿命の関係

(2) シベリア森林火災の影響

化石燃料燃焼起源の汚染物質についてはある程度の知見が得られているもののバイオマス燃焼起源などによる排出量については未だに不確定な要素が大きい。1997年に起きたインドネシア・カリマンタン島での大規模な森林火災による大量の汚染物質の大気への放出が、全球規模で対流圏オゾンの増加に寄与していると考えられている。これらの事実からもオゾンの物質収支を理解する上では、森林火災のバイオマス燃焼によるNO_x、COや炭化水素等の排出量を精密に見積もる必要がある。アジア大陸北部のシベリアにおいても大規模な森林火災が春期から夏期にかけて発生することが明らかとなってきたが、シベリアの森林火災の大気に対する影響についてはほとんど研究されていなかった。本研究ではアメリカ海洋大気局(NOAA)の提供する人工衛星データの高分解能赤外線画像写真(AVHRR)を解析することにより、シベリア全土における1998年に起こった森林火災の規模を1° x 1°単位のグリッドデータ化し全体の描像を把握した。図10に1998年に起こった森林火災のホットスポットを示す。ここでは、行政区にしたがって、西シベリア(WS)、東シベリア(ES)、極東シベリア(FES)およびモンゴル(MON)の4つにエリアを区分けした。バイカル湖周辺の東シベリアおよびモンゴル北部で火災が著しいことが分かる。また、極東シベリアの東経135-140°北緯50-55°の地域も火災が大きい。中国北部においても火災が発生しているが、全ての領域を網羅していないので今回の解析には中国のデータは加えない。図11にそれぞれのエリアにおける月毎の火災の面積を示す。全体として大きな月変化を示し5月ピークと8月ピークのバイモデル構造となっている。極東シベリア以外の地域では5月ピークを示す事がわかった。その後の火災場所が東方へ移動して、夏季に極東シベリアがピークを迎えている。シベリアの降雨はあまり多くはないが6-7月がピーク(約100 mm/月)でありアジアモンスーンの影響がある。森林火災の地域が西から東へ移動していくのもこのモンスーンの影響によると考えられる。消失面積、その場の植生データから炭素密度を調べ排出係数をかけてオゾン前駆物質の排出量を見積もった。本研究の見積もりとその他の地域のデータを表1にまとめた。火災の規模ではインドネシアやカナダよりも大きい。中国北部の寄与を加えると更に2割程度増加する。NO_xの発生はインドネシアに比べて1/3程度であるがCOについてはむしろ多い。メタン以外は東アジアでの化石燃料起源発生量に匹敵し

