

機関番号：24403

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006～2010

課題番号：18067011

研究課題名（和文）反応性微量成分による海洋大気化学過程の変調

研究課題名（英文）Anthropogenic impact on atmospheric trace species and their effects to the air-sea chemical interaction

研究代表者

坂東 博 (BANDOW HIROSHI)

大阪府立大学・工学研究科・教授

研究者番号：80124353

研究成果の概要（和文）：沖縄辺戸岬において酸化態( $\text{NO}_y$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) および還元態( $\text{NH}_3$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) 窒素化合物等の観測を行い、含窒素化合物の濃度レベル、その変動と変動要因を明らかにした。これら観測結果と化学輸送モデルによる計算結果の比較から、東アジア地域から周辺地域にもたらされる含窒素化合物の量を評価する基礎データを得ることができた。またガス態と粒子態の分配とその支配要因を明らかにすることができた。

研究成果の概要（英文）：Monitoring of the oxidative and reductive nitrogen species,  $\text{NO}_y$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3^-$  and  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NH}_4^+$ , has been performed at Cape Hedo, Okinawa, and their concentration levels, variability and its causes have been clarified. Comparing with the model-calculated concentrations by CMAQ chemistry-transport models, quantitative data base, which can be used as reference data for evaluating the nitrogen load to the area from the East Asian region, has been obtained. Also, the partitioning between gaseous and particulate phases of nitrates and ammonia and its controlling factors have been partly revealed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	29,900,000	0	29,900,000
2007年度	27,100,000	0	27,100,000
2008年度	13,300,000	0	13,300,000
2009年度	12,300,000	0	12,300,000
2010年度	9,500,000	0	9,500,000
総計	92,100,000	0	92,100,000

研究分野：大気化学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：硝酸塩、沖縄辺戸岬、気塊依存性、反応性窒素化合物、海洋-大気の窒素循環

## 1. 研究開始当初の背景

(1) アジアにおけるエネルギー使用量は、1980年と2003年を比べると約2倍となっている。それに伴い、二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ ) や窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) などの大気汚染物質の放出量も増加している。その中でも、窒素酸化物は1980年に比べ2003年では176%増加している。海洋大気中に存在する窒素酸化物は大気中の連鎖反応サイクルの活性を支配する因子であるばかりでなく、最終的に硝酸 ( $\text{HNO}_3$ ) もしくは硝酸塩 ( $\text{NO}_3^-$ ) となり海洋に吸収され、海洋の生物生産活動におけるNの主要供

給源として生物活性も支配していると考えられる。そのため、海洋大気中での総反応性窒素酸化物 ( $\text{NO}_y$ ) および、海洋に沈着すると考えられる  $\text{HNO}_3$  や  $\text{NO}_3^-$  の動態解明は重要である。

(2) アジアにおける経済発展や窒素酸化物の放出量については背景の(1)で述べたとおりであるが、窒素化合物には  $\text{NO}_x$  のほかアンモニア ( $\text{NH}_3$ )、アンモニウム ( $\text{NH}_4^+$ ) などの還元状態の窒素化合物が存在する。中国における  $\text{NH}_3$  の放出量は1990年に比べ2000年では

17.7%増加しており、その 88%が農業に関係している。全球的には大気から海洋に沈着する人為起源の全窒素酸化物 ( $\text{NO}_y$ ) は  $17 \text{ Tgy}^{-1}$  であるのに対し、人為起源の還元性の窒素化合物 ( $\text{NH}_3, \text{NH}_4^+$ ) は  $21 \text{ Tgy}^{-1}$  沈着しており、大気中に存在する  $\text{NH}_3, \text{NH}_4^+$  の動態の解明は重要である。

## 2. 研究の目的

(1) まず、本研究では高い時間分解能で連続観測が可能な  $\text{NO}_y, \text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  測定装置を開発する。開発した装置を西日本の離島等、大陸からの影響を受けやすく、かつ、清浄地域である場所に持ち込み、これらの連続観測を行なうことにより、経済発展が著しい東アジア地域からもたらされる含窒素化合物の海洋大気への影響を定量的に理解する。また、これらの濃度を明らかにすることにより、大気から海洋への N の流入量を定量的に評価し、海洋の生物生産性に対する影響についても検討する。

