

機関番号：12601  
 研究種目：特定領域研究  
 研究期間：2006-2010  
 課題番号：18067005  
 研究課題名(和文) 海洋に沈着する大気粒子中の微量元素と有機物質および海洋起源大気粒子の生成過程  
 研究課題名(英文) Atmospheric deposition of particulate trace metals and organic carbon to the ocean and production processes of marine aerosols  
 研究代表者  
 植松 光夫 (UEMATSU MITSUO)  
 東京大学・大気海洋研究所・教授  
 研究者番号：60203478

## 研究成果の概要 (和文)：

大気・海洋表層の物質循環過程の定量的解析のため、海洋大気中の気体や粒子の分析法開発・観測・モデル計算を行った。陸起源大気粒子の沈着が含有鉄分により十分に植物プランクトンの大増殖を引き起こす可能性を観測から見出した。西部北太平洋の海洋大気粒子中の窒素や炭素の大部分は有機態であり、いずれも海洋起源であることを解明した。また、モデル、衛星データ等により黄砂が地球を一周半以上も輸送されることを発見した。

## 研究成果の概要 (英文)：

Under the Western Pacific Air-Sea interaction Study (W-PASS), we developed new analytical methods, conducted shipboard measurements, and simulated global transport of terrestrial aerosols. Possible phytoplankton bloom over the sea caused by deposition of mineral particles contained iron was observed in the North Pacific. Most of nitrogen and carbon in marine aerosol over the western North Pacific existed as organic forms and clarified to be marine origin. Dust particles emitted from Asian deserts were found to travel more than 1.5 times around the globe.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	51,100,000	0	51,100,000
2007年度	30,600,000	0	30,600,000
2008年度	17,207,000	0	17,207,000
2009年度	11,000,000	0	11,000,000
2010年度	9,000,000	0	9,000,000
総計	118,907,000	0	118,907,000

## 研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境分析・環境変動・大気現象・地球化学・地球変動予測

## 1. 研究開始当初の背景

北太平洋亜寒帯海域で SEEDS, SEEDS II といった鉄散布実験が我が国主導で行われ、鉄が海洋生物基礎生産の活性化に寄与することが示されていた。台風・低気圧という大気擾乱が海洋基礎生産の増加を引き起こすことも分かりつつあった。しかし、陸起源エアロゾルに含まれる鉄を始めとする微量化学

成分が海洋生物生産への程度貢献するかは、定量的に把握されていなかった。また、生物生産の活発な海洋からは、硫黄化合物などが大気へ放出されているが、大気・海洋間における物質の相互作用は明らかではなかった。そのため、海洋表層と大気下層間の物質循環を総合的に理解する必要性があった。

陸起源粒子の海洋への沈着が海洋生物生

産の活性化を起こすか、また、海洋生物の増加によって生成・放出される気体の粒子化による大気粒子の増加により気候が変わるか、を明らかにすることが急務とされていた。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、陸起源エアロゾルが海洋の輸送と沈着フラックスの見積もり、それに対する海洋表層の生物化学的な影響の把握である。

(1) エアロゾルの沈着フラックスを見積もるために、鉄を含む微量金属や、ジカルボン酸を含む有機化合物をはじめとするエアロゾルの含有成分濃度や化学組成の海洋への輸送形態を、海洋観測プラットフォームである観測船や陸上観測定点で計測する。その結果を基に、化学輸送モデルの実証を行い、さらなる予測を可能にする。

(2) 陸起源エアロゾルは海洋表層の生物を活性化させ、生物起源気体の海水から大気への放出を促す。生物起源気体は、海洋大気中で新たな粒子を生成し、海洋エアロゾルの増加をもたらす。また、海水から生成される海塩粒子も同様にエアロゾル個数を増加させるので、雲・霧の凝結核との関係を海洋大気観測から明らかにし、放射強制力へ影響を見積もる。

## 3. 研究の方法

(1) 海洋大気中エアロゾルの物理・化学特性や時空間的変動を測定するために SMPS と ATOFMS を導入し、沖縄県・辺戸岬、岩手県・大槌、北海道・落石岬などの地上観測点や、学術研究船である淡青丸、白鳳丸、海洋地球研究船みらいによる研究航海で大気・海洋観測を行う。

(2) 海洋大気中有機エアロゾル、炭素・窒素同位体比の分析法を開発し、沖縄・辺戸岬、小笠原・父島、韓国・済州島や、白鳳丸航海で海洋観測を行う。対象とする化学成分は、ジカルボン酸類・全炭素・全窒素・安定炭素同位体比・窒素同位体比とし、これらの成分の起源の同定や経年変化及び濃度分布を明らかにしていく。