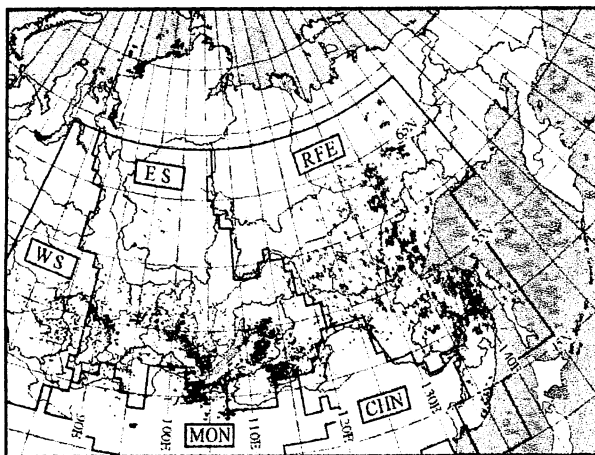


図10 1998年シベリアの森林火災スポット

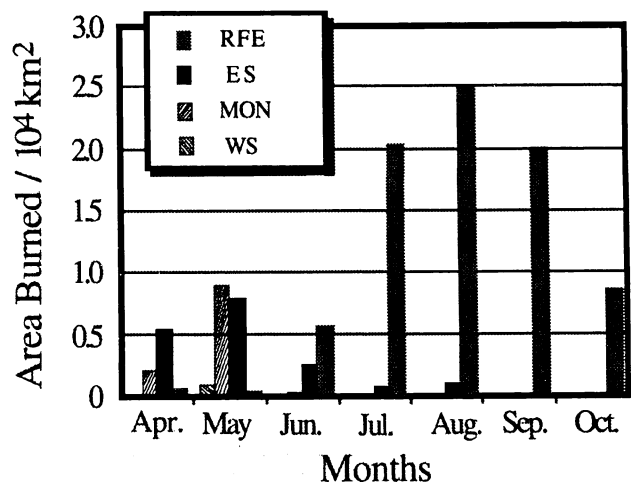


図11 各地域での消失面積の月変化

表1 オゾン前駆物質の推定排出量

	シベリア森林火災 (1998年)	インドネシア火災 (1997年)*	カナダ森林火災 (1995年)**	化石燃料燃焼 ***
消失面積 / km ²	10.9 x 10 ⁴	4.56 x 10 ³	4.9 x 10 ³	—
火災期間	4-10月	8-12月	6-7月	—
NOx / Tg	1.8	5.9	—	2.3
CH ₄ / Tg	1.6	2.5	—	9.1
CO / Tg	50	33	12	42

* J.S. Levine (1999)¹⁾.

** G. Wotawa and M. Trainer (2000)²⁾.

** EDGAR inventory (20-50 °N, 110-150 °E).

ていることが明らかとなった。このことはシベリア森林火災による大気質への負荷は非常に大きいことを示している。

北海道の利尻島においてCOおよびオゾンの連続観測からシベリアの森林火災について検出したことは前項で述べたが、八方尾根で観測されたCOについてもシベリアの森林火災の影響が観測された。八方尾根に到達する空気塊のバックワードトラジェクトリーと衛星データの森林火災地点の図をもちいて、西～北方面から飛来した空気塊が森林火災地域を通過したか、しないかでカテゴリー分けし、それぞれの場合でのCOおよびオゾンの平均濃度を比較した。図12に典型的な流蹟線の結果を示す。春季はシベリア東部から飛来する空気が卓越しており火災地域からは数日内で八方まで到達することが明らかとなった。図13にCOおよびオゾンについて各月ごとの平均濃度と、両者の差を示す。森林火災地域を通過した場合は通過しなかった場合に比べて明らかに高くなっており、その差は5-6月に50 ppbv程度にもなっている。同様な比較をオゾンについていうと、5 ppbv程度の差が見られる。このように八方尾根での観測からシベリアの森林火災による大気汚染物質の日本への影響があることが明らかとなった。シベリアに加えてアラスカやカナダの森林地帯で

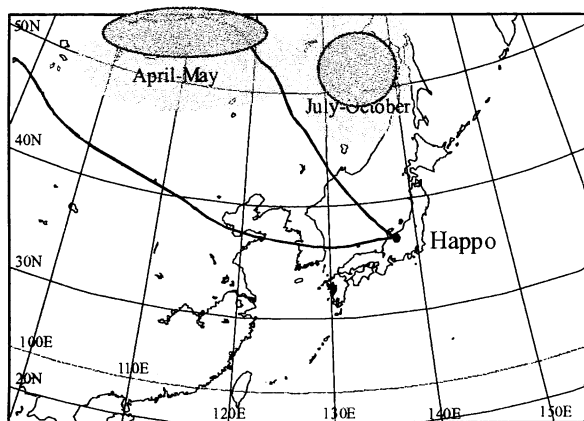


図12 八方尾根に飛来する大陸からの空気塊の流蹟線の例

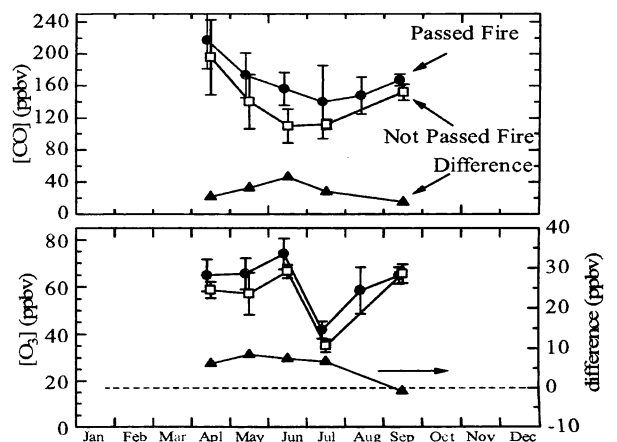


図13 火災地域を横切る場合とそうでない場合の八方で観測されるCOとオゾンの大気濃度およびその差

も同様の森林火災が頻発しており北半球高緯度帯の大気質に大きな摂動を加えていることが判った。これら汚染物質の一部は北極域に運ばれ極域のヘイズの要因になっていると考えられる。

