

2.6.2 エロゾルの動向

エロゾルとは大気中に浮遊するちりなどの微粒子のことで、固体または液体からなり、半径 1nm (nm は 10^{-9}m) 程度から $10\ \mu\text{m}$ (μm は 10^{-6}m) 程度の大きさである。半径 $1\ \mu\text{m}$ より小さい粒子の多くは気体から生成されると考えられ、硫酸(塩)、硝酸(塩)、有機物からなるものがある。化石燃料やバイオマス燃焼などの人間活動から放出されるものもある。また、半径 $1\ \mu\text{m}$ より大きい粒子は海塩粒子、土壌粒子(黄砂を含む)など、風によって巻き上げられるものが多い。

エロゾルは、太陽放射を散乱・吸収して地上に到達する日射量を減少させ気温を低下させる日傘効果をもつ一方で、地球からの赤外放射を吸収・再放射するという温室効果ももっている。さらに、これら直接効果のほか、雲粒の核となる微粒子(雲核)として雲の性状(雲粒の数や粒径分布や滞留時間)を変化させることにより、間接的に地球の放射収支を変えるという効果ももっている。これら相反する複数の効果が絡むうえに、分布の時間・空間的な変動が大きく、全球の詳しい分布はよくわかっていない。そのため、IPCC 第三次評価報告書では、地球温暖化に与える影響についての信頼性はかなり低いとされているが、現在のところは地球全体ではエロゾルが増えると気温が下がると考えられている。

特に大規模な火山噴火は多量の二酸化硫黄を成層圏に注入し、そこで硫酸塩エロゾルの発生を引き起こす。例えば 1991 年に噴火したピナトゥボ火山は、噴火後約 2 年にわたって全球平均気温を $0.1\sim 0.2$ 低下させたと考えられている (Robock and Mao, 1995)。

このようなエロゾルの気候への影響を評価するためには、その組成成分、粒径分布、空間・時間分布などを把握する必要があるが、全球での連続した観測は少ない。このため、

ここでは日本付近の観測による結果を記述する。

気象庁は札幌など全国 14 地点で直達日射計による大気混濁度の観測、綾里の大気環境観測所、南鳥島、与那国島でサンフォトメータによるエロゾル光学的厚さ(エロゾルによる大気の濁り具合)の観測、綾里でライダーによるエロゾルの鉛直分布の観測を行っている。また、気象研究所ではライダーなどのリモートセンシングによるエロゾルの鉛直分布 (Uchino et al., 1995) や直接のサンプリングによる、組成成分、形状、粒径分布などの把握に努めている (Okada et al., 2003; Ikegami et al., 2004; Wu et al., 1994)。

(1) 直達日射計による大気混濁度の観測

直達日射とは、大気中で散乱または反射されることなく、太陽面から直接地上に到達する日射のことである。直達日射量から計算される大気混濁係数は、大気中のエロゾル、オゾン、水蒸気などによる日射の減衰をあらゆる指標となり係数が大きいほど減衰が大きいことを示す。図 2.6.28 に示すように、1982~85 年と 1991~93 年にみられる極大は、それぞれ 1982 年 3~4 月のエルチチョン火山噴火(メキシコ)、1991 年 6 月のピナトゥボ火山噴火(フィリピン)によって硫酸塩エロゾルの生成のもととなる二酸化硫黄が成層圏に大量に注入され、成層圏が長期にわたって混濁した結果である。大気混濁係数はその後次第に小さくなり、現在の日本における混濁係数は、エルチチョン火山噴火以前のレベルに戻っている。

