

C-1 東アジアの環境酸性化物質の物質収支解明のための大気・土壌総合化モデルと国際共同観測に関する研究

(2) 東アジアスケールの国際共同観測による環境酸性化物質の物質収支に関する研究

① 飛行機及び船舶を用いた環境酸性化物質の物質収支に関する国際共同観測

研究代表者 国立環境研究所大気圏環境部 畠山史郎

環境庁国立環境研究所

大気圏環境部

大気反応研究室

畠山史郎

酒巻史郎

地球環境研究グループ

村野健太郎

温暖化現象解明チーム

向井人史

地域環境研究グループ 開発途上国環境改善チーム

西川雅高

(委託先)

慶応義塾大学

田中 茂

大阪府立大学

坂東 博

東京大学

植松光夫

広島大学

藤原祺多夫

豊橋技術科学大学

北田敏広

平成8～10年度合計予算額 73,601千円

(平成10年度予算額 24,586千円)

[要旨] 東アジア地域は今後も酸性物質による大気汚染など、環境への様々な影響が懸念される地域である。アジア地域における大気汚染物質の動態を明らかにするには、この地域の各国が共同で観測に当たり、必要な解析を行って、現状を分析する必要がある。本研究では、中国および韓国と共同観測を行って、中国・韓国と我が国の間の海洋（東シナ海、黄海）上空におけるオゾン、SO₂、NO_x、エアロゾル、PAN、酸性ガス等を測定し、観測データと、流跡線解析を組み合わせて、酸性雨原因物質の輸送過程、気塊の流跡による我が国に到達する汚染物質の濃度の差、我が国周辺における大気汚染物質の空間分布等を明らかにした。

[キーワード] 日中韓共同観測、SO₂、NO_x、微量酸性ガス

1. 序

平成5～7年度に行われた前期の地球環境研究総合推進費研究課題C-1「東アジアにおける酸性、酸化性物質の動態解明に関する研究」において、我々は、日本とアジア大陸との間の海洋上空における酸性雨原因物質の分布と輸送過程を解析した。その結果、我が国に到達する気塊には大きく分けて、1) 大陸北部を発して東日本北日本に到達する気塊、2) 韓国上空を通過して西日本に到達する気塊、3) 中国を発して東シナ海を経由し九州に到達する気塊の3つのパターンがあって、1) では上流に大規模発生源がないことから SO₂ も、これが酸化されて生成する硫

酸塩 SO_4^{2-} の濃度も低いこと、2) では大規模発生源に距離的に近いため、 SO_2 の濃度が高く $\text{SO}_4 / \text{SO}_2$ の比が小さいこと、3) では大規模発生源から長距離に輸送されるために、その間の $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4$ の酸化反応により、 SO_2 の濃度は下がっているが $\text{SO}_4 / \text{SO}_2$ 比が大きいことを見出した。その後、韓国では燃料転換など、発生源対策が進んでいるものと思われる。しかし、中国ではまだ、エネルギーの 80% を石炭に頼っていて硫黄酸化物系の大気汚染が緩和されていないこと、自動車の保有台数が増えて窒素酸化物系の汚染ガスの放出も増えていること等から、従来とは異なる、硫黄酸化物系も窒素酸化物系も高濃度となるような大気汚染が進行しているのではないかと考えられた。

一方、やはり前期の課題において行われたモデルシミュレーションの結果は、日本の南岸を低気圧が通過するとき、それに引っ張られるような形で、中国の中南部から大規模な汚染気塊が我が国に到達することを示唆した。これらの点に鑑み、本研究では中国中南部からの汚染気塊の影響を受けやすい、東シナ海において最も典型的な汚染状況が現れるのではないかと考え、この領域における汚染大気の変動を明らかにすることを目的とした。この領域での広域な汚染とその変動を明らかにするには、我が国一国だけの観測では不十分であると考えられる。そこで、本研究では、韓国、中国の研究者とも共同で観測を行うことを計画し、これにより更に広域のデータを取得して、モデルに資することを重要な課題とした。我々の呼びかけに応じて、韓国科学技術研究院の研究者と中国北京大学の研究者が共同観測を行うことに合意し、平成 8 年 10 月に国立環境研究所（畠山）、韓国科学技術研究院（Yong-Pyo Kim 博士）の研究者が北京大学（唐孝炎教授）に集まって、三者で共同研究を進めることが確認された。これに基づき、平成 8 年度には、東シナ海を舞台とする共同観測を行うことができた。この共同観測の成果は本章および次章で記述するが、そればかりではなく、本 C-1 課題（1）①テーマのモデル研究においても実測データとしてモデルにインプットされ、モデルの評価に重要な役割を果たしている。

2. 結果と考察

東シナ海上空における航空機観測と、韓国・中国との共同観測

（1）観測の概要と、硫黄酸化物系大気汚染質の輸送経路

日本、韓国、中国の研究者の合意に基づき、平成 8 年度には、東シナ海を舞台とする共同観測を行うことができた。すなわち平成 9 年 1 月 7 日より 1 月 25 日までの期間において、青島（中国）、済州島（韓国）、福江（日本）で地上観測を行い、この期間中に本研究所が航空機による観測を行った。測定項目と、測定手法は表 1 の通りである。

表 1：測定項目および測定手法

測定項目	測定手法
SO_2	パルス蛍光法
オゾン	紫外線吸収法
NO_x	オゾン化学発光法
炭化水素	真空容器捕集法
有機酸等	拡散スクラバー
PAN	低温カラム濃縮法
無機エアロゾル	ハイボリウムサンプラー

航空機観測は、長崎大村空港を基地として、平成 9 年 1 月 11 日および 1 月 13 日に、長崎と韓国済州島南方沖の間の東シナ海上空（図 1：A-B 間）で行われた。高度 800~1000m と高度約 300m の 2 高度をそれぞれ約 1 時間ずつ飛行してオゾン、 NO_x 、 SO_2 、非メタン炭化水

