

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 3 日現在

機関番号：12605

研究種目：新学術領域研究

研究期間：2008～2012

課題番号：20120008

研究課題名（和文） 東アジアから輸送されるエアロゾル化学成分の航空機観測

研究課題名（英文） Aerial observation of chemical composition of aerosols transported from East Asia

研究代表者

畠山 史郎（HATAKEYAMA SHIRO）

東京農工大学・大学院農学研究院・教授

研究者番号：30132856

研究成果の概要（和文）：

平成 21 年 10 月、平成 22 年 12 月および平成 24 年 3 月の都合 3 回の航空機観測によって、本計画研究で予定した秋、冬、春の 3 季節での東シナ海上空の航空機観測を予定通り遂行することができ、化学成分の分析結果やモデル解析、流跡線解析などを加え、越境汚染の状況を解明し、さらに 3 年間の観測結果を総合して東シナ海上空における越境大気汚染の状況を解析した。これらの成果に対して日本エアロゾル学会より平成 24 年度エアロゾル計測賞が授与された。また、本研究による観測の成果も含め、20 年間の航空機観測の成果に対して環境賞優良賞（日立環境財団主催、環境省後援）が授与された。

研究成果の概要（英文）：

Three times of aerial observation experiments were intended to be carried out in autumn, winter, and spring during the research period. We carried out aerial observation experiments in October 2009, December 2010, and March 2012 as planned. Based on the results of chemical analyses of aerosols, model analyses by use of a computer simulation model, as well as back trajectory analyses, present status of the air pollution over the East China Sea was evaluated. For these results 2012 Award of Aerosol Measurements from Japan Association of Aerosol Science and Technology was awarded. Moreover, 39th Environmental Award (sponsored by the Hitachi Environment Foundation and supported by Ministry of Environment of Japan) was awarded to the results of our 20 years aerial observations including the results of this research.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	23,200,000	6,960,000	30,160,000
2009 年度	20,400,000	6,120,000	26,520,000
2010 年度	20,100,000	6,030,000	26,130,000
2011 年度	20,500,000	6,150,000	26,650,000
2012 年度	6,500,000	1,950,000	8,450,000
総計	90,700,000	27,210,000	117,910,000

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：航空機観測、エアロゾル、硫酸塩、硝酸塩、金属成分

## 1. 研究開始当初の背景

東アジアは著しい経済発展とともに大気汚染物質の放出が顕著に増加している。ガス状の大気汚染物質(オゾン、NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、VOC な

ど)、だけでなく、硫酸塩、硝酸塩、黄砂などの土壌由来粒子、炭素質粒子など様々なタイプの粒子状汚染物質もまた直接的に大量放出されたり、上記した前駆物質から輸送途

上で生成したりして、風下地域である我が国や、さらには太平洋を越えて北米にまで輸送され、様々な影響を及ぼしているものと考えられる。深刻化する東アジアからの越境大気汚染の中でも、エアロゾルが植物や人間の健康に与える影響はまだ十分に解明されていない。まず、長距離輸送されるエアロゾルとその前駆体について、航空機や地上での観測から質と量を把握し、それらの生成・変質・沈着の各プロセスを解明し、これらをベースとして、越境大気汚染による健康への影響や植物に対する明らかにすることが必要である。

## 2. 研究の目的

本研究では、全体課題の主目的である東アジアに由来するエアロゾルの健康や生態系への影響の解明のため、東アジアに由来して、我が国に輸送されるエアロゾルの化学成分を網羅的に調べ、我が国にどのようなエアロゾルがどのような気象条件のときにどのくらい飛来するのかを、アジア大陸と我が国の間の海洋（東シナ海、日本海）上空で捉え、分析し基礎データとして、影響研究を行う研究項目 A03、A04 に提供しようとするものであり、日本に輸送されるエアロゾルの化学成分を徹底的に分析することを目的とする。