(2) 本研究では、(1)に加えて時間分解能の高い装置を用いて、 $\text{NH}_3, \text{NH}_4^+$  を同時に測定し、 $\text{NH}_3$  の濃度変動パターンやその変動要因、および、 $\text{NH}_3, \text{NH}_4^+$  の気相とエアロゾル相への分配比を明らかにし、 $\text{NH}_3, \text{NH}_4^+$  の輸送の影響を明らかにする。

## 3. 研究の方法

(1) まず、スクラバー差量法/化学発光法を用いた  $\text{NO}_y, \text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  連続測定装置を開発した。大気を直接モリブデン触媒に導入し、大気中の  $\text{NO}_y$  を  $\text{NO}$  に還元する。その後、市販の化学発光式窒素酸化物測定装置により  $\text{NO}$  濃度を定量することで  $\text{NO}_y$  濃度を得る。それとは別に、モリブデン触媒の前段に  $\text{HNO}_3$  スクラバー、フィルター+ $\text{HNO}_3$  スクラバーをつけたラインを設け、それぞれ  $\text{NO}_y\text{-HNO}_3, \text{NO}_y\text{-HNO}_3\text{-NO}_3^-$  濃度を測定、それらの濃度の差分を利用することにより、 $\text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  濃度を得る。 $\text{HNO}_3$  スクラバーには  $\text{NaCl}$  を塗布した管状デニューダーを用いた。開発した装置を用いて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(以下辺戸ステーション)において連続観測を行なった。また、同時にナイトレートモニター(RP8400)を用いた  $\text{NO}_3^-$  の連続観測も行なった。

(2) 観測は辺戸ステーションで行った。 $\text{NH}_3$  の測定はオムニセンス社の光音響式アンモニア測定器(TGA310)を用いた。この装置は外気を取り入れたセル内に  $\text{CO}_2$  レーザーから射出された波長  $10.78 \mu\text{m}$  の光を照射して  $\text{NH}_3$  を励起し、緩和するとき圧力振動として伝わる音波信号をマイクロフォンで検出

して  $\text{NH}_3$  濃度を測定する。大気測定の場合にはクエン酸を含むデニューダーを通して  $\text{NH}_3$  を除去した大気と、 $\text{NH}_3$  を含む大気との信号強度の差から  $\text{NH}_3$  濃度を求めた。大気は高さ約  $2 \text{ m}$  の位置からテフロンチューブを用いて  $0.15 \text{ m}^3\text{h}^{-1} (2.5 \text{ L min}^{-1})$  で吸引した。測定器の時間分解能は 30 秒であるが、大気測定ではデニューダーを用いているため、濃度が安定する時間も含め、20 分に一回  $\text{NH}_3$  濃度を記録した。 $\text{NH}_4^+$  と  $\text{SO}_4^{2-}$  の測定にはエアロダイン社のエアロゾル質量分析計 (Q-AMS) を用いた。

## 4. 研究成果

(1)  $\text{NO}_y, \text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  連続測定装置についてはまず、モリブデン還元触媒による硝酸ナトリウムの還元効率を調べたところ、ほぼ定量的に  $\text{NO}$  まで還元されたことを初めて見出した。また、管状デニューダーの粒子の透過効率を調べたところ、粗大粒子では 90% 以上であったが、微小粒子では 75% 程度であった。本装置では微小粒子が多い環境の場合、 $\text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  測定の確度が悪くなるが、観測を行なった沖縄辺戸岬では、 $\text{NO}_3^-$  はほとんど粗大粒子に存在するため、確度について大きな問題とはならないと結論した。