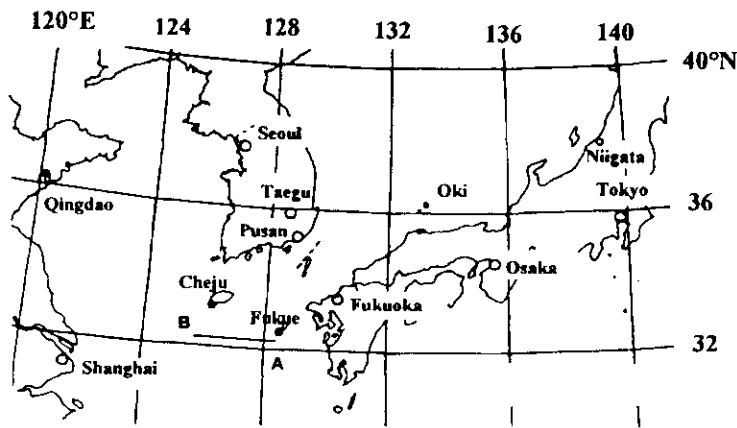


図1：観測飛行コースと地上観測地点（●）

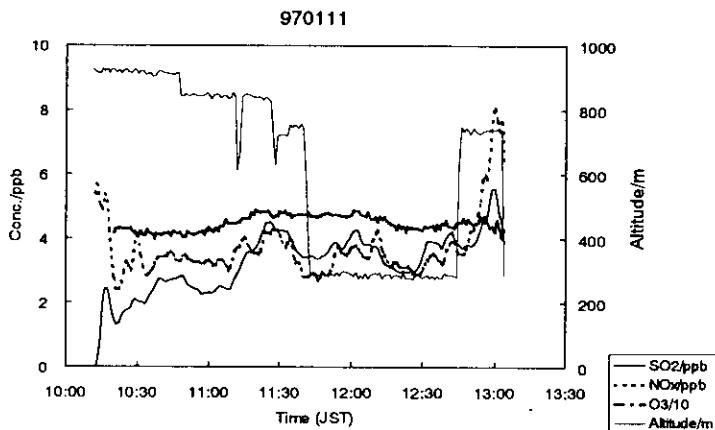


図2：平成9年1月11日に観測されたオゾン、NO_x、SO₂

じて若干の変更がある。3回の観測飛行を行った。観測飛行時の気象条件等は以下の通りであった。

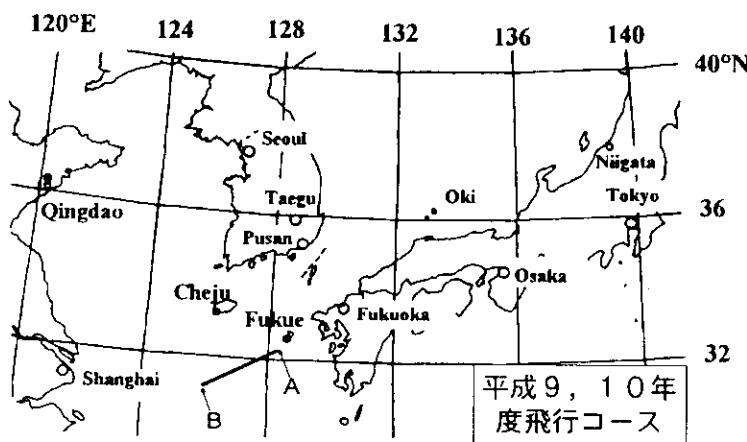


図3：観測飛行コースと地上観測地点（●）

素、酸性ガス、アルデヒド、過酸化水素等が機上で分析または採取された。いずれの日にもこれまでの観測に比較して SO₂が高めであるが、特に北西風の卓越した11日に高濃度が記録された（図2参照）。

平成9年度の航空機観測は、平成9年12月9日、12日、13日の3回行われた。長崎と韓国済州島南方沖の間の東シナ海上空で行われた。

航空機観測の飛行コースは図3の通りである。（図3：A-B間。B点は上記平成8年度の観測と異なり、済州島沖をかなり南に下がったところに設定した。図3には同時に行われた日中韓の地上観測サイトも示してある。）前年度と同様、長崎大村空港を基地として、福江沖と済州島南方沖の間の東シナ海上空を、往路高度約2800m（9日）または約1000m（12, 13日）と復路約500mでそれぞれ1時間ずつ飛行した。

雲を避けるため高度および飛行コースは場合に応じて

9日：西高東低の冬型気圧配置で、雲頂は2100~2600m、雲底は450~1000mであった。飛行高度をA→B時は雲頂の上、B→A時は雲底の下となるように選択した。風向は北西ないし西であった。

12日：弱い冬型の気圧配置。雲底は900~1000mであった。往路復路とも雲底以下の高度で飛行

した。B点付近で小雨。風は北西であった。

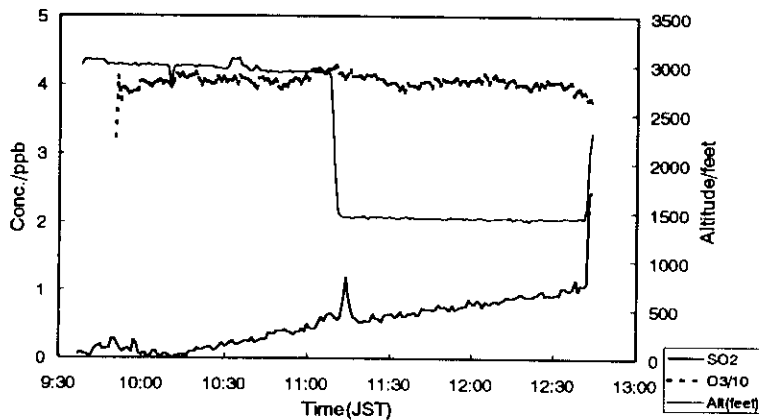


図4：平成9年12月12日に観測されたオゾン、SO₂

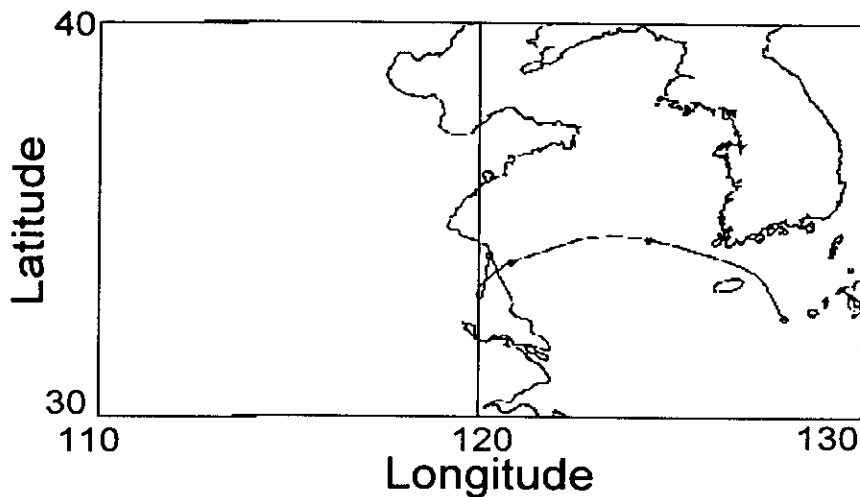


図5：1997年1月11日福江沖で捉えられた気塊の流跡。1月11日午前11時から3日間さかのぼっている。

度は一様に低く、高度500mでも1ppb程度であった。(高度変更点付近に見られる鋭いピークは、下を通る船舶の排煙によるものと

考えられる。)これは前年度の観測と比較するとその違いが顕著である。その原因を明らかにするため、気塊の流跡線解析を行った。その結果を図5と図6とに示す。両者の違いは一目瞭然で、平成9年1月11の気塊は中国中南部の上海周辺を3日前に発して、その周辺でしばらくとどまった後、福江付近まで到達した。スペースの関係で、高さの情報は割愛したが、この流跡は最高でも2000m付近までしか上がっていない。海上で2日かけて移動してきたにも関わらず、まだかなりの濃度のSO₂を含んでいることは、初期の気塊に相当高濃度の汚染質が含まれていたのではないと思われる。一方、12月12日の気塊は、3日前にシベリアを発して、高度も5000m付近まで上昇した後、急速に降下してきたことが分かった。