## 3. 研究の方法

本研究では、5 年間のプロジェクト期間内に、アジア大陸からの輸送の寄与が高い秋季、冬季、春季に東シナ海上空において、越境大気汚染の航空機観測を行うことを計画し、2009 年度秋季（10 月）、2010 年度冬季（12 月）、2011 年度春季（2012 年 3 月）の観測を行った。観測に使用した飛行機は 3 年間の観測いずれも、ビーチクラフト・キングエアー 200T 型（双発ターボプロップ機）（ダイヤモンドエアサービス株式会社）である。観測エリアはいずれの年も福江島と韓国済州島の南約 220km 地点（以後 A 地点と表記）の間に固定して観測を実施した。観測は高度 500m、1000m、2000m、3000m の 4 高度を各高度約 40 分の水平飛行、および福江島上空または A 地点の上空を巡回しながら上記 4 高度（各高度 15-20 分飛行）を飛行する環状飛行の 2 種類を行った。秋季の観測は 2010 年 10 月 14 日、15 日、17 日、冬季の観測は 2010 年 12 月 11 日、12 日、14 日、春季の観測は 2012 年 3 月 10 日、11 日、13 日、14 日にそれぞれ行われた。主な搭載測器はオゾン計、SO<sub>2</sub> 計、ハイボリューム・テープ・サンプラー、パーティクル・マスモニタ、パーティクル・カウンタ、COSMOS（黒色炭素測定器）、バイオエアロゾルサンプラー、カスケード・インパクター、NO<sub>y</sub> 計、CO 計である。

## 4. 研究成果

3 年間の観測におけるイオンの濃度、組成を比較した。2009 年 10 月 17 日および 2010

年 12 月 11 日には大規模な黄砂を捉えた。このとき、Ca<sup>2+</sup>の濃度が非常に高い。また 2012 年 3 月 11 日には早朝に大規模な汚染大気が非常にシャープなピークを示して襲来し、SO<sub>2</sub> 濃度も 20ppb を越えるという状況であった。航空機観測はこの汚染のピークを過ぎてから行われたが、まだ高濃度の汚染物質が残っていたことが分かる。イオン濃度は季節による違いよりも黄砂（10 月 17 日、12 月 11 日）や大規模汚染時（3 月 11 日）に高くなり、季節の違いは必ずしも明確ではない。しかし春季には大規模汚染の襲来日でない日でも SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>や NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の濃度が高く、大陸からの人為起源汚染物質輸送の影響が明確に現れている。

金属元素については EF 値（Enrichment Factor）より人為起源と見られる元素（Pb, As, Cd, など）を冬（2010 年 12 月）と春（2012 年 3 月）で比較してみると（図 1a, b）、

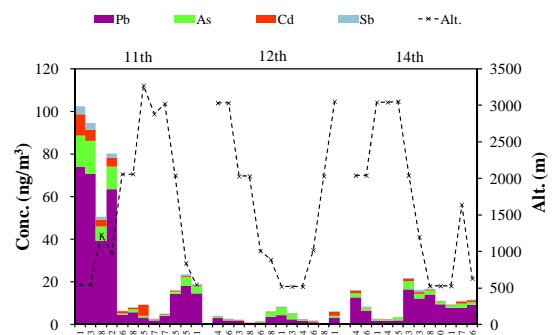


図 1a：冬観測における金属成分濃度

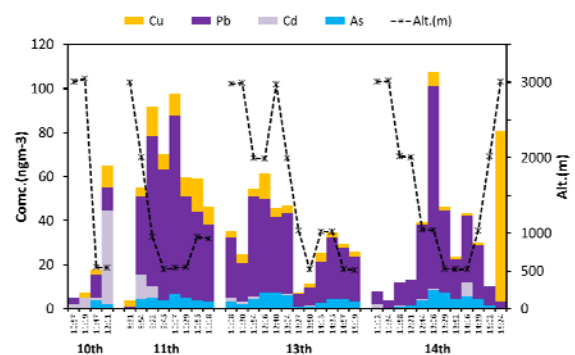


図 1b：春観測における金属成分濃度

黄砂イベントの時（12 月 11 日）を除くと明らかに春の方が冬より濃度が高い。これは秋（2009 年 10 月）でも同様で、黄砂イベントの日以外は人為起源金属成分の濃度は低かった。これらの結果は、春季に高濃度の人為起源物質の輸送が起こることが明らかである。一方、土壌起源元素は黄砂の飛来した 10 月 17 日に最高濃度が記録され、次いで 12 月 11 日の 4 サンプルであった。黄砂の規模としては 2009 年 10 月 17 日の方が 2010 年 12 月 11 日より大きかったことが伺える。濃度レベルとしては、黄砂時には全金属濃度が 30 mg

m<sup>-3</sup>のレベルに達するのに対し、黄砂以外の日では、春季の高濃度汚染時でも10 mgm<sup>-3</sup>のレベルであった。

O<sub>3</sub>濃度は中央値、最高値が3月>10月>12月となり、光化学活性の順序と良く一致していた。O<sub>3</sub>の鉛直分布は季節間ではっきりとした違いを見せた。(図2) 冬は境界層内の500m付近で濃度が40ppbくらいと低く、高高度になるほど上昇する傾向にあった。一方、秋は