(3) 海洋大気の酸化能

海洋は地球の7割を占めておりそこでの大気化学反応を知ることは大変重要である。それにもかかわらず、海洋での大気観測はごく限られており、ラジカル計測に関してはほとんど観測例がない。洋上に浮かぶ離島での観測も海洋大気測定として有効ではあるが、多量の炭化水素などを放出する植物の影響などを避けて純粋に海洋大気を測定できる船舶での測定は大きな魅力である。本プロジェクト中には船舶にラジカル計測装置を載せて洋上測定するには至らなかったが、微量大気成分の測定を行い、ラジカルケミストリーに影響を与える物質について多くの知見を得た。

東アジア地域での汚染物質の長距離輸送はより広範囲の太平洋上まで輸送される。この様子を明らかにするために、太平洋上で観測を行える離島はごく限られている。船舶での観測は測定データを取得することが困難な太平洋上での情報を提供してくれるという大きなメリットがある。また、海洋から大気中へ放出されるさまざまな物質は、地球の大部分を占める海洋上での大気化学反応に大きく関係し、地球の気候変動にまで影響を及ぼすと考えられている。このように船舶を用いて人為起源汚染物質の長距離輸送と海洋起源物質と大気の相互作用を明らかにするために、船舶に測器を持ち込んでの観測と大気サンプリングを行った。海洋科学研究センターの「みらい」、 「白鳳丸」、 Scripps研究所の”Mellivile”などの観測船で主に西太平洋での観測を行った。

日本に近い西太平洋で2001年春に行われたMR01K02航海での測定結果を図14に示す。陸地から離れるにつれて濃度が減少してゆくとともに、比較的陸地に近いため大きな濃度変動が見られる。低濃度になっているときには低気圧の通過前であり空気塊が清浄な海洋性大気となっている。しかし低気圧通過後に高濃度となるピークが見られており、陸地から汚染大気が輸送されていることが分かる。また、一次汚染物質であるCOや炭化水素だけでなく、二次汚染物質であるO₃も同様