以上の解析から、大陸から我が国に到達する気塊には、序で述べた3パターン他に、もう一つ、中国中南部から東シナ海を越えて九州に、さらには我が国を縦断するような形で輸送されるものがあることが明らかになった。これらを図示すると、図7のようになる。図でDが、そのような気塊を示している。この気塊には高濃度の大气汚染物質が含まれる可能性がある。

このような汚染気塊の存在は、本研究課題のサブテーマC-1(1)①において開発中のモデル

13日：高気圧がやや張り出した形ながら、天気は悪かった。北～北北西の風。B点付近で小雨であった。雲底は1000～1200mで、観測高度は雲底以下に設定した。

観測されたオゾンおよびSO₂の濃度変化の一例を図4に示した。9年度の観測ではいずれの観測においても雲が多く、特に12日、13日の観測では雲底以下の高度でのみ飛行せざるを得なかった。各観測においてSO₂濃

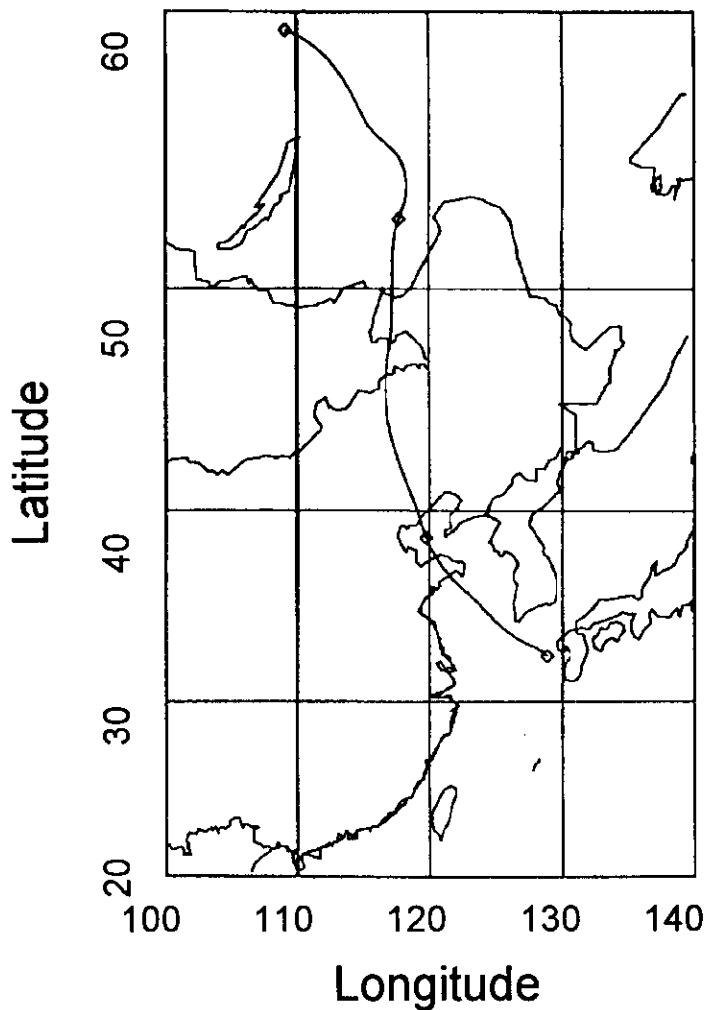
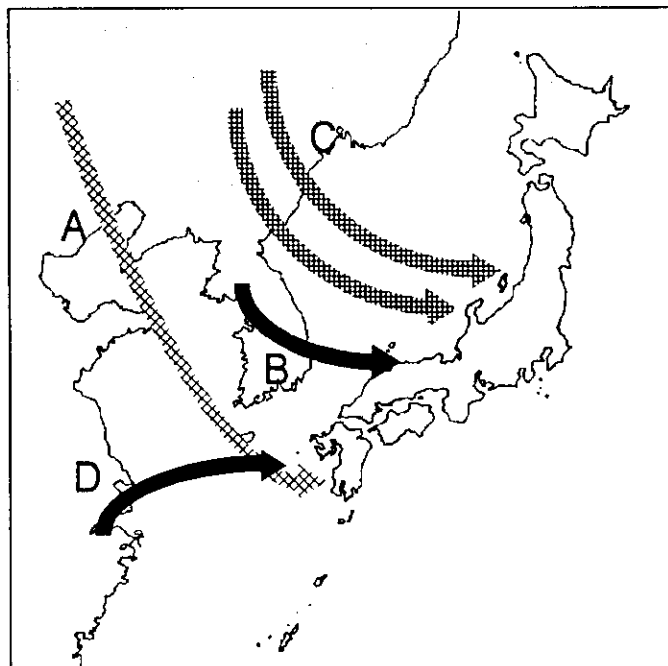


図6：1997年12月12日福江沖で捉えられた気塊の流跡。12月12日午前10時から3日間さかのぼっている。

によっても予見され、特に中国中南部に発生した低気圧が、我が国の南岸を通過するような気象条件の時には、かなり大規模な汚染気塊が我が国を通過するものと指摘されている。このようなモデルの結果を明確に裏付けるようなデータが平成10年度の観測によって得られたことは非常に興味深い。平成10年度の観測は、図3に示した平成9年度と全く同一のコースで、平成11年2月2、4、6日に行われた。飛行高度のパターンは平成8年度、9年度のものとは異なっている。2月2日の観測では高度約500mでも高度約2500mでもSO₂の濃度は非常に高く最高で10ppbを超えていた。



(図8) これはこれまで我々が測った洋上のSO₂としては最も高い濃度である。境界層内にあると思われる低空でも、自由対流圏においても濃度が高いことからかなり強力な混合が起こっていたことがうかがえる。実際この日の気象条件は前日中国中南部にあった低気圧が急速に東シナ海を抜け、本州の南岸を通過するというもので、(図9の天気図参照)、非常に風が強かった。モデルの予測通り、低気圧が汚染気塊