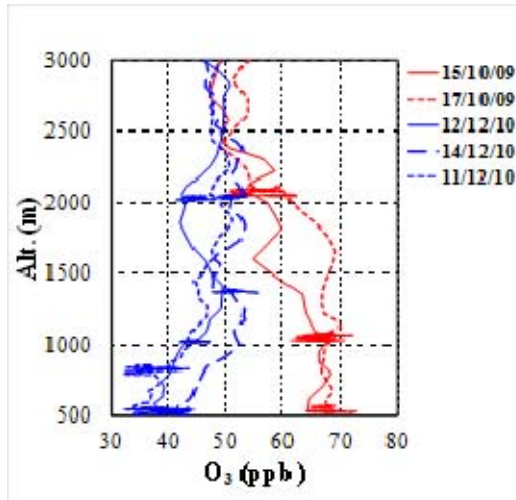


図2：秋（2009）および冬（2010）の各観測におけるオゾン濃度の高度プロファイル

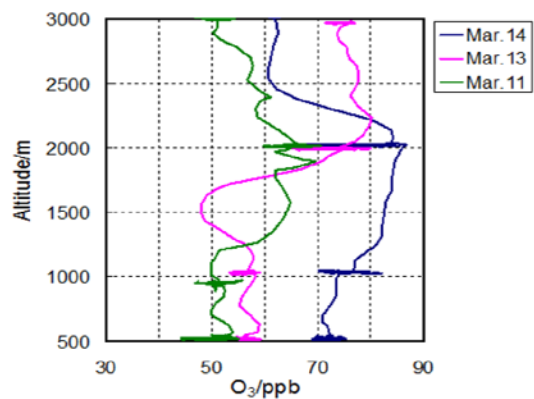


図3：春（2012）の観測におけるオゾン濃度の高度プロファイル

500m付近で濃度が68ppbくらいと高く、高高度になるほど減少していく傾向にあった。春（図3）は全体に濃度が高いが特に汚染気塊が輸送されるときに高かった。この原因もO<sub>3</sub>の濃度の季節間差異と同様、春、秋、冬の順に地表付近に到達する日射量が多く、低高度でオゾンの光化学生成が起こっているからだと推察される。2000mより上では秋と冬には季節間で差がなく両者とも50ppbくらいとなっていたが、春には濃度が高く、春季に高高度からオゾンの効果があることと良く一致していた。

鉛直飛行時のO<sub>3</sub>とNO<sub>y</sub>の相関をとると、10

月15日、17日の秋のデータで正の相関が見られた。このことから長距離輸送されてきたNO<sub>y</sub>を前駆体として比較的観測地域に近い境界層内でO<sub>3</sub>が生成されていることが分かる。一方で冬は負の相関が見られ、光化学反応の進行度が低いことにより一部NOが残留し、自由対流圏や成層圏など上空から降下してきたO<sub>3</sub>を分解していると予測される。春の観測では明瞭な相関が見られなかった。

東アジアからの長距離輸送の影響を受ける地域において、越境大気汚染物質を秋、冬、春3シーズンにわたって同じ領域で航空機により観測した研究は世界でも初めてのことであり、ここで得られた成果は、越境汚染の化学組成や、輸送プロセス、空間分布の立体的構造など多くの新規なデータを包含したものとすることができた。

平成25年1～3月には大陸でのPM<sub>2.5</sub>の高濃度汚染と我が国への影響が大きくクローズアップされ社会問題となったが、今後も観測と解析を続けることにより、さらなる影響の解明につなげることで、より効果的な対策につなげることが重要である。