次に、辺戸ステーションにおける  $\text{NO}_y, \text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  の観測結果について述べる。 $\text{NO}_y, \text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  濃度とも春季に高く、濃度変動は主として気塊の履歴に依存し、中国起源の場合に高かった。また、気塊が中国沿岸から辺戸に到達するまでを輸送時間と定義し、輸送時間と  $\text{NO}_y$  中の  $\text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  の割合について調べた。その結果を Fig. 1 に示す。輸送時間が長くなるにつれて、 $\text{PM}_{10}\text{NO}_3^-$  (直径  $1 \mu\text{m}$  以上の  $\text{NO}_3^-$ ) の割合が大幅に上昇し、輸送時間 48 時間以上では  $\text{NO}_y$  の約半分程度までになった。 $\text{HNO}_3$  の濃度も同様に輸送時間に対してその割合が上昇する傾向が見られた。これは輸送される過程で窒素酸化物の酸化反応が進行し、最終生成物である  $\text{HNO}_3$  や  $\text{NO}_3^-$  の割合が増加したことを示している。

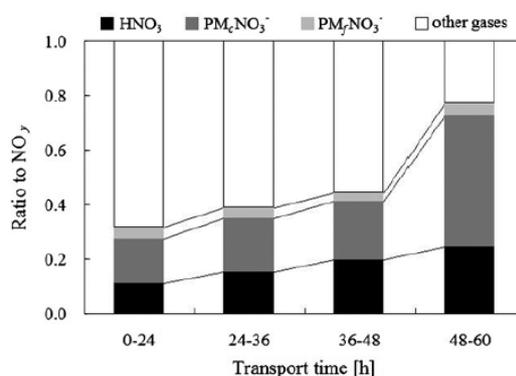


Fig. 1 輸送時間に対する中国由来の気塊における  $\text{NO}_y$  中の  $\text{HNO}_3, \text{NO}_3^-$  の割合。 $\text{PM}_{10}\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PM}_f\text{NO}_3^-$  はそれぞれ直径  $1 \mu\text{m}$  以上、以下の  $\text{NO}_3^-$  を示す。

また、 $\text{PM}_{10}\text{NO}_3^-$  (直径  $1 \mu\text{m}$  以下の  $\text{NO}_3^-$ ) の割合は輸送時間にかかわらず 1 割未満であった。一方、中国青島での観測結果では、 $\text{NO}_3^-$  については主に  $\text{PM}_{10}\text{NO}_3^-$  の形として存在していた。これは、輸送過程で  $\text{NO}_3^-$  が微小粒子から粗大粒子にシフトしていることを示しており、これらのことから、窒素酸化物の光化学反応および微小粒子から気相に放出された硝酸( $\text{HNO}_3$ ) が海塩や土壌粒子に吸着したため粗大粒子中の硝酸塩の割合が増える結果となったと考えられる。

最後に、辺戸岬観測ステーションにおける窒素酸化物の観測結果と化学輸送モデル(CMAQ ver.4.4 および ver. 4.7.1)による計算結果との比較解析について述べる。CMAQ ver. 4.4 では領域気象モデルに RAMS, 気相反応系モデルに SAPRC-99, 雲・液相モデルには RADM, エアロゾルモデルに AERO3 を選択している。一方、CMAQ ver.4.7 では領域気象モデルに WRF, エアロゾルモデルには AERO5 を選択している。CMAQ の主な差異としては CMAQ ver.4.4 では粗大粒子との反応について考慮されていないが、CMAQ ver.4.7 では海塩粒子などを含めた粗大粒子の関連する反応が考慮されている。

Fig.2 に 2008 年 3 月 15 日から 4 月 30 日までの CMAQ ver.4.4, ver.4.7 および実測による  $\text{NO}_y$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3^-$  の濃度変動を示す。観測期間中における  $\text{NO}_y$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3^-$  の実測値および計算値の平均を Table 1 に示す。CMAQ ver.4.4 では、 $\text{HNO}_3$  を過大評価し、 $\text{NO}_3^-$  を過小評価していることが明らかになった。一方、CMAQ ver.4.7 では実測結果とおおむね一致した。

また濃度変動については、 $\text{NO}_y$  に関して CMAQ ver.4.4, ver.4.7 と実測値の変動傾向、濃度が共におおむね一致し、CMAQ によりよく再現されていることが明らかとなった。しかし、CMAQ ver. 4.4 モデルでは  $\text{HNO}_3$  の変動傾向を再現しているものの、濃度を比較すると過大評価している。 $\text{NO}_3^-$  については変動傾向が大きく異なり、3/23, 4/3, 4/7 に現れるピーク以外ではゼロ近傍と算出されている。 $\text{NO}_y$  の濃度変動傾向が一致しているため、 $\text{NO}_y$  内部での分配が実際と異なることが考えられる。Fig. 1 に示すように微小粒子  $\text{PM}_{10}\text{NO}_3^-$  Table 1 CMAQ および実測による  $\text{NO}_y$ ,  $\text{HNO}_3$  および  $\text{NO}_3^-$  の平均濃度。