図7：アジア大陸から我が国に流入する気塊の経路

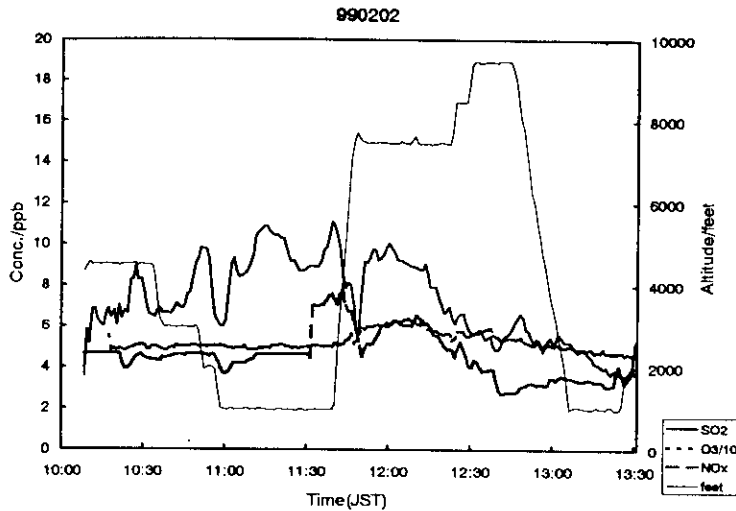


図8：平成11年2月2日に観測されたオゾン、NO_x、SO₂

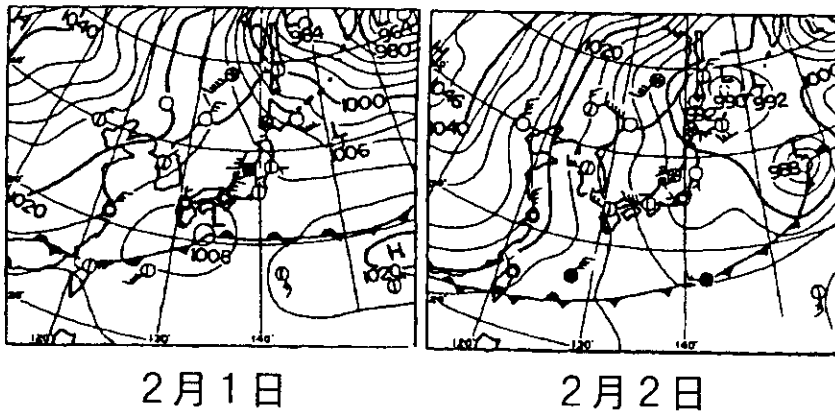


図9：平成11年2月1日、2日の天気図

を引っ張っていったものと考えられる。その後の4, 6日には西高東低の気圧配置で風もかなり強かったが、高濃度の汚染質は観測されなかった。

本課題の研究により、モデルと観測結果の整合性が取れ、モデルの信頼性も確認できたと言える。

(2) 窒素系大気汚染物質の測定
本課題における航空機観測では、高感度窒素酸化物計による NO、NO_x 濃度の測定と前段濃

縮-ECD-ガスクロ法による PAN 濃度の測定を行い、以下に述べるような結果を得た。平成9年度の観測により得られたデータを取りまとめたものの一部(9日のデータ)を表2に示した。NO_x 濃度は PAN 用試料空気採取時刻に対応する時間(10分間)のデータを平均したものである。得られた結果をこれまで日本

周辺海洋上で測定してきた結果と比較してみると、9年度の観測では以下のような特徴が見られた。

- 1) 観測された NO_x 濃度の範囲約 0.8-2.1ppb は、これまでの東シナ海洋上における観測結果と一致している。
- 2) NO_x の空間分布の結果として、12月9日の約 8500 フィート (~2600m) 高度のデータにおいては観測航路に沿って西に向かうにしたがって(即ち日本から離れるにしたがって)、有意の差で濃度の上昇が見られるという特徴がある。これに対して海洋境界層内高度である約 1400 フィート (~430m) のデータにはそのような水平分布の傾向は見られない。
- 3) PAN 濃度は 0.04 から 0.2ppb の範囲の値で、これまでの一連の本航空機観測の中で最も低い濃度領域の結果('94年 11月の屋久島周辺、'95年 11月の佐渡の北方海域上空)に近く、92年度の東シナ海上空での結果(約 0.3-0.9ppb)に比べてかなり低い値であった。
- 4) 3)の結果は、NO_x に対する PAN の濃度比を見てみると今回測定にかかった大気塊の特徴がさらに顕著に表れる。即ち、従来の測定結果における PAN/NO_x 濃度比は凡そ全てのデータが 0.1

表2. '97年度航空機観測における窒素酸化物とPANの測定結果

月日	採取開始時刻 *	採取高度 /feet	NO _x 濃度 /ppbv	PAN濃度 /ppbv	PAN/NO _x 比
12月9日	11:53:30	8410	0.78	0.06	0.08
	12:10:00	8410	1	n.d.	-
	12:22:00	8390	1.12	0.11	0.10
	12:36:30	8410	1.22	0.09	0.07
	13:04:30	1390	2.09	0.17	0.08
	13:18:00	1390	1.73	0.11	0.06
	13:33:00	1400	1.81	0.12	0.07
	13:48:00	1390	2.13	0.11	0.05

注： 採取時間は10分間。空気採取量200ml。
NO_x濃度はPAN採取に対応する時間のNO_x平均値。

-0.4 の範囲に収まっている。それに比べると今回は全データの内 70%以上が 0.1 以下の比であり、全 NO_x 中の PAN の寄与が数パーセントにしかならないという結果であった。ところで、本研究プロジェクトにおいてはこれまで窒素酸化物系化合物を NO_x* (全含窒素酸化物: NO + NO₂ +

PAN + HNO₂ + N₂O₅ + 有機硝酸エステル + (一部の HNO₃, (後述) + etc.) として検出していたが、より一般的に受け入れられている NO_y (HNO₃ についても 100% 近くを捕捉) として検出する方法を採用することとし、従来から使用していた窒素酸化物計に設置した。平成9年度には実験室レベルでその妥当性 (HNO₃ の変換効率: 従来法で約 10% → 変更後 92 ± 5%) を検証した。その結果を受けて、本年度は航空機観測においても NO_y としての実大気観測を初めて実施した。

福江南西沖の東シナ海上空で平成11年2月2日から6日にかけて実施された3回の航空機観測において、上記 NO_y の測定と PAN 試料の採取・分析を行った。

2月2日の観測では、これまで本プロジェクトの中で観測されたことのない高濃度の NO_y と PAN が検出された。91年度より97年度までの観測で検出された NO_x* は最高濃度でも 4ppb 弱、高度 1500m 以上の自由対流圏ではおよそ 1ppb 以下であったのに対して、今回は 1000m 及び 2500m の 2 高度とも、全航路で 3ppb 以上の濃度を示し、最高で 8ppb を越える NO_y 濃度を示した。この結果は、NO_x* 検出システムから NO_y 検出システムへの変更に伴う人為的な差異ではなく、実際の濃度を反映したものであることは、他の 2 回 (2月4, 6日) の観測結果が従来と同程度の濃度レベルを示したこと、PAN 濃度もこの日の濃度のみが 0.7 から 1.6ppb と他の観測日の結果に比べて数倍から十倍高いことから、明らかである。