(2) サンフォトメータによるエロゾル光学的厚さとオングストローム指数の観測

サンフォトメータとは複数の特定波長の直達日射量を測定する測定器であり、これを使ってエロゾル光学的厚さと粒径に関する情

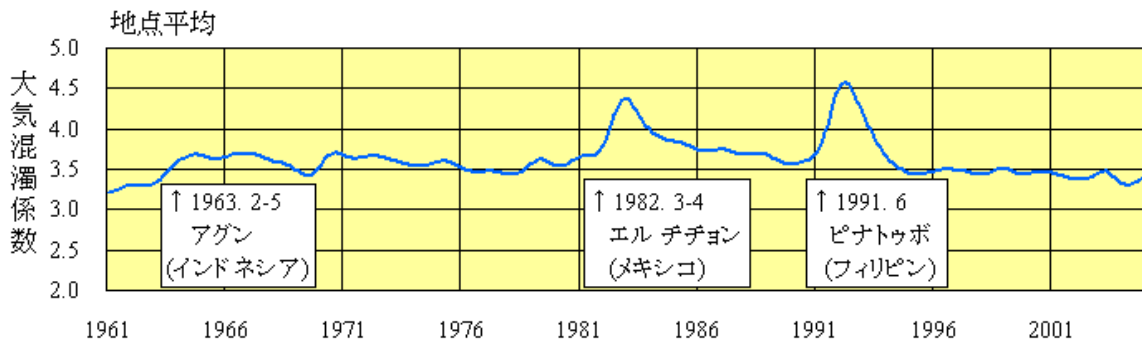


図 2.6.28 大気混濁度係数の経年変化

ここでは日々大きく変動する水蒸気や黄砂の影響を除くために、混濁係数の月最小値を全国 14 地点で平均し、さらにフィルタ操作を施して短い周期の変動を除去してある。

報であるオングストローム指数（値が大きいほど粒径の小さいエアロゾルが多いことを示し、エアロゾルの種類を特定する手がかりとなる）を観測することができる。図 2.6.29 に示すように、大陸から離れた南鳥島のエアロゾル光学的厚さは年間をとおして小さい値で安定している。一方、綾里や与那国島のデータは変動が比較的大きい。これはアジア大陸からの黄砂、森林火災の煙、大気汚染物質等が頻繁に輸送されてくるためと考えられる。

特に 2003 年 5 月下旬の綾里での大きなピークは、シベリアで発生した大規模な森林火災の煙が日本上空に流入してきたことによるものである。

図 2.6.30 に 2003 年の綾里、南鳥島、与那国島のエアロゾル光学的厚さとオングストローム指数の発生頻度分布を示す。大陸から離れた南鳥島のエアロゾル光学的厚さの頻度分布は、小さいほうに集中している。

綾里と与那国島のオングストローム指数は、1.1～1.3 の間に最頻値がある。これは比較的小さい粒径のエアロゾルが出現することが多いことを示している。大規模な黄砂現象時は通常 0.5 より小さい値をとることが多いが、2003 年は、綾里では典型的な黄砂現象が観測されなかったことがわかる。南鳥島では 0.4～0.5 に最頻値があり、出現するエアロゾルの粒径が比較的大きい。これは、一般的に粒径が大きい海塩粒子が多いためと考えられる。

(3) ライダーによる鉛直分布の観測

ライダー（レーザーライダー）は、レーザー光のパルスを大気に射出し、大気分子・雲・エアロゾルなどの物質によって散乱された光を望遠鏡で受信し、エアロゾルの鉛直分布を測定する装置である。気象庁は 2002 年 3 月、綾里においてライダーによるエアロゾルの鉛直分布の観測を開始した。（コラム「エアロゾル観測の強化」参照）

図 2.6.31 に 2003 年の月ごとに平均したエアロゾルの高度分布を示す。成層圏（季節によっても異なるが、おおむね高度 10km 以上）のエアロゾルは、対流圏と比較して極めて少ない。対流圏内のエアロゾルは変動が大きいが、地面に近づくほどエアロゾルの量は多くなっている。これらは、エアロゾルの発生源が主に地面付近に存在していることによる。

春季（3 月～5 月）は、ほかの期間に比べて特に対流圏中層のエアロゾルの量が多い。ライダーはレーザー光の反射の状態により、比較的丸い硫酸塩エアロゾルなどからなる粒子と角張った鉱物性の黄砂粒子とを区別することができる。これを利用して、春季の対流圏中層に増えたエアロゾルはアジア大陸から飛来する黄砂によるものであることがわかっている。