	実測	CMAQ ver. 4.4	CMAQ ver. 4.7
$\text{NO}_y$ /ppbv	1.74 ±0.86	2.18 ±1.54	2.03 ±1.38
$\text{HNO}_3$ /ppbv	0.57 ±0.39	1.44 ±0.75	0.54 ±0.75
$\text{NO}_3^-$ / $\mu\text{g m}^{-3}$	1.47 ±0.60	0.44 ±1.50	1.97 ±1.61

への分配は小さく、 $\text{NO}_3^-$  の多くが粗大粒子に分配している。そのため、 $\text{HNO}_3$  と海塩粒子の反応が  $\text{NO}_3^-$  の主要な生成過程と考えられる。CMAQ ver. 4.4 では粗大粒子の反応過程が考慮されていないため、 $\text{HNO}_3$  を過大評価し、 $\text{NO}_3^-$  を過小評価する結果となったと考えられる。一方で粗大粒子との反応を考慮した CMAQ ver.4.7 では  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3^-$  の濃度、変動傾向共におおむね一致し、CMAQ により観測値が良く再現されていることが確認された。

CMAQ ver. 4.7 による  $\text{HNO}_3$  と観測値の差異の要因について解析した結果を以下に述べる。 $\text{HNO}_3$  について CMAQ による計算値と観測値との差を  $\Delta\text{HNO}_3 (= \text{HNO}_3^{\text{CMAQ}} - \text{HNO}_3^{\text{Obs}})$  とし、 $\Delta\text{HNO}_3$  と CMAQ により得られた  $\text{Na}^+$  との相関関係を Fig. 3 に示す。CMAQ により得られた  $\text{Na}^+$  濃度が低い場合、CMAQ による  $\text{HNO}_3$  濃度が過大評価される傾向にある。こ

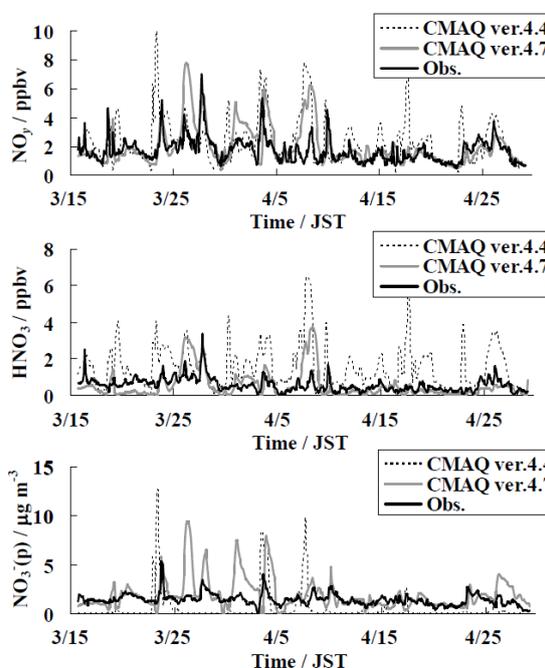


Fig.2  $\text{NO}_y$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3^-$  の CMAQ(dotted & gray)と実測(solid)の濃度変動比較。

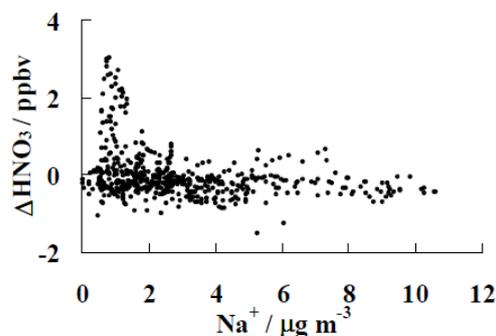


Fig. 3 CMAQ による  $\text{HNO}_3$  と実測  $\text{HNO}_3$  の差( $\Delta\text{HNO}_3$ )と CMAQ による  $\text{Na}^+$  との相関関係。