(3) 気体から粒子化して生成する二次粒子生成過程を明らかにするために、前駆体のひとつであるアンモニアガスを高感度に測定できる装置を開発する。ガス態・粒子態のアンモニアを陸上・海洋上で観測する。

(4) 海洋大気中エアロゾルの観測結果を基に、東アジア地域の輸送モデルの最適化を図

る。黄砂輸送に関しては、衛星データを取込んだ総合モデル解析を行う。さらに、他の化学成分についても最適化し、北半球の大気化学輸送モデルの輸送・沈着フラックスの確度を上げる。

(5) 本研究の成果を、国内学会である地球化学会や海洋学会で、米国地球物理連合の特別セッション、IGBP/SOLAS、IOC/WESTPAC や IGAC 国際シンポジウムで発表し、論文公表を行う。

## 4. 研究成果

(1) エアロゾル飛行時間型質量計 (ATOFMS) は、エアロゾルの物理化学的性質を分析する最先端の装置で、個々のエアロゾルの粒径と無機成分、特に金属成分と安定な有機成分の測定方法を確立した。海洋大気中のエアロゾルの測定は、船舶を用いる必要があり、観測船搭載可能なコンテナを製作した。

本装置を含め、大気観測機材を沖縄県・辺戸岬に設置し、集中観測を他の計画研究班と合同で行った。その後、白鳳丸 KH-08-2 次航海と「みらい」MR08-6 次航海で長期観測を実施した。

集中観測によって、海洋大気バックグラウンドに存在する微小粒子の鉄は、鉄とバナジウムの相関から、船舶から放出されている排気物質である可能性が示唆された。また、海洋大気中で高時間分解によるエアロゾル計測から、夜間にエアロゾル表面へ硝酸塩が付着することを見出した。また、航海中の火山噴火活動を検出し、モデル班と連携し解析をした。

従来の手法であるフィルター法を用いることで、西部太平洋の外洋と沿岸域のエアロゾル中のリン濃度の分布を明らかにし、海洋上で存在するエアロゾル中リンが大気海洋境界面で循環している可能性を見出した。このことから、海洋表層薄膜や気泡の存在が海洋起源物質濃縮へ関与していることを示唆した。

黄砂現象を船上で観測し、海洋表層中の懸濁物質の組成変化から、黄砂中の鉄が植物プランクトンの大増殖を引き起こすだけの鉄供給があることを示した。

気体から粒子化する現象を直接計測可能な温度制御型粒子計測を行うため、屋外設置型の観測シェルターを製作した。

陸上の沖縄・辺戸岬岩手県・大槌、北海道・落石岬や、南北太平洋上の白鳳丸航海 KH-08-2、みらい航海 MR08-6・MR09-1 で一部期間無人連続観測を行った。初夏を中心に <20 nm の粒子が高濃度になるイベントや、アジア大陸由来の物質が新粒子生成に関わり、海洋性気団より顕著な働きをすることを見出した。

(2) 海洋大気エアロゾルには無機成分と有機成分が含まれるが、炭素成分は、元素状炭素と有機炭素から構成される。有機炭素中カルボン酸は、発生源の同定に用いられているが、その存在形態は十分に明らかになっておらず、本研究では主に、ジカルボン酸やヒドロキシカルボン酸を計測することで、その定量的な寄与を示した。

小笠原・父島における観測では、ジカルボン酸の測定以外にも全炭素・全窒素・炭素安定同位体比をはじめとした総合的な解析を行い、季節・経年変化を明らかにし、これらの主な起源は、東アジアに求められること、一方で、海洋起源不飽和脂肪酸の存在と光化学酸化反応の解明が必要であることを見出した。

白鳳丸航海による海洋観測では、エアロゾルとガス、両者に含有される有機酸を分析・検討した。ガス態にはギ酸、酢酸に代表される低分子有機酸が多く、高分子は存在量が低下すること、ガスよりもエアロゾルにより多く存在することが明らかとなった。さらに、陸上・海洋上の全般的な解析から西部北太平洋の海洋エアロゾル中有機態窒素は、全窒素の67%を占めており、また全炭素中の88%が海洋起源と見積もられた。風速と良い相関を示したことから、海洋表面からの飛沫が重要な起源であるも示唆された。