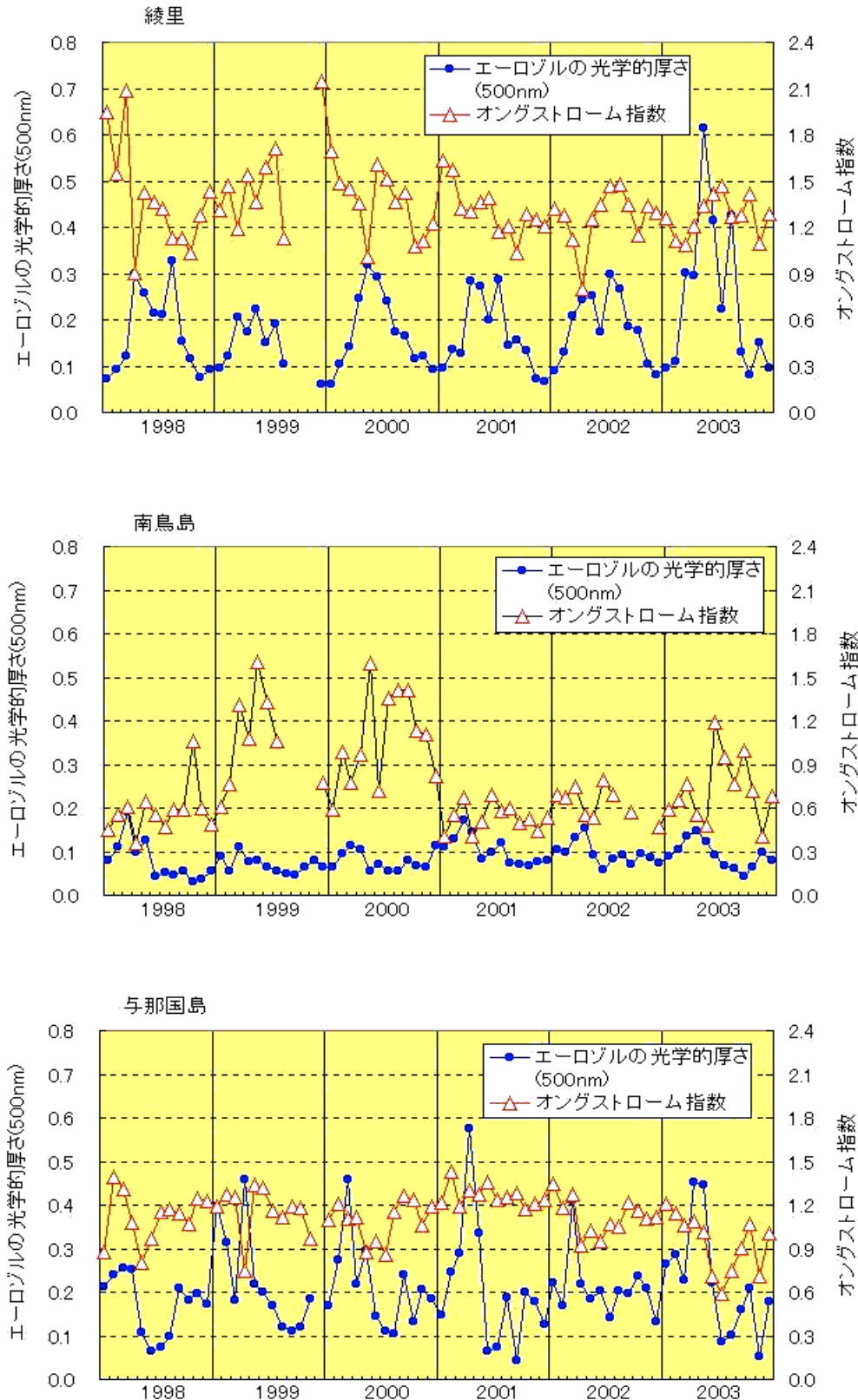


図 2.6.29 1998～2003 年の綾里、南鳥島、与那国島における太陽エネルギーがもっとも強い領域に近い波長 500nm のエアロゾル光学的厚さとオングストローム指数