この結果は、(1) の解析でも述べられたように、当日の平均的な風系が強い北西の風であったことから、中国大陆からの汚染大気を直接捕捉したものであると考えられる。

(3) 航空機搭載型自動連続測定装置による大気中の微量酸性ガスおよびアルデヒドの測定

航空機観測において対流圏大気中の微量酸性ガス (HCl, HNO₃, SO₂) およびアルデヒド (HCHO, CH₃CHO) をより精度良く測定することを目的として、航空機搭載型の酸性ガスおよびアルデヒドの自動連続測定装置を開発した。捕集装置には拡散スクラバーを用いた。拡散スクラバーは多孔質ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) チューブとガラス管から構成される。多孔質 PTFE

チューブに大気を吸引し、多孔質 PTFE チューブ外側に目的ガス成分を捕集する吸収液を流す。多孔質 PTFE チューブは、疎水性のために表面張力の大きい液体は通さず、気体の透過性は優れている。この拡散スクラバーに、大気を吸引すると、粒子は多孔質 PTFE チューブをそのまま通過するが、拡散定数の大きい微量ガス成分は、多孔質 PTFE チューブの内壁を通り吸収液に効果的に捕集される。故に、粒子を除去した後にガス成分を捕集する従来法とは全く発想の異なる新しい方法である。従って、微量ガス成分を選択的に捕集することから粒子を除去するフィルター上で起こるアーティファクトの影響を受けることがなく、且つその構造が極めて簡単なことから大気捕集を連続的に行うことが容易である。本研究に使用した拡散スクラバーの有効長は 50cm、多孔質 PTFE チューブには外径 5 mm ϕ 、内径 4 mm ϕ を、パイレックスガラス管には外径 9 mm ϕ 、内径 6.6mm ϕ を使用した。

酸性ガス (HCl、HNO₃、SO₂) の捕集には超純水を吸収液とする拡散スクラバーを 2 本使用し、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻として捕集した。吸収液中の Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻の全量を濃縮カラムにて濃縮・保持した後、イオンクロマトグラフで分離定量した。また、自動連続測定装置の航空機搭載を可能とするために、イオンクロマトグラフとして、セミマイクロカラムを装着したポータブルイオンクロマトグラフ (島津製 PIA-1000) を用いた。

一方、アルデヒドの捕集には 2,4-ジニトロフェニルヒドラジン (DNPH) 溶液を吸収液とする拡散スクラバーを使用し、HCHO および CH₃CHO を DNPH の誘導體である HCHO-DNPH および CH₃CHO-DNPH として捕集し、HCHO-DNPH および CH₃CHO-DNPH を高速液体クロマトグラフ (HPLC) で分離定量した。また、自動連続測定装置の航空機搭載を可能とするために HCHO-DNPH および CH₃CHO-DNPH の分析にはセミマイクロカラムを装着したポータブル高速液体クロマトグラフ (旭テクネイオン製 HC-2001) を用いた。更に、標準の HC-2001 における UV 検出波長は 254nm であるために DNPH 誘導體の検出には感度が低い。そこで、光源ランプおよび光学フィルターを変更し、UV 検出波長を 360nm に最適化した。

上述したように、拡散スクラバーとイオンクロマトグラフ並びに高速液体クロマトグラフを組み合わせ、大気吸引系および吸収液の送液系におけるポンプおよび自動バルブ等をシーケンサーを用いて自動制御することにより、大気中の HCl、HNO₃、SO₂、HCHO および CH₃CHO の濃度を 15 分サイクルで自動連続測定できる。

平成 9 年 1 月 11、13 日 (平成 8 年度)、同年 12 月 9、12、13 日 (平成 9 年度)、平成 11 年 2 月 2、4、6 日 (平成 10 年度) の期間、上述のように長崎空港を拠点として、福江島の西方における東シナ海上空において、大気観測を行った。機体の最前方右窓に取り付けた採取管と 3/8" テフロン管を通して、大気試料を機内のマニホールドに導入した。そして、マニホールドに接続したテフロン管を介し、2 種類の吸収液を備えた拡散スクラバーへ吸引し、大気中の酸性ガス (HCl、HNO₃、SO₂) およびアルデヒド (HCHO、CH₃CHO) を 15 分毎に自動連続測定した。また、大気中のエアロゾルの粒径別濃度分布をレーザーパーティクルカウンター (Met One 製 Model-237、大気吸引流量は 2.83L/min) で 1 分毎に計測した。

平成 8 ~ 10 年度における航空機観測はほぼ同一のコースで行われた。これらの観測期間を通じて、1 回のフライト中における大気中の HCl、HNO₃、SO₂、HCHO、CH₃CHO 濃度は、いずれのガス成分もほぼ同様な変化を示した。しかしながら、観測された大気中微量ガス成分濃度の絶対値は、同一コースで同一高度であっても、比較的大きな相違が認められた。特に、1999

年2月4日および6日における大気中の HCl、HNO₃、SO₂、HCHO、CH₃CHO の平均濃度(n=25)は、それぞれ、0.12、0.52、0.92、0.29、0.07 ppbv を示した。一方、2月2日の観測(n=12)における大気中の HCl、HNO₃、SO₂、HCHO、CH₃CHO の平均濃度(n=12)は、それぞれ、0.25、1.90、8.14、1.10、0.48 ppbv を示し、2月4日および6日に比較して2～8倍高い濃度が観測された。(図 10 参照) 更に、高度 2000m 以上の自由対流圏においては、過去5年間の航空機観測において、最も高い値を記録した。図 10 から分かるように2月2日の各ガス成分の分布パタ