(3) マイクロフローアンモニア計と濃縮カラム法を組み合わせることで、海洋大気中アンモニアガスを高感度で計測可能な自動連続測定装置を開発した。本測定装置を用いてアンモニアガスを、従来の粒子測定法(AMSやフィルター法)を用いてアンモニウム塩を、沖縄・辺戸岬において同時観測し、その化学的挙動をとらえることができた。

この手法を用いて、海洋大気中アンモニアガス・アンモニウム塩の測定を白鳳丸航海KH-08-2、海鷹丸第27次遠洋航海で行った。人為起源物質の影響が少ない南極海域では、アンモニアやジメチルスルフィドといった生物起源と考えられるガス成分濃度が上昇し、ナノ粒子を増加させ、核生成に寄与していることを見出した。さらに、採取した粒子を電子顕微鏡観察法と水透析法により状態を分析し、アンモニアガスと粒子の海洋大気における役割を明らかにした。

(4) 全球エアロゾル輸送モデル(SPRINTARS)、NASA・CALIPSO衛星、国立環境研究所が開発する地上レーザーレーダーネットワークの計測結果を基に、アジア起源ダストの輸送過程を解析した。その結果、約2週間で地球を一周すること、気候や海洋生態系など多岐にわたって影響を与えることが分かった(Nature Geoscienceへ掲載)。さらに、米大

陸の対流圏全層にわたって輸送されたアジア起源ダストと異常気象の関係を見出した。

2008年の白鳳丸航海時に計測された硫酸塩粒子データを基に、ハワイのキラウエア火山由来のエアロゾルが北太平洋上に広範囲に輸送され、雲粒子の変調や大気放射場に影響を与えることも分かった。貿易風帯での積雲の粒径を23%小さくし、雲被覆率を37%増加させていること(Twomey効果)を明瞭に示した。

(5) 国内では、地球化学会年会や日本海洋学会など、海外では、SOLAS International Open Science Meeting・IOC/WESTPAC国際シンポジウム・IGAC国際シンポジウム、米国地球物理連合秋季大会などでの特別セッションにおいて、招待講演も含め、研究成果を発表した。また、同時に国内外の研究者とも交流を持ち、本研究に広がりをもたらし、高い評価を得ることができた。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計112件)

- ① Osada, K.、他10人、Uematsu, M.、 “Temporal and Spatial Variations of Wet Deposition Flux of Mineral Dust in Japan” SOLA、査読有、7巻、2011、049-052
- ② Iwamoto, Y.、他5人、Uematsu, M.、 Biogeochemical implications of increased mineral particle concentrations in surface waters of the northwestern North Pacific during an Asian dust event、Geophysical Research Letters、査読有、38巻、2011
- ③ Furutani, H.、Meguro, A.、Iguchi, H.、Uematsu, M.、Geographical distribution and sources of phosphorus in atmospheric aerosol over the North Pacific Ocean、Geophysical Research Letters、査読有、37巻、2010
- ④ Kawamura, K.、Barrie, LA.、Toom-Sauntry, D.、Intercomparison of the measurements of oxalic acid in aerosols by gas chromatography and ion chromatography、Atmospheric Environment、査読有、44巻、2010、5316-5319
- ⑤ Uematsu, M.、Wells, M.L.、Tsuda, A.、Saito, H.、Introduction to Subarctic iron Enrichment for Ecosystem Dynamics Study II (SEEDS II)、Deep-Sea Research II、査読有、56巻、2009、2731-2732
- ⑥ Uno, I.、他4人、Uematsu, M.、他4人、Asian dust transported one full circuit around the globe、Nature Geoscience、査

読有、2巻、2009、557 - 560

⑦ Duce, R.A.、24人、Uematsu, M.、他4人、Impacts of Atmospheric Anthropogenic Nitrogen on the Open Ocean、Science、査読有、320巻、2008

⑧ Fu P.、Kawamura K.、Okuzawa K.、Aggarwal S. G.、Wang G.、Kanaya Y.、Wang Z.、Organic molecular compositions and temporal variations of summertime mountain aerosols over Mt. Tai, North China Plain、Journal of Geophysical Research、査読有、113巻、2008

⑨ Kawamura, K.、Narukawa, M.、Li, S.-M.、Barrie, L.A.、Size distributions of dicarboxylic acids and inorganic ions in atmospheric aerosols collected during polar sunrise in the Canadian High Arctic、Journal of Geophysical Research、査読有、112巻、2007