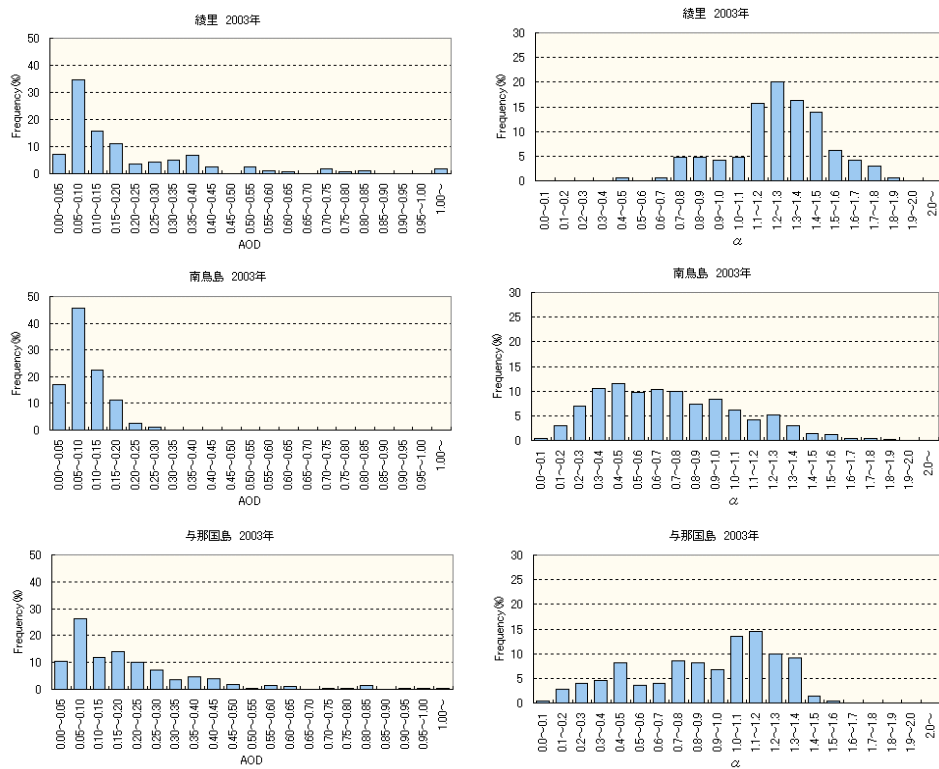


図 2.6.30 2003 年の綾里、南島島、与那国島のエアロゾル光学的厚さ (AOD:左) とオングストローム指数 (α:右) の発生頻度分布

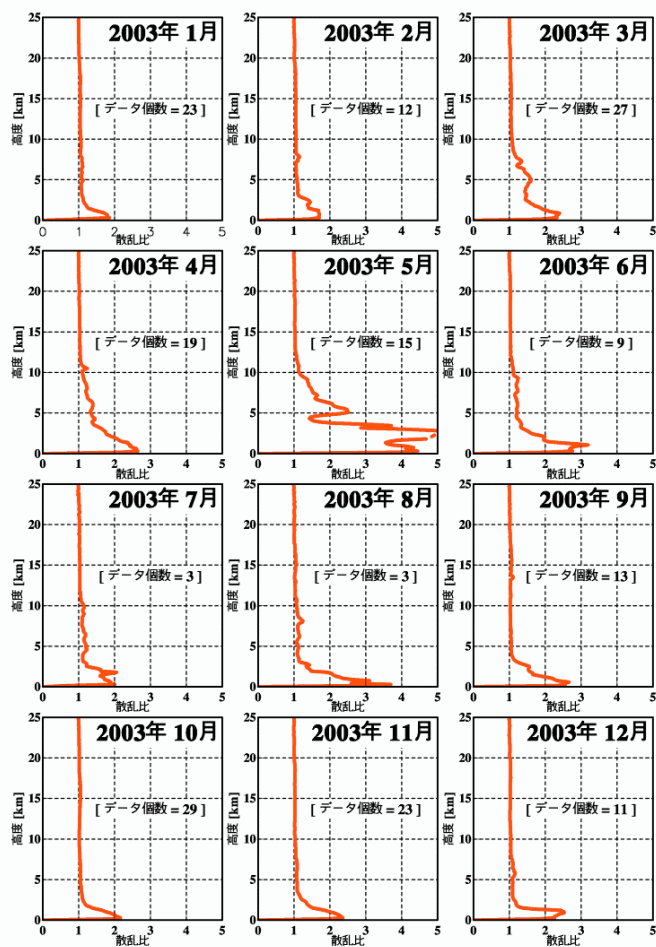


図 2.6.31 月ごとに平均した 2003 年のエアロゾルの高度分布

火山噴火にともなって大規模に注入される火山ガス（主に二酸化硫黄）によって生成される成層圏エアロゾル（硫酸エアロゾル）は、数年という長期間にわたり滞留するため、気候変動に大きな影響を及ぼす。綾里のライダーの測定範囲は、成層圏までカバーしている。このため、成層圏に浮遊する火山起源エアロゾルが日本上空に飛来した場合にも、その影響の長期にわたるモニタリングが可能である。

地球環境の監視や地球温暖化の予測精度を上げるためには、空間的にも時間的にも大きく変動するエアロゾルの把握が必要であり、ライダーはその動態を明らかにするための有効な観測手段として期待される。

（４）衛星によるエアロゾル光学的厚さの分布観測

大気に入射した太陽放射は大気中のエアロゾルの分布によって散乱・吸収される。そのため、大気外にある衛星から地球を観測すると、地球表面で散乱してくる太陽放射に加えて、大気中のエアロゾル分布によって散乱・吸収された太陽放射が観測される。一方、大気中のエアロゾルによる放射の散乱・吸収は理論的に計算できるので、大気中のエアロゾルの粒径分布や鉛直分布を仮定することにより、衛星によって観測される放射量にあうように大気中のエアロゾル分布を推定することができる。この手法では地球表面での太陽放射

の詳細な反射率情報が必要となるが、海洋上であれば十分な精度で推定可能である（Higurashi and Nakajima, 1999）。

気象庁では、ひまわり 5 号の可視域データからエアロゾル光学的厚さを算出するアルゴリズムを開発し（Masuda et al., 2002, 2003）、これを用いて 2002 年 12 月から日本周辺海域のエアロゾルの分布図を作成している。図 2.6.32 は、2003 年の毎月の月平均の光学的厚さ（波長 500 nm）の分布図である。なお、2003 年 5 月 21 日まではひまわり 5 号の、2003 年 5 月 22 日以降からはゴーズ（GOES-9）のデータを使用している。5 月の分布図をみると北海道西方海上、網走沖、釧路沖を中心に日本海北部と三陸沖へかけてエアロゾル光学的厚さが大きくなっている。これは 5 月中旬～下