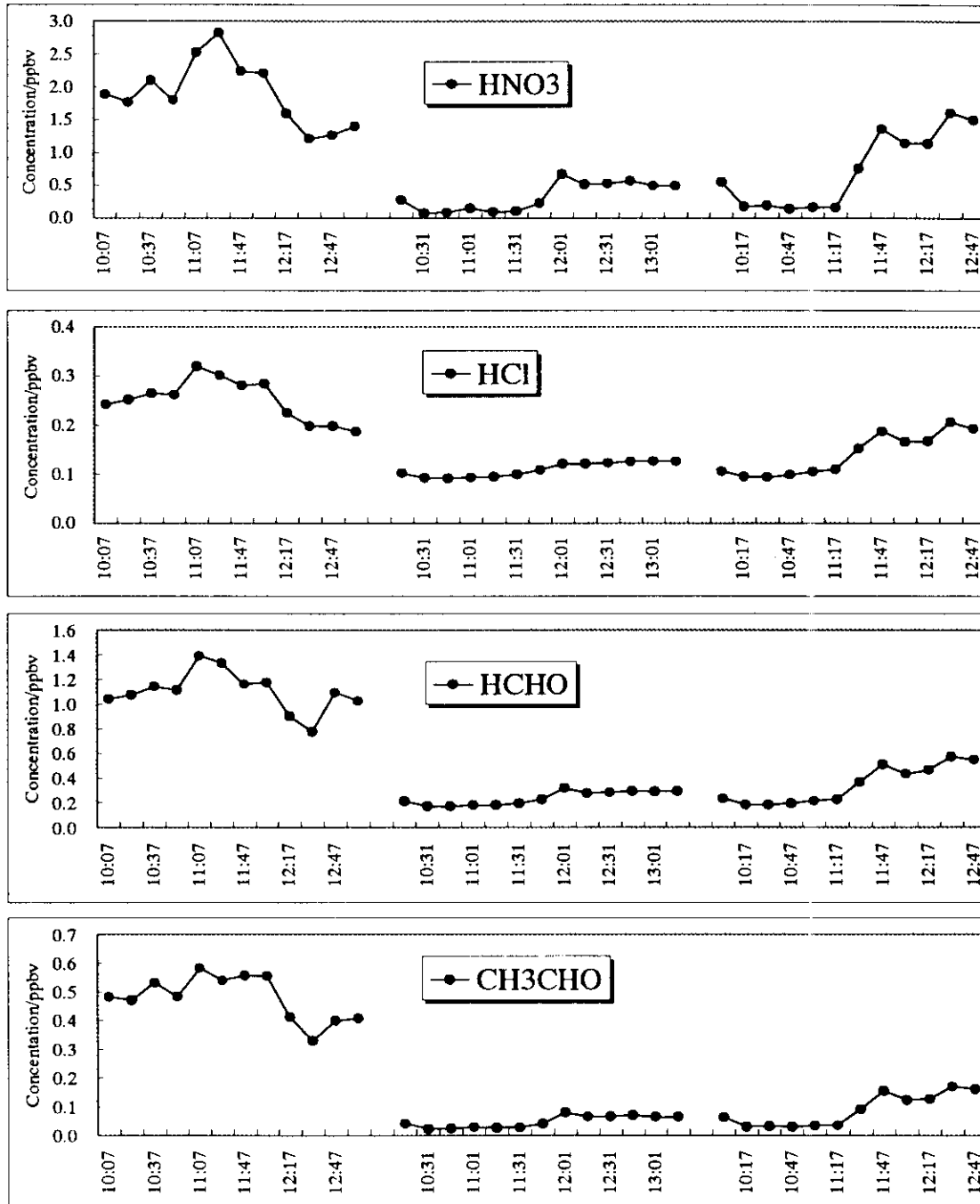


図 10：平成 11 年 2 月の観測における酸性ガスおよびアルデヒド類の濃度分布。

ーンは皆よく類似しており、また2月2日の各汚染物質の分布は図8のSO₂の分布ともよく似ていて、同一の発生源地域から輸送されてきていることを示唆している。

平成8年度(1997年1月)における大気中のHCl、HNO₃、SO₂、HCHO、CH₃CHOの平均濃度(n=16)は、それぞれ、0.20、0.67、2.75、1.15、0.25 ppbvを示した。そして、平成9年度(1997年12月)における大気中のHCl、HNO₃、SO₂、HCHO、CH₃CHOの平均濃度(n=33)は、それぞれ、0.16、0.29、0.65、0.24、0.04 ppbvを示した。後方流跡線解析の結果、平成8年度および平成9年度に観測した気塊は中国北東部より渤海、黄海の上空より移流してきたものである。しかしながら、平成8年度に比べて平成9年度に観測した気塊は自由対流圏から移流してのものであり、平成9年度の観測値のほうが低い値を示したものと考えられる。

また、本観測を通して、NO_xに占めるHNO₃の値は約20%で、1500~2500mにおける自由対流圏での両者の比は、若干1500m以下の境界層内の値より高いことがわかった。また、本観測期間を通して、大気中のHCl濃度は0.1ppbv以上を示し、その挙動は汚染気塊程高くなる傾向を示した。これは、大気中に存在する塩素原子と炭化水素類との反応により生成したものではないかと推測される。

レーザーパーティクルカウンターで測定された大気中のエアロゾル濃度については、主として、観測高度に反比例する鉛直分布が認められた。また、大気中のHCl、HNO₃、SO₂、HCHO、CH₃CHOと同様に、平成11年2月2日の観測においてもエアロゾル濃度は高い値を示した。更に、その鉛直分布にはあまり顕著な傾向は認められず、自由対流圏においてもかなり高濃度を記録した。

(4) 中国及び韓国の地上観測データ

中国(北京大学)と韓国(科学技術研究院)は、上記合意に基づき、平成8年1月6日から20日にかけてそれぞれ青島(中国)およびKangwha島と済州島(韓国)において地上観測を行った。

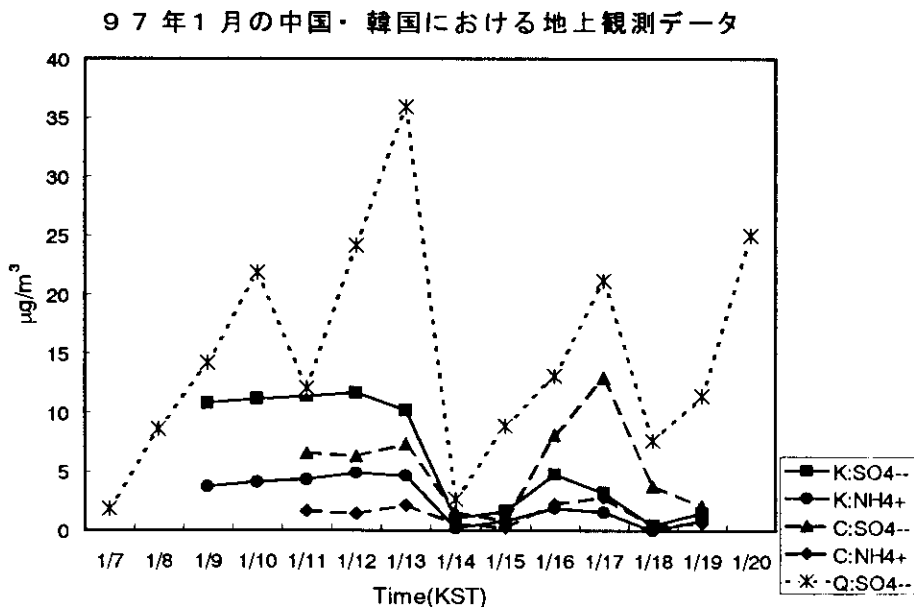


図11: 中国青島(Q)、韓国Kangwha島(K)と済州島(C)におけるエアロゾル中の硫酸塩濃度の変化

その結果の一部を図11に示す。このグラフは粒径2.5µm以下の小さい粒子の変動を示したものである。詳細については我が国における地上観測のデータとともに解析される。