⑩ Matsumoto, K.、Minami, H.、Hayano, T.、Uyama, Y.、Tanimoto, H.、Uematsu, M.、Regional climatology of particulate carbonaceous substances in the northern area of the east Asian Pacific rim、Journal of Geophysical Research、査読有、112巻、2007

⑪ Osada, K.、Hara, K.、Wada, M.、Yamanouchi, T.、Matsunaga, K.、Lower Tropospheric Vertical Distribution of Aerosol Particles over Syowa Station, Antarctica from Spring to Summer in 2004、Polar Meteorological Glaciology、査読有、20巻、2006、6-27

⑫ Nakamura, T.、Ogawa, H.、Kumar, D.M.、Uematsu, M.、Contribution of water soluble organic nitrogen to total nitrogen in marine aerosols over the East China Sea and western North Pacific、Atmospheric Environment、査読有、40巻、2006、7259-7264

〔学会発表〕(計158件)

① Uematsu, M. (Invited)、Linkages in Biogeochemical Cycles Between Surface Ocean and Lower Atmosphere over the Western North Pacific Ocean、International Symposium “Roles of the Indo-Pacific Oceans in Climate Change and Variability in Commemoration of the 50th Anniversary of IOC/UNESCO”、2010年12月2日、東京・国連大学 ウ・タント国際会議場

② 長田和雄、ダスト沈着量の季節変化と水平分布、第27回エアロゾル科学・技術研究討論会、2010年8月5日、名古屋市・名古屋大学シンポジオン

③ Kawamura, K.、Long-term trends of aerosol carbon and nitrogen, their stable

isotopic compositions, and water-soluble organic carbon in the western North Pacific、AGU fall meeting、2009年12月14-18日、San Francisco, USA

④ 植松光夫、大気を通して海洋へ輸送される化学物質に関する研究—日本海洋学会賞受賞記念講演、日本海洋学会春季大会、2009年4月7日、東京都・東京大学本郷キャンパス

⑤ 河村公隆、海洋大気中の低分子ジカルボン酸の粒径分布：2008年春の沖縄辺戸岬におけるエアロゾル観測、第14回大気化学討論会、2008年10月29日、横浜市・海洋研究開発機構・横浜研究所

⑥ 長田和雄、遠隔大気中での低濃度アンモニア測定、大気環境学会、2008年9月17日、石川県金沢市・金沢大学

⑦ Uematsu, M.、Western Pacific Air-Sea interaction Study (W-PASS) project 2006-2010 - Linkages in biogeochemical cycles between surface ocean and lower atmosphere、The 3rd International Workshop on Asian Dust and Ocean EcoSystem (ADOES)、2007年10月24-28日、中国・廈門

⑧ 三浦和彦、海洋および山岳大気ナノ粒子の粒径分布、第24回エアロゾル科学・技術研究討論会、2007年8月11日、埼玉県和光市・国立医療科学技術院

〔図書〕(計13件)

① 河村公隆、培風館、地球化学講座8「地球化学実験法」、2010、11-20

② 三浦和彦、長田和雄、河村公隆、古今書院、黄砂、2009、113-118・139-145・285-296

③ 河村公隆、日本気象学会、気象研究ノート第218号「エアロゾルの気候と大気環境への影響」、2008、18

④ 植松光夫、丸善・第五版実験化学講座「環境化学」、2007、71-74・226-230

⑤ 河村公隆、培風館、地球化学講座7「環境の地球化学」、2007、14-24・50-69

〔その他〕

ホームページ等

<http://w-pass.solas.jp/>

<http://mits10.aori.u-tokyo.ac.jp/uelabo/>

<http://www.rs.kagu.tus.ac.jp/miura/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

植松 光夫 (UEMATSU MITSUO)  
東京大学・大気海洋研究所・教授  
研究者番号：60203478

### (2) 研究分担者

河村 公隆  
北海道大学・低温科学研究所・教授  
研究者番号：70201449  
三浦 和彦 (MIURA KAZUHIKO)  
東京理科大学・理学部・准教授  
研究者番号：00138968  
長田 和雄 (OSADA KAZUO)  
名古屋大学・大学院環境学研究科・准教授  
研究者番号：80252295  
鵜野 伊津志 (UNO ITSUSHI)  
九州大学・応用力学研究所・教授  
研究者番号：70142099

### (3) 連携研究者

向井 人史 (MUKAI HITOSHI)  
国立環境研究所・炭素循環研究室・室長  
研究者番号：30157713