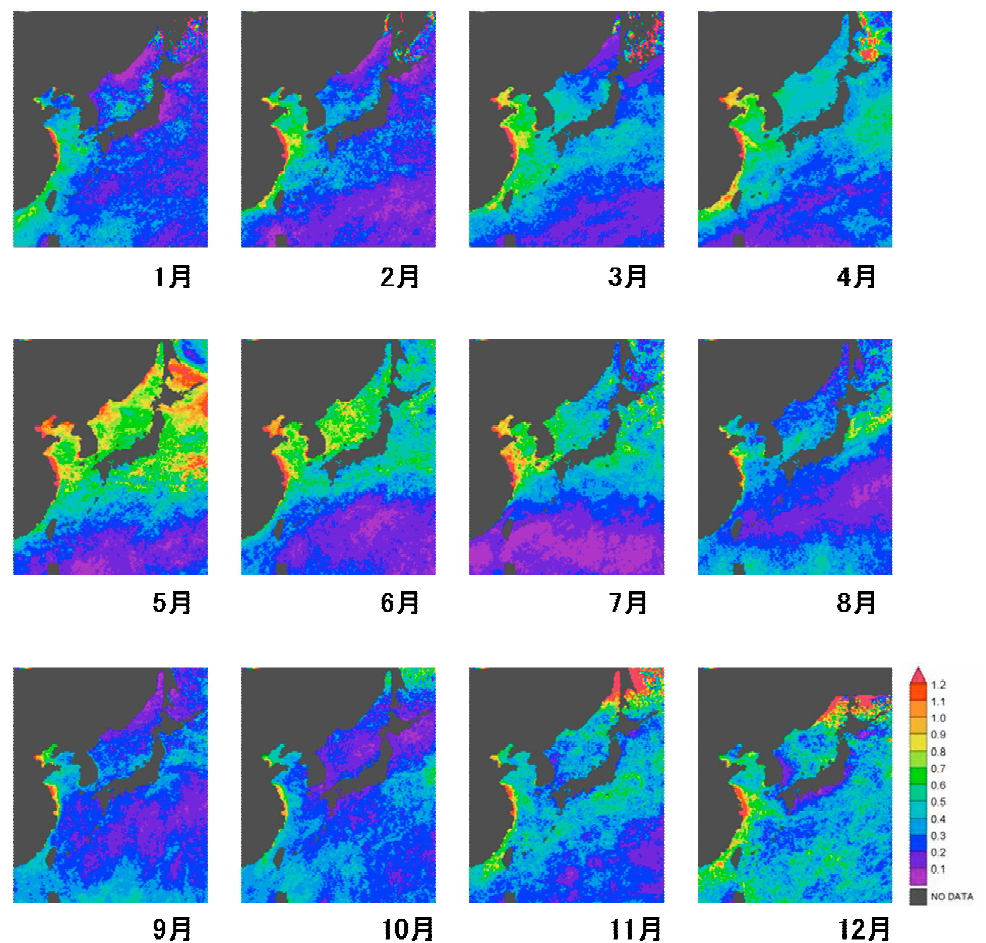


図 2.6.32 ひまわり 5 号（GOES-9）の可視域データから算出したエアロゾル光学的厚さの 2003 年の月平均分布図

旬にかけての大規模なシベリアの森林火災の影響によるものである。

(5) 森林火災による気候への影響

シベリアの亜寒帯森林で、春から秋にかけて森林火災が起こることは以前から知られており、1998 年にもロシアの沿海州で大規模な森林火災が発生している (Kasischke et al., 1999)。このときの火災で焼失した森林の面積は Kajii et al. (2002) によると 1,100 万 ha、Kasischke and Bruhwiler (2003) によると少なくとも 570 万 ha と見積もられている。

近年では規模の差はあるものの毎年のように森林火災が発生しており、その年間平均焼失面積は、500 万 ha 前後と推定されている。森林火災の煙によって発生した大量のエロゾルは、太陽からの光を直接遮るとともに、雲の凝結核 (雲粒を作るもと) となって雲の量を増やし、その雲が太陽からの光を宇宙に反射することにより地球が暖まるのを妨げ、地球全体の温度を下げる要因になると考えられている。Penner et al. (1992) によると、その局地的な影響の大きさは放射強制力で最大 -2 W/m^2 と見積もられており、非常に大きい。Hobbs et al. (1997) は、全地球平均では -0.3 W/m^2 と計算しているが、これは IPCC (2001) によって見積もられた硫酸塩エロゾルの効果に匹敵する。しかし、森林火災の発生頻度、規模、煙の特性についての把握が難しいため、全体としてはまだ不確定さが大きい。シベリアに限らず、東南アジアや南米など世界各地で森林火災は毎年のように発生しており、今後もこれらの動向に注意を払っていく必要がある。

1) 2003 年 5 月のシベリア森林火災からの煙の状況

2003 年 5 月 22 日から 24 日にかけて、札幌などでは、快晴であるにもかかわらず、直達

日射量が少なかった。この期間の札幌の直達日射量 (図 2.6.33) をみると、森林火災の煙の影響をもっとも大きく受けたとみられる 5 月 22 日は、過去同時期の大気が清浄な日に比べて、3 割以下にまで減少していた。