の傾向の理由として、CMAQ 中で海塩粒子濃度が低く見積もられたことにより海塩粒子との反応による  $\text{HNO}_3$  の消失過程が過小評価された可能性がある。CMAQ ver. 4.4、4.7 と実測値の比較および、 $\text{HNO}_3$  の CMAQ と実測の差と  $\text{Na}^+$  濃度の関係性から、辺戸ステーションにおいては海塩粒子との反応が  $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NO}_3^-$  の濃度変動の主な要因となり、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NO}_3^-$  の分配に対して支配的であるといえる。

この結果から、辺戸ステーションにおける  $\text{HNO}_3$  および  $\text{NO}_3^-$  分配比は海塩粒子との反応が支配的であると結論した。

(2) Fig.4 に観測期間中の  $\text{NH}_3$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  濃度を示す。 $\text{NH}_3$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の平均値はそれぞれ 0.56 ppbv, 2.2  $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ , 6.4  $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$  であった。 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の最大値はそれぞれ 8.5  $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$ 、26  $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$  であった。 $\text{NH}_3$  の最大値は 2.7 ppbv であり、ピーク位置は  $\text{NH}_4^+$  や  $\text{SO}_4^{2-}$  とは異なっていた。

辺戸ステーションにおける  $\text{NH}_3$ 、 $\text{NH}_4^+$  の濃度レベルの推定を行った。長田グループの測定や EANET データも参考にすると、春季の  $\text{NH}_3$ 、 $\text{NH}_4^+$  の平均的な濃度レベルはそれぞれ 1 ppbv、2  $\mu\text{g}\text{m}^{-3}$  程度と考えられる。

$\text{NH}_3$  と  $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度変動パターンを比較し濃度変動の要因を検討した。 $\text{NH}_3$  の濃度変動パターンは  $\text{NH}_4^+$  や  $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度変動パターンと異なっていた。これまでの辺戸ステーションでの観測から、高濃度の  $\text{SO}_4^{2-}$  が観測される要因は大陸からの輸送であると推定されている。 $\text{NH}_3$  と  $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度変動パターンが異なっていることは、 $\text{NH}_3$  の濃度変動の主要な原因が大陸からの越境輸送とは考えにくいことを示している。

辺戸ステーションにおいて  $\text{NH}_3$ 、 $\text{NH}_4^+$  が気相とエアロゾル相にどの程度分配されているかを検討した。Fig.5 a) には  $\text{NH}_4^+/\text{NH}_x$  ( $=\text{NH}_3+\text{NH}_4^+$ )、 $\text{NH}_4^+/\text{SO}_4^{2-}$  (モル比)、 $\text{SO}_4^{2-}/\text{SO}_y$  ( $=\text{SO}_2+\text{SO}_4^{2-}$ ) の各値と、後方流跡線解析の結果に基づき得られた流跡線が韓国や中国を含む大陸方面を通過している期間を灰色の

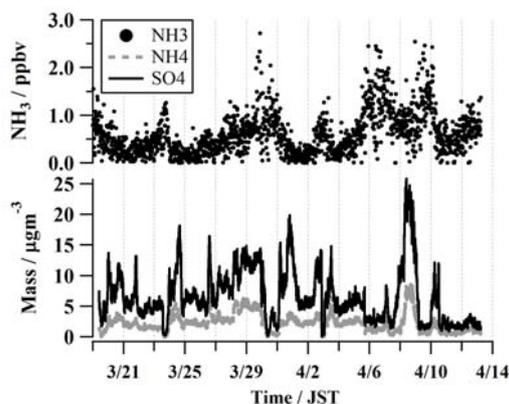


Fig.4  $\text{NH}_3$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  濃度変動。

ハッチで示した。 $\text{NH}_4^+/\text{NH}_x$  が、おおむね 0.8 以上であることから、ステーション周辺では  $\text{NH}_4^+$  としてエアロゾル中に存在する割合が高いことを示している。また、大陸を通過した場合にこの比の値が大きいことが多いので、 $\text{NH}_4^+$  も主に越境輸送によってもたらされていると考えられる。