このように共同で観測を行ってデータ交換を行うことができたことは、今後の国際協力の進展に重要な

重要な一歩を踏み出すことができたと言える。

3. 本研究により得られた成果

1) 東シナ海上空における大気汚染物質の空間分布に関するデータが得られた。

2) 気塊の出発・経路地別に分けると、前期の地球環境研究総合推進費課題による研究で明らかになった①大陸北部から日本海北部を経由して東日本に到達する気塊、②中国北部から韓国、日本海を経由して西日本に到達する気塊、③中国北部から黄海、東シナ海を経由して九州地方南部に到達する気塊の3種類の他に、④中国南部から東シナ海を経由して日本を縦断する気塊があることが分かった。

3) 上記④の気塊は特に一定の気象条件の下では非常に高い濃度の汚染物質を含むことが明らかになった。この気象条件による高濃度汚染の出現はモデルによって予測されるものとよく一致した。

4) 日本周辺近海上空の NO_x の高度分布を比較して、上記④の輸送パターンの時に上空においても NO_x 濃度が高くなっていることが明らかとなった。平成 10 年度の観測においても、従来見られなかった高濃度を記録した。

5) HCl, HNO₃, HCHO 等の微量ガス成分も気塊の出発・経路地により特徴的な濃度変動を示すことが明らかとなった。これらの分布パターンは同じ気塊の中では非常によく似ていた。

6) 中国、韓国との共同観測が行われ、データが交換、共有された。今後両国との共同研究を進める上で、重要な一歩が踏み出せたものと言える。

[国際共同研究等の状況]

(1) IGAC/APARE プログラム

本研究は IGAC/APARE に認定された研究として IGAC/APARE 傘下に大規模な観測を行っている。平成 10 年 3 月にソウル、平成 10 年 10 月には香港において会合を開き、韓国、中国、台湾、香港等の研究者と情報を交換した。

(2) 日韓環境保護協力協定

航空機観測時の済州島における地上観測の実施、データの交換

カウンターパート：S.-G. Shim 博士（韓国科学技術研究院）

強化観測時に同時に航空機で観測を行う

カウンターパート：J.-S. Cha 博士（韓国国立環境研究院）

[研究成果の発表状況]

(1) 口頭発表

1) 坂東博、板野泰之、畠山史郎、村野健太郎、渡辺征夫、大和政彦、秋元肇：第 2 回大気化学討論会、(1996)

「日本海周辺海洋上における窒素酸化物の濃度分布」

2) 畠山史郎、村野健太郎、向井人史：第 13 回エアロゾル科学・技術研究討論会 (1996)

「大陸に由来する硫酸塩粒子/SO₂の比と輸送経路」

3) 畠山史郎、村野健太郎、向井人史、酒巻史郎、坂東博、渡辺征夫、田中茂、駒崎雄一、栗原直登、梶井克純、秋元肇：第 37 回大気汚染学会 (1996)

「IGAC 調査(1)－1995 年 11 月の調査の概要－」

- 4) 畠山史郎、村野健太郎、向井人史、酒巻史郎、坂東博、渡辺征夫、田中茂、駒崎雄一：同上
「IGAC調査(2)ーアジア大陸と日本の間の海洋上空のSO₂の空間分布ー」
- 5) 畠山史郎、村野健太郎、向井人史、酒巻史郎、坂東博、渡辺征夫、田中茂、：第7回大気化学シンポジウム (1996)
「日本とアジア大陸の間の海上の大気汚染物質の分布と起源」
- 6) S. Hatakeyama, K. Murano, H. Mukai, F. Sakamaki, H. Bandow, I. Watanabe, M. Yamato, S. Tanaka, and H. Akimoto: International Symposium on Acidic Deposition and its Impact, Tsukuba, 1996
"Distribution of air pollutants over the seas between Japan and the Asian Continent"
- 7) S. Hatakeyama: 6th IGAC/APARE Workshop, Hong Kong, 1997
"Distribution of sulfur containing pollutants over the Seas between Japan and the Asian continent",.
- 8) M. Uematsu: 6th IGAC/APARE Workshop, Hong Kong, 1997
"Aerosol and Rain Chemistry Project of the Western North Pacific"
- 9) 植松光夫・木下勝元：日本地球化学会年会 (1996)
「北太平洋上における降水中不溶性粒子の個々の粒径とその化学組成」
- 10) 植松光夫・石堂正紀：日本海洋学会秋季大会 (1996)
「北部北太平洋における降水中の硫酸塩と硝酸塩濃度」
- 11) K. Takeda, K. Marumoto, T. Minamikawa, H. Sakugawa, K. Fujiwara: 8th Russian-Japan Joint Symposium on Analytical Chemistry, Moscow, 1996
"Measurements of heavy metals and lead isotope ratios in the rain and snow deposition in western Japan"
- 12) 高見朗、佐久川弘、竹田一彦、藤原祺多夫：第37回大気環境学会 (1996)
「広島県における大気中のオゾン、窒素酸化物ならびに過酸化物の測定」
- 13) K. Fujiwara, H. Sakugawa, K. Takeda, International Symposium on Acidic Deposition and its Impact, Tsukuba, 1996.
"Study on organic acid and metal ions in rain water at Hiroshima prefecture"
- 14) 駒崎雄一、田中 茂：第2回大気化学討論会 (1996).
「拡散スクラバー法を用いた微量ガス成分 (HNO₃, HCl, SO₂, NH₃, HCHO, CH₃CHO, H₂O₂) の測定と航空機観測への応用」
- 15) 駒崎雄一、成田 祥、田中 茂、第37回大気環境学会 (1996)
「IGAC調査(8)ー航空機観測による大気中の微量ガス成分 (HCl, HNO₃, SO₂, HCHO, CH₃CHO, H₂O₂) の濃度分布ー」
- 16) 駒崎雄一、成田祥、田中茂：第7回大気化学シンポジウム (1996).
「大気中微量ガス成分(HCl, HNO₃, SO₂, HCHO, CH₃CHO, H₂O₂)の航空機観測結果」
- 17) Shiro Hatakeyama: 7th Asian Chemical Congress, Hiroshima, Japan, 1997
"Sulfur containing air pollutants over Pacific Rim region of East Asia"
- 18) 畠山史郎、鶴野伊津志、村野健太郎、向井人史：第14回エアロゾル科学・技術研究討論会 (1997)
「東シナ海上空の大気汚染物質航空機観測と桜島からのブルーム」
- 19) 畠山史郎：第38回大気環境学会 (1997)
「北東アジアにおける国際共同観測」