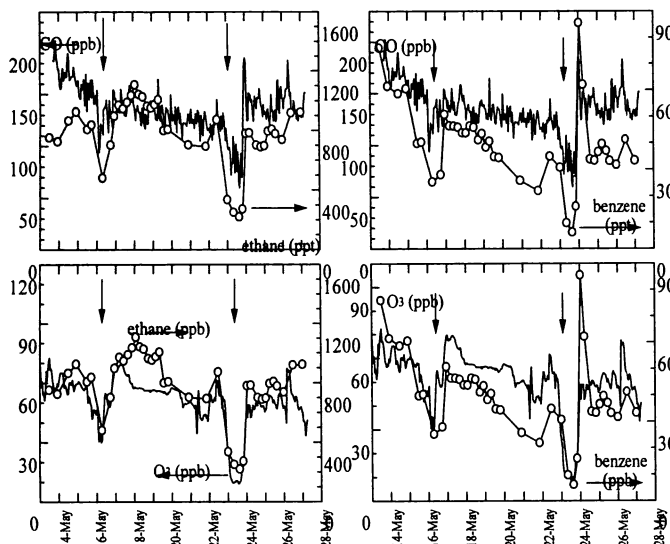


図14 MR01K02航海でのCO、O₃、VOCの濃度変化

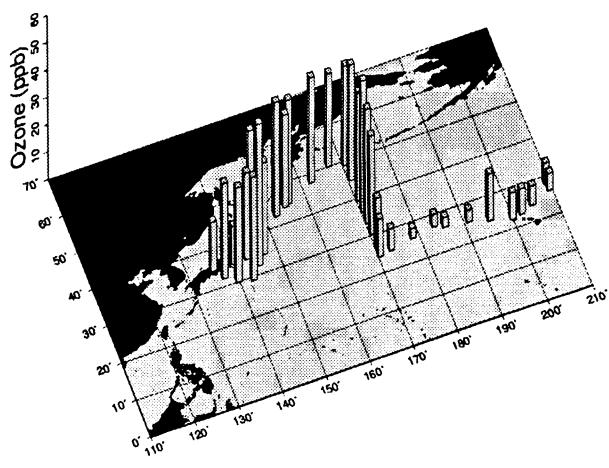


図15 IOC2002航海でのO₃濃度分布

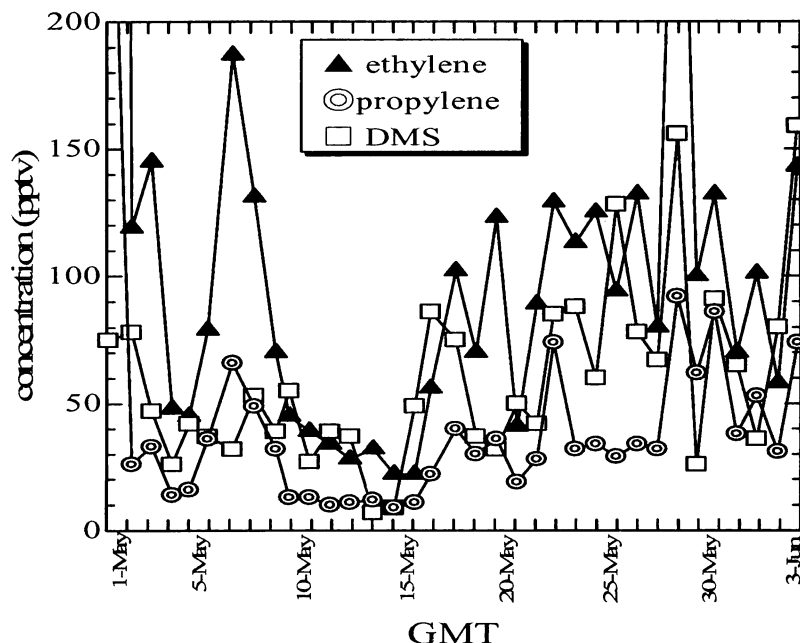


図16 観測された海洋生物起源物質の濃度変化

な濃度変動をしており、大気中で十分に光化学反応を起こす時間があったことが分かる。また、図15に日本からハワイへのIOC2002航海で得られた結果を示す。日本を少し離れると中・高緯度では太平洋上でも経度方向にそれほど大きな濃度変化はみられず、汚染大気が同緯度帯で比較的均一になっていることが分かる。東アジア地域の汚染が北米に影響を及ぼすなど、大陸間汚染大気輸送が議論されているが、経度方向への比較的速い輸送を示す測定結果となっている。また、太平洋上で中緯度から低緯度へは大きな濃度勾配がみられており、中・低緯度で大気の様子が大きく変わることが分かる。また、ハワイ近くで観測された高濃度O₃は東南アジア方面からの汚染空気が輸送したためのものであることがわかっている。特に東南アジアは乾季のバイオマス燃焼が激しいため、その影響が太平洋中央部に及ぼす影響も重要である。

海洋上の大気の組成や反応性は、汚染大気の輸送だけでなく、海洋から大気に放出される物質によっても影響を受ける。図16にIOC2002航海で観測された海洋生物起源物質の濃度変化を示す。これらは海洋・大気の交換で海洋大気中に放出される。反応性の高いIsopreneやCH₃Brなどのハロカーボン特定の生物から生産されると考えられるので、時々高濃度になる地点が見られている。ethyleneやpropyleneは生物の死骸が光で分解してできると考えられるため、航海後半にあたる日射が強い低緯度地域で高濃度になる傾向が見られている。これら不飽和炭化水素は大気中での反応性が大きい。低緯度地域での海洋大気中でのOHラジカルとの反応性を検討してみると、CO、メタンが多くを占める中で、不飽和炭化水素は10%程度の寄与があることが分かり、場合によっては海洋上での大気化学反応に影響を与えることが分かった。

冬季に太平洋北西部を観測したMR03K01航海ではVOCに加えてOVOCの測定も行った。CO,CH₄が大きな寄与があるが、それ以外にOVOCが23%もの割合を占めており、なかでもアセトアルデヒ

ドの寄与が大きいことが分かった。人為起源の炭化水素は海洋上を輸送される間に比較的速く減少するのだが、OVOCはこれらが酸化する過程で生成することもあり、海洋上でもそれほど低濃度にはならないことが分かった。これまであまり測定されてこなかったOVOCが海洋大気中では大きな影響を及ぼすということは大きな発見であり、海洋大気中でラジカル計測をする際には重要な物質となる。

5. 本研究により得られた成果

日本周辺のリモート地域で観測されたオゾンおよび一酸化炭素濃度の長期観測データの解析、新たに本研究で進められた沖縄辺戸岬でのオゾン、一酸化炭素およびVOC観測の結果、シベリアの森林火災による汚染物質の排出量見積もり、その大気化学的な影響、過去に行われた船舶により海洋大気観測結果の解析を通して、以下のことが明らかとなった。