長距離輸送における微粒子生成過程を検討するため、 $\text{NH}_4^+/\text{NH}_x$  と  $\text{NH}_4^+$  の粒子化の相手である  $\text{SO}_4^{2-}$  の変動について解析した。Fig.5 b) には  $\text{SO}_4^{2-}/\text{SO}_y$  に対する  $\text{NH}_4^+/\text{SO}_4^{2-}$  をプロットした。Fig.5b) のプロットでは、Fig.5a) でハッチをかけた大陸方面から空気塊が輸送されている場合のデータのみを用いた。 $\text{SO}_4^{2-}/\text{SO}_y$  が 1 に近づくと ( $\text{SO}_y$  の酸化が進むにつれ)、 $\text{NH}_4^+/\text{SO}_4^{2-}$  の値が低いデータの割合が増えている ( $\text{SO}_4^{2-}$  の割合が増加している)。これは、越境輸送される空気塊中での  $\text{SO}_2$  と  $\text{NH}_3$  の存在比を考えたとき、 $\text{SO}_2$  が相対的に過剰であることを示唆している。

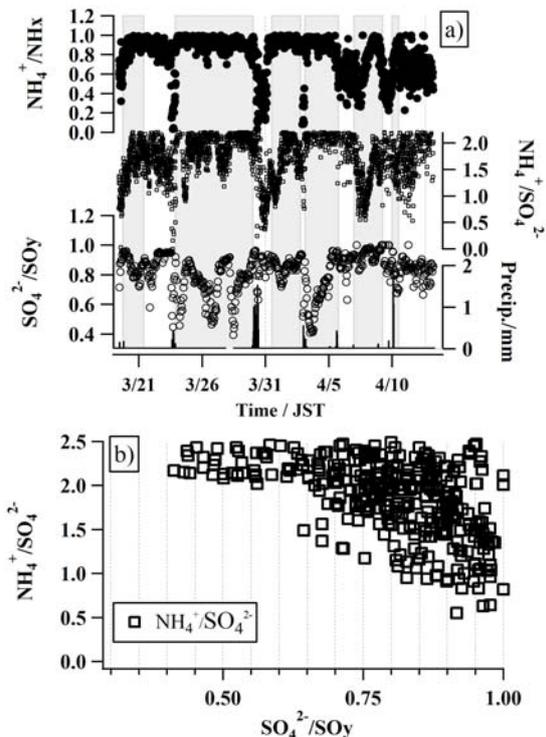


Fig.5 a)  $\text{NH}_4^+/\text{NH}_x$  ( $=\text{NH}_3+\text{NH}_4^+$ )、 $\text{NH}_4^+/\text{SO}_4^{2-}$  (モル比)、 $\text{SO}_4^{2-}/\text{SO}_y$  ( $=\text{SO}_2+\text{SO}_4^{2-}$ ) と、流跡線が大陸を通過した期間 (灰色のハッチ部分)。b)  $\text{SO}_4^{2-}/\text{SO}_y$  に対する  $\text{NH}_4^+/\text{SO}_4^{2-}$  のプロット。