## 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18件）

- ① Okuda, T., H. Takada, H. Kumata, F. Nakajima, S. Hatakeyama, M. Uchida, S. Tanaka, K. He, Y. Ma (2013). Inorganic chemical characterization of aerosols in four Asian mega-cities, *Aerosol Air Quality Res.*, 査読有, **13**, (2), 436-449. doi: 10.4209/aaqr.2012.09.0250
- ② 三好猛雄, 高見昭憲, 下野彰夫, 畠山史郎 (2013). エアロゾル質量分析計により沖縄県辺戸岬において観測されたエアロゾル化学組成の特徴、大気環境学会誌, 査読有, **48**(1), 1-11. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/taik/48/1/48\\_1/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/taik/48/1/48_1/_pdf)
- ③ 畠山史郎 (2012). 東アジア地域の大气汚染物質の航空機観測, 季刊環境研究, 査読無, 2012/167, 28-34. <http://www.hitachi-zaidan.org/kankyo/book/00167.html>
- ④ 畠山史郎 (2012). 長距離越境大気汚染の解明を目指した航空機および地上観測, 大気環境学会誌, 査読有, **47** (3), 111-118. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/taik/47/3/47\\_111/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/taik/47/3/47_111/_pdf)
- ⑤ Kajino, M., Inomata, Y., Sato, K., Ueda, H., Han, Z., An, J., Katata, G., Deushi,

- M., Maki, T., Oshima, N., Kurokawa, J., Ohara, T., Takami, A., Hatakeyama, S. (2012). Development of an aerosol chemical transport model RAQM2 and predictions of Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type, *Atmos. Chem. Phys.*, 査読有、**12**, 11833-11856, 2012, doi:10.5194/acp-12-11833-2012.
- ⑥ Hara, K., Zhang, D., Yamada, M., Matsusaki, H. and Arizono, K. (2011) A detection of airborne particles carrying viable bacteria in an urban atmosphere of Japan. *Asian J. Atmos. Environ.*, 査読有、**5**, 152-156. doi: <http://dx.doi.org/10.5572/ajae.2011.5.3.152>
- ⑦ 小川佳美、兼保直樹、佐藤圭、高見昭憲、林政彦、原圭一郎、畠山史郎(2012). 長距離輸送された多環芳香族炭化水素とn-アルカン—2009年春季および秋季の沖縄辺戸岬、福江島、福岡での測定から—。大気環境学会誌、査読有、**47**(1), 18-25. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/47/1/47\\_18/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/47/1/47_18/_pdf)
- ⑧ 吉野彩子、中山寛康、小川佳美、佐藤圭、高見昭憲、畠山史郎 (2011). 2010年沖縄県辺戸岬における東アジアに由来する多環芳香族炭化水素類の長距離輸送。エアロゾル研究、査読有、**26** (4), 307-314. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/26/4/26\\_4\\_307/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/26/4/26_4_307/_pdf)
- ⑨ Hatakeyama, S., S. Hanaoka, K. Ikeda, I. Watanabe, T. Arakaki, Y. Sadanaga, H. Bandow, S. Kato, Y. Kajii, K. Sato, A. Shimizu, and A. Takami (2011). Aerial Observation of Aerosols Transported from East Asia—Chemical Composition of Aerosols and Layered Structure of an Air Mass over the East China Sea. *Aerosol Air Qual. Res.*, 査読有、**11**, 497–507. doi: 10.4209/aaqr.2011.06.0076
- ⑩ 畠山史郎(2011). 東アジアから輸送されるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト解明を目指して。エアロゾル研究、査読有、**26**(2), 103-107. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/26/2/26\\_2\\_103/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/26/2/26_2_103/_pdf)
- ⑪ 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.*, 査読有、**82**, 8916-8921. DOI: 10.1021/ac101704w
- ⑫ Y. Tobo, D. Zhang, A. Matsuki, and Y. Iwasaka (2010). Asian dust particles converted into aqueous droplets under remote marine atmospheric conditions. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*. 査読無, <http://www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.1008235107>.
- ⑬ Formenti, P., L. Schuetz, Y. Balkanski, K. Desboeufs, M. Ebert, K. Kandler, A. Petzold, D. Scheuven, S. Weinbruch, and D. Zhang (2010). Recent progress in understanding physical and chemical properties of mineral dust. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 査読有、**10**, 31187-31251. doi:10.5194/acp-11-8231-2011
- ⑭ 半田大士、岡田孝一郎、中島仁美、新垣雄光 (2010). 沖縄辺戸岬で採取した大気エアロゾル中の過塩素酸イオン、エアロゾル研究、査読有、**25**(3)、269–273. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/25/3/25\\_3\\_269/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/25/3/25_3_269/_pdf)
- ⑮ Teraji, T. and Arakaki, T. (2010). Bimolecular rate constant between levoglucosan and hydroxyl radical: Effects of pH and temperature, *Chemistry Letters*, 査読有、**39**(8), 900–901. <http://dx.doi.org/10.1246/cl.2010.900>
- ⑯ 島田幸治郎、高見昭憲、加藤俊吾、梶井克純、畠山史郎 (2011). 東アジアから輸送される汚染大気中の炭素質エアロゾルの変動と発生源推定。大気環境学会誌、査読有、**46**, 1-9. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/46/1/46\\_1\\_1/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/46/1/46_1_1/_pdf)
- ⑰ 畠山史郎 (2009). 東アジアの大気環境。大気環境学会誌、査読有、**44**, 339-340. [https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/44/6/44\\_6\\_339/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/taiki/44/6/44_6_339/_pdf)
- [学会発表] (計 30 件)
- ① 畠山史郎、東アジアからの大気汚染物質・エアロゾルの長距離輸送—航空機観測を中心として、第 25 回酸性雨東京講演会 (2013/2/27) (小金井).
- ② Hatakeyama S., I. Watanabe, T. Arakaki, D. Zhang. Aerial Observation of Chemical Composition of Aerosols Transported from East Asia, International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health (2012/11/29) (Koganei, Tokyo).
- ③ Hatakeyama, S., K. Murano, H. Bandow, A. Takami. 20 Years' aerial observations of