- (1) 中高緯度帯での脂肪族飽和炭化水素濃度の季節変動は冬季に高く夏季に低くなり、主にOHラジカルの反応により制御されている。また大気濃度もOHラジカルの反応性と逆相関しており大気濃度を規定しているのがOHラジカルによる除去過程であることが明らかとなった。
- (2) 母子で観測された地表の一酸化炭素とFTIRで観測された対流圏カラム濃度が良く一致したことから、地表での局所的な発生源は無く対流圏での一酸化炭素の均質性が明らかとなった。シベリアの森林火災による自由対流圏での一酸化炭素の濃度増大はあまり見られなかった。
- (3) 沖縄のような中低緯度帯では夏季以外は大陸の影響が大きく汚染物質が高頻度で飛来する。特に春期は低気圧の通過に伴い大陸起源の高濃度オゾンおよび一酸化炭素が周期的に輸送されることが明らかとなった。
- (4) 父島および沖縄において観測された冬季の炭化水素濃度は、発生源からの輸送時間とよい逆相関があり、炭化水素のOHラジカルとの反応性による差異は顕著ではなく、同じように輸送時間に対して濃度は減衰することから、大気濃度は希釈過程で規定されていることが明らかとなった。また、約72時間以降は濃度変動は無いことからこの値がバックグラウンドであることが明らかとなった。
- (5) VOCの濃度揺らぎの対数と大気寿命が良く相関しており、その傾きが発生源からの距離を反映していることが検証された。
- (6) 沖縄で観測された中国由来の汚染物質はVOCと一酸化炭素濃度の測定結果から、中国南西部沿岸域から飛来する空気塊でも、都市型の汚染空気であり、バイオフェューエルの

寄与は大きくない可能性が示唆された。

- (7) 1998年に発生したシベリアの森林火災による、わが国に飛来する空気塊の大気質に与える影響は比較的大きく、1年間にシベリアの森林火災で発生する一酸化炭素は東アジア地域での化石燃料燃焼によるそれと匹敵するほど大きいことが明らかとなった。
- (8) わが国のような中緯度帯で観測される一酸化炭素濃度の極大は3月から4月となるが、OHラジカルによる変調では2月がピークとなる。この極大の遅れは主にシベリアの森林火災起源の一酸化炭素である可能性が高いことが明らかとなった。
- (9) 海洋上での生物活動による反応性の高いVOCが観測された。これらは日射の強い、低緯度帯で比較的高濃度で観測された。
- (10) 植生の存在しない海洋上での光化学反応において、海洋上でのVOC発生がある場合、局所的にOHラジカル濃度が低下することから、DMSの酸化過程に影響を与える可能性があることが示唆された。
- (11) 酸素を含む揮発性有機化合物は海洋上で有意な濃度観測されており、これらの化合物は大気中で二次的に生成してくるが示唆された。

6. 引用文献

- 1) Levine, J. S., The 1997 fires in Kalimantan and Sumatra, Indonesia: Gaseous and particulate emissions, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 815-818, 1999.
- 2) Wotawa, G., and M. Trainer, The influence of Canadian forest fires on pollutant concentrations in the United States, *Science*, 288, 324-328, 2000.

7. 国際共同研究等の状況

米国ワシントン大学のDaniel Jaffe教授の研究グループと共同で沖縄辺戸岬において平成16年春期にオゾン、一酸化炭素に加えて、水銀 (Hg0, Hg1, Hg2) の同時観測を行った。その結果、一酸化炭素と非常に良いそう考えられたことから、大気中を輸送される水銀は主に燃焼起源であることが明確となり、一酸化炭素濃度との相対強度から中国における水銀の排出量の見積もりが可能となった。アジアにおける系統だった水銀およびその他の反応性微量成分の測定は初めて例となり、今後の展開が期待されている。成果の一部は紙上発表論文④を参考にされたい。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<学術誌 (査読あり)>