- 20) 畠山史郎、村野健太郎、酒巻史郎、向井人史、坂東博、田中茂、駒崎雄一：同上
「IGAC調査（1）－1996年度（1997年1月）観測の概要」
- 21) 畠山史郎、村野健太郎、坂東博、板野泰之、駒崎雄一：同上
「IGAC調査（2）－1996年度（1997年1月）観測におけるオゾンとNO_x」
- 22) 畠山史郎、向井人史、村野健太郎、坂東博、駒崎雄一：同上
「IGAC調査（3）－1996年度（1997年1月）観測におけるSO₂と硫酸塩」
- 23) 酒巻史郎、畠山史郎、村野健太郎：同上
「IGAC調査（4）－長崎県福江島及びその周辺海洋上大気中の軽炭化水素の測定」
- 24) S. Hatakeyama: The 6th US-Japan Workshop on Global Change Research, Honolulu, U.S.A., 1998
“Distribution and routes of long-range transport of SO₂ and sulfate aerosols over the seas of northeast Asian Pacific rim regions”
- 25) T. Shimohara, O. Oishi, A. Utsunomiya, H. Mukai, S. Hatakeyama, and K. Murano: 7th IGAC/APARE Workshop, Seoul, Korea, 1998
“Ground-based observations of gaseous and particulate pollutants in Goto Islands and Fukuoka during the PEACAMPOT mission in January, 1997”
- 26) I. Watanabe, M. Nakanishi, J. Tomita, S. Hatakeyama, K. Murano, H. Bandow: Nitrogen the Confer Ns, Amsterdam, Netherlands, 1998
“Atmospheric peroxyacyl-nitrates in urban/remote sites and lower troposphere around Japan”
- 27) 古谷浩志、廣川淳、梶井克純、秋元肇、駒崎雄一、田中茂、畠山史郎：大気化学シンポジウム (1998)
「夏季沖縄周辺における大気中微量ガス成分 (O₃, NO_x, HNO₃, HCl, HCHO, CH₃CHO) の航空機観測」
- 28) 畠山史郎：21世紀に向けた大気圏環境化学の研究小集会 (1998)
「東アジアにおける大気酸性化現象の解明と影響評価から対策まで」
- 29) 畠山史郎、村野健太郎、酒巻史郎、向井人史、坂東博、駒崎雄一、橋本茂：第39回大気環境学会 (1998)
「IGAC調査（1）－1997年度観測の概要」
- 30) 坂東博、前田淳、渡辺征夫、橋本茂、酒巻史郎、村野健太郎、畠山史郎：同上
「IGAC調査（2）－日本周辺海洋上における窒素酸化物及びPANの分布とその特徴」
- 31) 酒巻史郎、畠山史郎、村野健太郎：同上
「IGAC調査（3）1997年12月長崎県福江島及びその周辺海上での軽炭化水素の測定」
- 32) 下原孝章、大石興弘、宇都宮彬、向井人史、畠山史郎、村野健太郎：同上
「IGAC調査（5）長崎県五島及び福岡県太宰府市における冬季のガス、エアロゾル調査－エアロゾルの粒径分布特性と酸性度及び化学形態－」
- 33) 畠山史郎、村野健太郎、向井人史、下原孝章、大石興弘、宇都宮彬、Yong-Pyo Kim：同上
「IGAC調査（6）－1997年1月の五島および済州島でのエアロゾルデータの比較」
- 34) Shiro Hatakeyama: 6th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality, Beijing, China, 1998

"SO₂ and sulfate aerosols transported from Asian continent and their potential impact on forests in Japan"

35) 畠山史郎、村野健太郎、酒巻史郎、向井人史、坂東博、駒崎雄一、田中茂：第9回大気化学シンポジウム(1999)

「アジア大陸から輸送される大気汚染物質の冬季東シナ海上空での航空機観測」

(2) 論文発表

論文等 (○は査読誌)

1) '94 IGAC/APARE/PEACAMPOT 航空機・地上観測データ集、畠山史郎編、pp.139、国立環境研究所、1996.

2) '95 IGAC/APARE/PEACAMPOT 航空機・地上観測データ集、畠山史郎編、pp.170、国立環境研究所、1996.

○3) H. Akimoto, H. Mukai, M. Nishikawa, K. Murano, S. Hatakeyama, C.M. Liu, M. Buhr, K.J. Hsu, D.A. Jaffe, L. Zhang, R. Honrath, J.T. Merrill, and R.E. Newell: *J. Geophys. Res.*, **101**, 1999-2010 (1996).

"Long-Range Transport of Ozone in the East Asian Pacific Rim Region. "

○4) D.A. Jaffe, R.E. Honrath, L. Zhang, H. Akimoto, A. Shimizu, H. Mukai, K. Murano, S. Hatakeyama, and J. Merrill: *J. Geophys. Res.*, **101**, 2037-2048 (1996).

"Measurements of NO, NO_y, CO, and O₃, and Estimation of the Ozone Production Rate at Oki Island, Japan during PEM-WEST. "

○5) 宇都宮彬、宝来俊一、山下敬則、穴井功一、森崎澄江、今村修、川井田哲郎、金城義勝、大和康博、大石興弘、畠山史郎、村野健太郎：大気環境学会誌、31, 132-140 (1996).

「九州・沖縄地域のエアロゾル濃度の変化と地域特性」

○6) 渡辺征夫、中西基晴、前田恒昭、畠山史郎：大気環境学会誌、31, 213-223 (1996).

「遠隔地および下部対流圏における大気中Peroxyacyl Nitrate類の観測調査手法の開発」

○7) 鹿角孝男、薩摩林光、佐々木一敏、鹿野正明、太田宗康、畠山史郎、村野健太郎：大気環境学会誌、31, 282-291 (1996).

「八方尾根および長野市における浮遊粒子状物質と酸性降下物の特性」

○8) S. Hatakeyama, K. Murano, H. Mukai, F. Sakamaki, H. Bandow, I. Watanabe, M. Yamato, S. Tanaka, and H. Akimoto: *J. Aerosol Res. Jpn.*, **12**, 91-95 (1997)

"SO₂ and Sulfate Aerosols over the Seas between Japan and the Asian Continent."

○9) I. Watanabe, M. Nakanishi, J. Tomita, S. Hatakeyama, K. Murano, H. Mukai, and H. Bandow: *Environmental Pollution*, **102**, S1, 253-261 (1998).

"Atmospheric peroxyacyl nitrates in urban/remote sites and the lower troposphere around Japan."