## 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 13 件)

1. 高見昭憲, 長田和雄, 定永靖宗, 坂東博 (2011) 沖縄辺戸岬における大気中のア

- ンモニア/アンモニウム濃度の変動と分配, エアロゾル研究, 26, 42-46, 査読有.
2. 増井嘉彦, 弓場彬江, 定永靖宗, 高見昭憲, 竹中規訓, 坂東博 (2011) 海洋大気でのデニューダー法によるガス状硝酸の測定の問題点, 大気環境学会誌, 46, 37-42, 査読有.
  3. Osada K., Ueda S., Egashira T., Takami A., Kaneyasu N. (2011) Measurements of gaseous NH<sub>3</sub> and particulate NH<sub>4</sub><sup>+</sup> in the atmosphere by fluorescent detection after continuous air-water droplet sampling, *Aerosol Air Qual. Res.*, 11, 170-178, 査読有.
  4. Sadanaga Y., Fukumori, Y., Kobashi, T., Nagata, M., Takenaka, N., Bandow H. (2010) Development of a selective light-emitting diode photolytic NO<sub>2</sub> converter for continuously measuring NO<sub>2</sub> in the atmosphere, *Anal. Chem.*, 82, 9234-9239, 査読有.
  5. 井関将太, 定永靖宗, 松木篤, 岩坂泰信, 佐藤啓市, 竹中規訓, 坂東博 (2010) 能登半島珠洲におけるオゾンと一酸化炭素の濃度変動要因の解析, 大気環境学会誌, 45, 256-263, 査読有.
  6. Yuba, A., Sadanaga Y., Takami, A., Hatakeyama, S., Takenaka, N., Bandow H. (2010) Measurement system for particulate nitrate based on the scrubber difference NO-O<sub>3</sub> chemiluminescence method in remote areas, *Anal. Chem.*, 82, 8916-8921, 査読有.
  7. Mochida, M., Nishita-Hara, C., Kitamori, Y., Aggarwal, S. G., Kawamura, K., Miura, K., Takami A. (2010) Size-segregated measurements of cloud condensation nucleus activity and hygroscopic growth for aerosols at Cape Hedo, Japan in spring 2008. *J. Geophys. Res.*, 115, D21207, doi:10.1029/2009JD013216, 査読有.
  8. Jimenez, J. L., Takami A. (64名中47番目) (2009) Evolution of Organic Aerosols in the Atmosphere, *Science*, 326, 1525, doi: 10.1126/science.1180353, 査読有.
  9. Sadanaga Y., Imabayashi, H., Suzue, T., Kimoto, H., Kimoto, T., Takenaka, N., Bandow H. (2008) Quantitative reduction of particulate nitrate to nitric oxide by molybdenum catalyst: Implications for NO<sub>y</sub> measurements in the marine boundary layer, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L21810, doi:10.1029/2008GL035557, 査読有.
  10. Sadanaga Y., Yuba, A., Kawakami, J., Takenaka, N., Yamamoto, M., Bandow H. (2008) A gaseous nitric acid analyzer for remote atmosphere based on the scrubber difference / NO-ozone chemiluminescence method, *Anal. Sci.*, 24, 967-971, 査読有.
  11. Takiguchi, Y., Takami A., Sadanaga Y., Lun, X., Shimizu, A., Matsui, I., Sugimoto, N., Wang, W., Bandow H., Hatakeyama, S. (2008) Transport and transformation of total reactive nitrogen over the East China Sea. *J. Geophys. Res.*, 113, D10306, doi:10.1029/2007JD009462, 査読有.
  12. Uno, I., Uematsu, M., Hara, Y., He, Y. J., Ohara, T., Mori, A., Kamaya, T., Murano, K., Sadanaga Y., Bandow H. (2007) Numerical study of the atmospheric input of anthropogenic total nitrate to the marginal seas in the Western North Pacific region, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L17817, doi:10.1029/2007GL030338, 査読有.
  13. Takami A., Miyoshi, T., Shimono, A., Kaneyasu, N., Kato S., Kajii, Y., Hatakeyama, S. (2007) Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation. *J. Geophys. Res.*, 112 D22S31 doi:10.1029/2006JD008120, 査読有.
- [学会発表] (計 20 件)
1. Bandow H. Analyses of the long-range transport of nitrogenous species through the atmosphere from the Asian continent using observational data at Cape Hedo, Okinawa, and CMAQ postanalyses, 2010 AGU Fall Meeting, 2010 年 12 月 15 日, San Francisco, USA .
  2. Yuba, A., The diurnal variation of total odd nitrogen oxides species, gaseous nitric acid and particulate nitrate in the southern remote island, Japan, facing the Asian Continent, 2010 AGU Fall Meeting, 2010 年 12 月 15 日, San Francisco, USA .
  3. 坂東博, 沖縄辺戸岬における観測および CMAQ モデル計算結果に基づくアジア大陸からの越境汚染物質長距離輸送の解析, 第 16 回大気化学討論会, 2010 年 11 月 18 日, 八王子.
  4. 高見昭憲, 沖縄辺戸岬で測定した大気中のアンモニア濃度の変動, 第 16 回大気化学討論会, 2010 年 11 月 17 日, 八王子.
  5. Takami A., Increase of Sulphate in Fine Aerosols in Okinawa, Japan, International Aerosol Conference 2010, 2010 年 9 月 1 日, Helsinki, Finland.
  6. Takami A., Measurement of elemental carbon at CHAAMS in spring 2009. Japan Geoscience Union Meeting 2010, JpGU International Symposium 2010, 2010 年 5 月 27 日, Chiba, Japan.
  7. Takami A., Long-term measurement of