atmospheric pollutants over the seas between Japan and Asian continent, The 12th International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Science Conference (2012/9/19) (Beijing).

- ④ 古賀美也子、嶋山史郎、嶋田幸治郎、田辺美保、定永靖宗、藤原大、坂東博、張代洲、瀬戸章文、加藤俊吾、梶井克純、清水厚、杉本伸夫、高見昭憲、新垣雄光. 2012年3月の東シナ海上空における長距離越境大気汚染の航空機観測－金属成分の分布と変化, 第53回大気環境学会年会 (2012/9/13) (横浜).
- ⑤ 田辺美保、嶋山史郎、嶋田幸治郎、古賀美也子、定永靖宗、藤原大、坂東博、張代洲、瀬戸章文、加藤俊吾、梶井克純、清水厚、杉本伸夫、高見昭憲、新垣雄光. 2012年3月の東シナ海上空における長距離越境大気汚染の航空機観測－イオン成分の分布と変化, 第53回大気環境学会年会 (2012/9/13) (横浜).
- ⑥ S. Hatakeyama, S. Hanaoka, K. Ikeda, L. Bail, S. Azechi, T. Arakaki, J. Urata, Y. Sadanaga, S. Kato, K. Hara, D. Zhang, A. Shimizu, N. Sugimoto and A. Takami. Chemical composition of aerosols transported from East Asia in 2009 and 2010 aerial observations over the East China Sea. The 8th International Conference on Acid Deposition (2011/6/16) (Beijing, China).
- ⑦ Hatakeyama, S., S. Hanaoka, K. Ikeda, S. Matsuo, I. Watanabe, S. Azechi, T. Arakaki, S. Kato, Y. Kajii, Y. Sadanaga, J. Urata, H. Bando, K. Hara, D. Zhang, A. Takami, A. Shimizu, N. Sugimoto. 2009 Aerial observation of aerosols transported from East Asia. Japan Geoscience Union Meeting 2010 (2010/5/27) (Chiba).
- ⑧ Hatakeyama, S.. Impacts of aerosols in East Asia on plants and human health – an introduction to a new project in Japan, The 1st International Symposium on Science and Impact of Atmospheric Brown Clouds (ABCs) (2009/11/23) (Incheon, Korea).