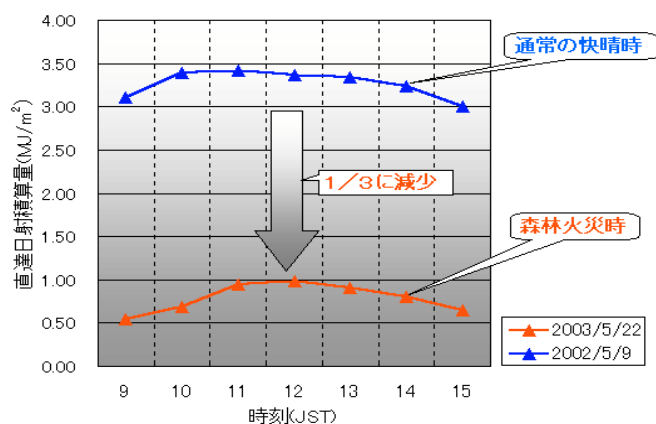


図 2.6.33 2003 年 5 月 22 日の札幌における 1 時間あたりの直達日射量

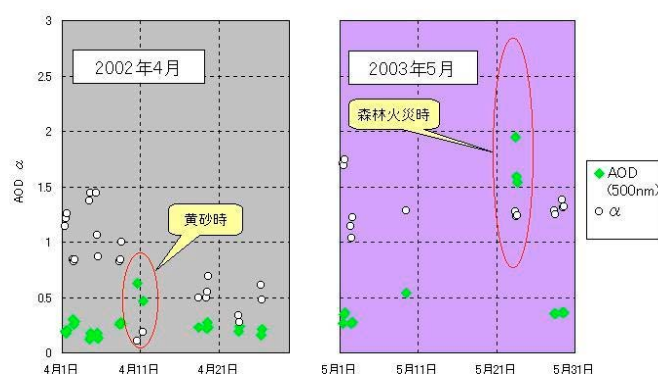


図 2.6.34 岩手県綾里の大気環境観測所のサンフォトメータによるエアロゾル光学的厚さ (AOD) とオングストローム指数 ()

綾里でのサンフォトメータを使った観測によると、5 月 23 日には、波長 500nm のエアロゾル光学的厚さが 1.5~2 であり (図 2.6.34 右)、これはいつもの年よりも 7 倍も大気が濁った状態であることを示している。また、このときのオングストローム指数は約 1.3 であり、一般に粒径が大きい黄砂の飛来時の値である 0.5 程度 (図 2.6.34 左) と比べて値が大きく、小さな粒子が比較的多かったことを示している。

この値は Eck et al. (2003) が森林火災の煙を観測した際の値と大きな差がない。

また、同所で行っているレーザー光を使ったライダー観測では、5月23日に高度3km付近を中心に高い散乱比(反射信号)を観測しており、この高度付近に濃いエアロゾル層があったことがわかる(図2.6.35)。この濃いエアロゾル層がどこから来たのか、当時の上空大気の状態をもとにさかのぼって調べていくと、5月23日に日本の綾里上空にあった空気の塊は、4日前の5月19日にはバイカル湖付近にあったことがわかった(図2.6.36)。この日のバイカル湖周辺の多くの気象観測点で煙が観測されている(図2.6.37)。また、これらの煙は、シベリアで起きた大規模な森林火災によるものであることが、宇宙航空研究開発機構(JAXA)や米国航空宇宙局(NASA)の衛星画像からも確認されている(図2.6.38)。

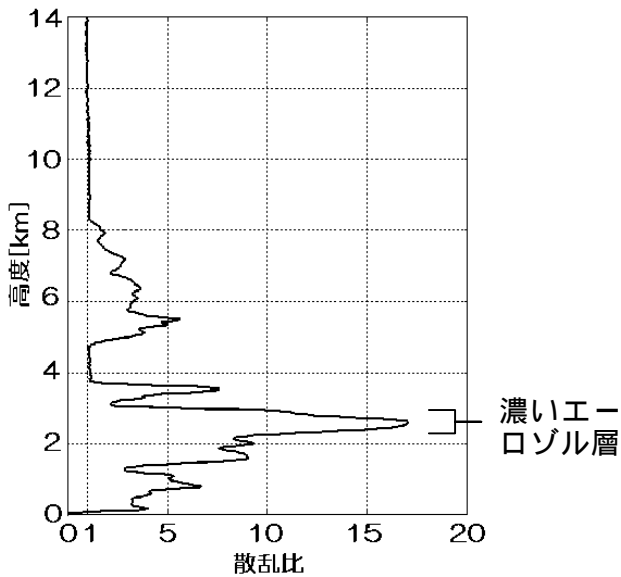


図 2.6.35 ライダー観測による 2003 年 5 月 23 日 21 時の綾里のエアロゾル鉛直分布

図 2.6.38 みどり II による 2003 年 5 月 23 日の衛星画像(宇宙航空研究開発機構(JAXA)提供)
赤の破線円内は北海道から東北に達したシベリアで起きた大規模な森林火災による煙。