- aerosol at Cape-Hedo, Japan, AAAR 28th Annual Conference, 2009年10月28日, Minneapolis, USA.
8. 弓場彬江, 清浄地域における窒素酸化物の日内変動とその要因, 第15回大気化学討論会, 2009年10月20日, つくば.
  9. 定永靖宗, 沖縄辺戸岬における越境汚染物質濃度の観測とCMAQ化学物質輸送モデルとの比較解析, 第50回大気環境学会年会, 2009年9月16日, 横浜.
  10. Takami, A., Chemical Composition of Aerosol in East Asia and Its Radiative Impact, ICNAA, 2009年8月12日, Prague, Czech.
  11. 高見昭憲, 沖縄でのエアロゾル長期観測と濃度変動, 第26回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2009年8月19日, 岡山.
  12. Sadanaga, Y., Development of an in situ measurement system of particulate nitrate using the scrubber difference and the NO-ozone chemiluminescence method, AGU Fall Meeting 2008, 2008年12月19日, San Francisco, USA.
  13. Yuba, A., Analyses of the concentration variation of total odd nitrogen species, nitric acid and particulate nitrate at Okinawa Island, Japan during the long-range transport from the Asian Continent, AGU Fall Meeting 2008, 2008年12月16日, San Francisco, USA.
  14. Takami, A., Long-term measurement of aerosol at Cape Hedo, Japan using Q-AMS, AAAR's 27th Annual Conference, 2008年10月22日, Orlando, USA.
  15. 定永靖宗, 粒子状硝酸塩のモリブデン還元触媒によるNO<sub>x</sub>への変換効率, 第49回大気環境学会年会, 2008年9月18日, 金沢.
  16. Sadanaga, Y., Observations of NO<sub>y</sub> and gaseous nitric acid in remote island of Okinawa: Long-range transport of nitrogen species from Asian continent, IGAC 10th International Conference, 2008年9月9日, Annecy, France.
  17. Takami, A., Long-term monitoring of ambient aerosol at Okinawa, Japan, The 25th Symposium on Aerosol Science & Technology in conjunction with International Aerosol Symposium 2008, 2008年8月22日, Kanazawa, Japan.
  18. Takami, A., Three years measurement of sulfate at Okinawa, Japan in spring period, 26th American Association for Aerosol Research, 2007年9月27日, Reno, USA.
  19. 高見昭憲, 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年8月11日, 和光.

20. 高見昭憲, 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, 平成19年5月21日, 千葉.

〔図書〕(計1件)

高見昭憲 (2010) 大気汚染対策, 東アジアにおける越境大気汚染と観測. 米山春子編集, 中国・日本科学最前線—研究の現場から—2010年版, 独立行政法人 科学技術振興機構 中国総合研究センター, 225-228.

〔産業財産権〕

○出願状況 (計0件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

○取得状況 (計0件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

「独立行政法人 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」ホームページ

<http://www.nies.go.jp/asia/hedomisaki/home-j.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

坂東 博 (BANDOW HIROSHI)  
大阪府立大学・工学研究科・教授  
研究者番号: 80124353

### (2) 研究分担者

高見 昭憲 (TAKAMI AKINORI)  
(独) 国立環境研究所・アジア自然共生研究グループ・室長  
研究者番号: 00262030  
定永 靖宗 (SADANAGA YASUHIRO)  
大阪府立大学・工学研究科・助教  
研究者番号: 70391109

### (3) 連携研究者

加藤 俊吾 (KATO SHUNGO)  
首都大学東京・都市環境科学研究科・准教授  
研究者番号: 20381452