[図書] (計2件)

- ① 嶋山史郎 (2012). 「エアロゾルの組成」, 地球と宇宙の化学事典, pp. 188-189, 朝倉書店 (総ページ数 479).
- ② 嶋山史郎 (2010). 「酸性雨 工業化と広域越境大気汚染」総合地球環境学研究所編 「地球環境学事典」, 弘文堂, 476-477 (総ページ数 651).

[その他]

- ・ホームページ等

<http://www.tuat.ac.jp/~aerosol/>  
航空機観測データ報告 HP :  
<http://www.tuat.ac.jp/~aerosol/obs-data.html>

・アウトリーチ活動：学会誌の特集号の発刊  
日本エアロゾル学会機関誌「エアロゾル研究」26巻2号、5本の総説のうちの1。嶋山史郎 (2011). 東アジアから輸送されるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト解明を目指して. エアロゾル研究, 査読有、26(2), 103-107.

・報道関連情：

毎日新聞 2013年2月5日全国版朝刊, 中国大気汚染「風下日本PM2.5に注意」.

日刊ゲンダイ 2013年2月9日, 「殺人スモッグがやってくる」.

日刊ゲンダイ 2013年3月4日, 「黄砂シーズン突入」.

週刊女性 2013年3月5日号「脳梗塞引き起こす黄砂が来る」, p. 32-33.

テレビ朝日「報道ステーション」2013年2月1日 23:00～

TBS ラジオ「荒川強啓デイキャッチ」2013年2月5日 15:30～15:40

TBS ラジオ「森本毅郎スタンバイ」2013年2月7日 7:30～頃

テレビ朝日「モーニングバード」2013年2月7日 8:00～8:30頃

TBS テレビ「朝ズバッ！」2013年2月8日 7:45～7:55頃

日本テレビ「スッキリ」2013年2月8日 8:00～8:20頃

TBS テレビ「Nスタ」2013年2月11日 17:00～18:00頃

読売テレビ (日本テレビ) 「ミヤネヤ」2013年2月11日 15:15～15:25頃

BS朝日「ごごいちニュースキャッチ」2013年2月13日 13:00～13:30頃

TBS テレビ「報道特集」2013年2月16日 17:30～18:30頃

TBS テレビ「ひるおび」2013年2月26日 12:20～12:50頃

テレビ朝日「ワイドスクランブル」2013年3月6日 12:00～12:30頃

日本テレビ「スッキリ」2013年3月8日 8:00～10:20頃

フジテレビ「とくダネ！」2013年3月8日 8:00～9:55頃

週刊文春 2013年3月21日号「PM2.5+黄砂 首都圏直撃パニック」, p. 22-25.

週刊新潮 2013年3月21日号「日本上空を覆ったPM2.5の雲海」, p. 38-43.

Pumpkin (潮出版) 「大気汚染とPM2.5」平成25年4月号, p. 108-111.

日経サイエンス「中国からのPM2.5」平成25年5月号, p. 31-34.

Sapio (小学館) 「汚染中国本当の怖さ (大

気汚染)」平成 25 年 5 月号, p. 26-27.  
TBS テレビ「N スタ」2013 年 3 月 20 日 17:00  
～18:00 頃  
日本テレビ「スッキリ」2013 年 3 月 21 日  
8:00～9:00 頃  
テレビ愛知「トコトン 1 スタ」2013 年 3 月  
26 日 12:00～12:45 頃  
テレビ東京「アンサー」2013 年 3 月 28 日  
16:52～17:20 頃  
産経新聞 2013 年 4 月 10 日全国版朝刊, 黄  
砂きょう列島覆う恐れ「PM2.5 が付着『外  
出に注意』」.  
NHK 福岡「きんすた」(NHK 総合・九州沖縄  
地方向け) 2013 年 4 月 19 日 20:00～頃

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

畠山 史郎 (HATAKEYAMA SHIRO)  
東京農工大学・大学院農学研究院・教授  
研究者番号: 30132856

### (2) 研究分担者

渡邊 泉 (WATANABE IZUMI)  
東京農工大学・大学院農学研究院・准教授  
研究者番号: 30302912  
新垣 雄光 (ARAKAKI TAKEMITSU)  
琉球大学・理学部・教授  
研究者番号: 80343357

### (3) 連携研究者

張 代洲 (ZHANG DAIZHOU)  
熊本県立大学・環境共生学部・教授  
研究者番号: 90322726