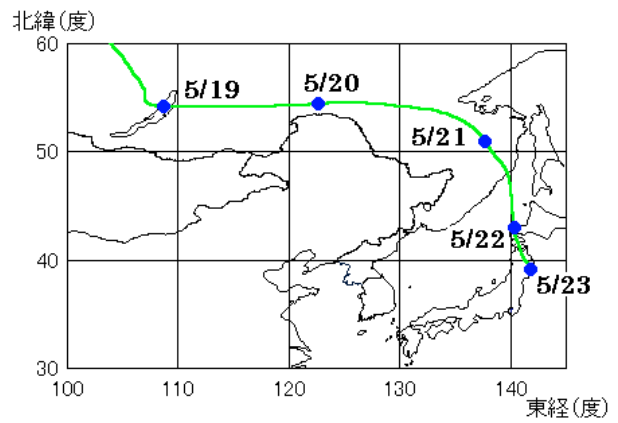


図 2.6.36 2003 年 5 月 23 日の綾里上空 3km からの後方流跡線図

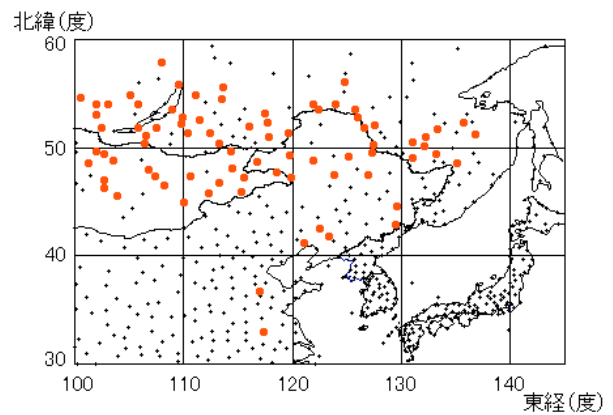
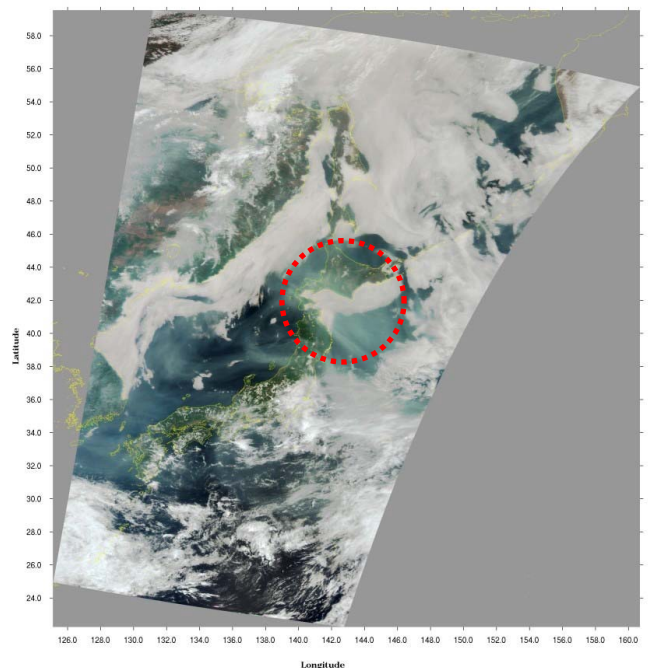


図 2.6.37 2003 年 5 月 19 日に観測所で煙を観測した地点(赤丸)(黒丸は観測所を示す)



【コラム】エアロゾル観測の強化

エアロゾルは、太陽や地球からの放射エネルギーを散乱・吸収するほか、雲の発生にも関与し、その増減は気候・気象に影響を与える。気象庁は、岩手県大船渡市綾里、南鳥島、与那国島でエアロゾル光学的厚さ（エアロゾルによる日射の減衰量に相当する量）の観測を行っている（図 1）。エアロゾルの鉛直分布は時刻とともに変動する。そのエアロゾル層の高度分布の変動を明らかにするために、平成 14 年（2002 年）3 月にこれらの観測所にエアロゾルライダー（レーザーレーダー）を設置した。ライダーは上空に向けてレーザー光線を発射し、エアロゾルに反射して返ってく