- ① F. J. G. Laurier, R. P. Mason, L. Whalin, S. Kato, “Reactive gaseous mercury formation in the North Pacific Ocean’s marine boundary layer: A potential role of halogen chemistry”, *J. Geophys. Res.*, 108, D17, 4529, 10.1029/2003JD003625 (2003).
- ② 三浦和彦、新村典子、児島紘、加藤俊吾、杉本伸夫、松井一郎、清水厚、鶴野伊津志、植松光夫, 「「みらい」航海におけるエアロゾルの物理的特性」, *エアロゾル研究*, Vol.19, No.2, 108-116 (2004).
- ③ S. Kato, Y. Kajii, R. Itokazu, J. Hirokawa, S. Koda, Y. Kinjo, “Transport of atmospheric carbon monoxide, ozone, and hydrocarbons from Chinese coast to Okinawa island in the Western Pacific during winter”, *Atmos. Environ.*, 38, 2975-2981 (2004).
- ④ Dan Jaffe, Phil Swartendruher, Peter Weiss-Penzias, Shungo Kato, Akinori Takami, Shiro Hatakeyama, Yoshizumi Kajii, “Export of Atmospheric Mercury from Asia”, *Atmos. Environ.* (in press)
- ⑤ S. N. Matsunaga, S. Kato, A. Yoshino, J. Greenberg, Y. Kajii, A. Guenther, “Gas-Aerosol partitioning of semi volatile carbonyls in polluted atmosphere in Hachioji, Tokyo”, *Geophys. Res. Lett.*, (in press)

<学術誌 (査読なし)>

なし

(2) 口頭発表 (学会)

- ① 加藤俊吾、定永靖宗、松本淳、梶井克純, 第9回大気化学討論会 (2003)
「みらいMR03K01航海での太平洋北西部における大気観測—速報—」
- ② 永尾一平、加藤俊吾、大木淳之、梶井克純、植松光夫、田中浩, 第9回大気化学討論会 (2003)
「春季の西部北太平洋におけるDMSとその関連物質の分布」
- ③ S. Kato, Y. Kajii, T. Ui, M. Uematsu, IUGG2003, Sapporo, July (2003)
“Atmospheric Trace Gas Measurements Over NW Pacific”
- ④ 加藤俊吾、松本淳、定永靖宗、梶井克純, 第7回みらいシンポジウム (2004)
「太平洋西部における大気中微量成分の測定」
- ⑤ 三浦和彦、岡田誠、児島紘、加藤俊吾、中村篤博、植松光夫, 第7回みらいシンポジウム (2004)
「MR03-K01航海における海洋大気エアロゾルの測定」
- ⑥ 加藤俊吾、市川雅子、梶井克純, 第10回大気化学討論会 (2004)
「都市大気の海洋上での影響～大島におけるテスト観測～」
- ⑦ I. Nagao, S. Kato, Y. Uyama, A. Ohki, Y. Kajii, M. Uematsu, 8th international global atmospheric chemistry conference, New Zealand, September (2004)
“Spring time distributions of DMS and related species in the surface seawater and atmosphere over

the western north Pacific”

- ⑧ S. Matsunaga, C. Wiedinmyer, S. Kato, A. Yoshino, Y. Miyakawa, J. Greenberg, Y. Kajii, A. Guenther, AGU Fall Meeting, San Francisco, December (2004)
“Sources of Biogenic and Anthropogenic Semi Volatile Organic Carbonyls and Their Effects on the Air Quality in Suburban and Remote Area”
- ⑨ 松永壮、Christine Wiedinmyer, John Orland, Alex Guenther, Thomas Karl, Jim Greenberg, 梶井克純, 第15回 大気化学シンポジウム (2005)
「イソプレン分解生成物のエアロゾル生成としての寄与：観測と計算」
- ⑩ 加藤俊吾、亙理真代、梶井克純、植松光男、永尾一平, 第15回 大気化学シンポジウム (2005)
「SEED II 鉄散布航海での大気中微量気体成分の測定」
- ⑪ 松永壮、加藤俊吾、吉野彩子、梶井克純, Jim Greenberg, Alex Guenther, 第15回 大気化学シンポジウム (2005)
「大気中揮発性化合物のガス-エアロゾル分配」
- ⑫ ジーラナット・スッタワラー、加藤俊吾、梶井克純、高見昭憲、畠山史郎、渡具知美希子、与儀和夫, 日本化学会第84回春季大会 (2005)
「沖縄への汚染大気の長距離輸送：一酸化炭素とオゾンの季節変化」,

(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

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

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る。

沖縄辺戸岬の測定は局所的な汚染から免れた地域での観測であり、高い感度で大陸からの汚染空気塊を検出できる。日本における大気質向上について議論する場合、バックグラウンド濃度と局所的な汚染を精密に定義する必要がある。その際、本研究の成果は純粋に大陸起源の空気塊の大気質を議論でき、日本におけるバックグラウンド大気の大気質の定義に大きく貢献すると期待される。