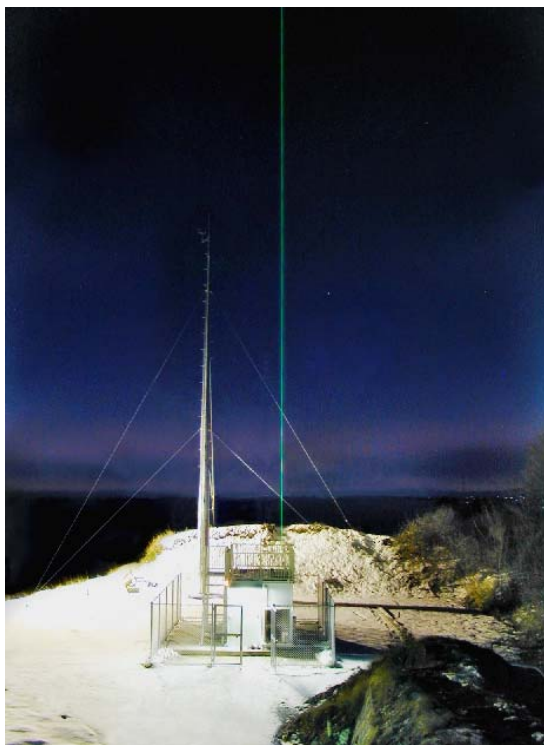


図 1 エアロゾルライダー観測風景（夜間の観測中には緑色のレーザー光がみえる）

る弱い光を捉えることによって、高度別のエアロゾルの量などを観測することができる装置である（図 2）。また反射する際の光の特性の違いを利用して、硫酸塩エアロゾルのような比較的球形のエアロゾルと黄砂のような角張ったエアロゾルを区別することができる。この装置によって、エアロゾルの高度別の分布などがわかるようになるため、エアロゾルが気候に与える影響などをより詳しく調べることができる。また、顕著なエアロゾル現象である黄砂（図 3）やシベリアの森林火災、エクアドルの火山噴火に由来すると考えられるエアロゾルを観測することもできた。

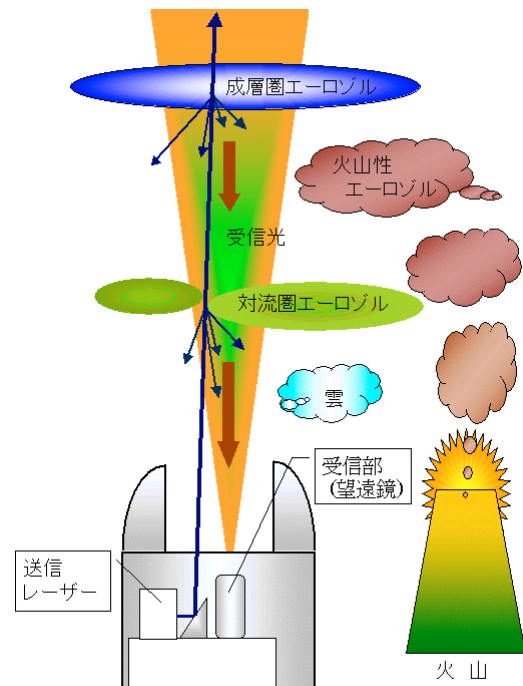


図 2 エアロゾルライダー（レーザーレーダー）の概要

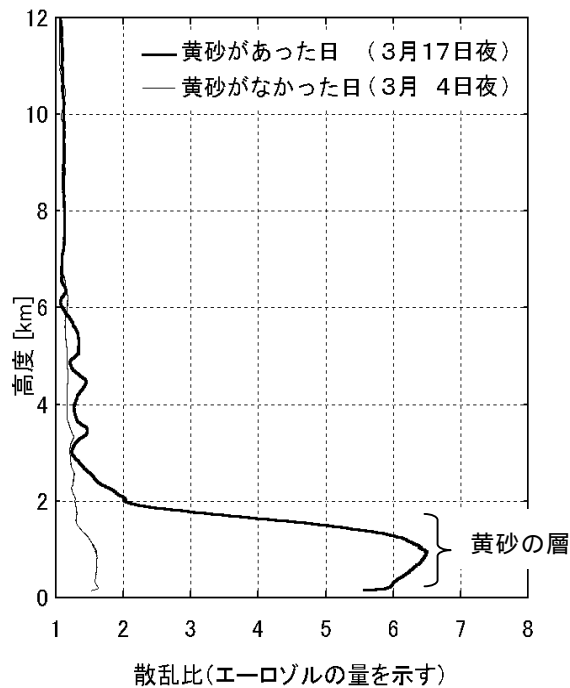


図 3 エーロゾルライダーで観測された黄砂の層

参考文献

Bartlett, K. B., G. W. Sachse, T. Slate, C. Harward, and D. R. Blake, 2003: Large-scale distribution of CH_4 in the western North Pacific: Sources and transport from the Asian continent. *J. Geophys. Res.*, 108(D20), 8807, doi: 10.1029/2002JD003076.

Bekki, S., K. S. Law, and J. A. Pyle, 1994: Effects of ozone depletion on atmospheric CH_4 and CO concentrations. *Nature*, 371, 595-597.

Brix, H., N. Gruber, and C. D. Keeling, 2004: Interannual variability of the upper ocean carbon cycle at station ALOHA near Hawaii. *Global Biogeochem. Cycles*, 18, GB4019, doi: 10.1029/2004GB002245.

Chameides, W. L., Li Xingsheng, Tang Xiaoyan, Zhou Xiuji, Luo Chao, C. S. Kiang, J. St. John, R. D. Saylor, S. C. Liu, K. S. Lam, T. Wang, and F. Giorgi, 1999: Is ozone pollution affecting crop yields in China? *Geophys. Res. Lett.*, 26, 867-870.

Chan, C. Y. and L. Y. Chan, K. S. Lam, Y. S. Li, J. M. Harris, and S. J. Oltmans, 2002: Effects of Asian air pollution transport and photochemistry on carbon monoxide variability and ozone production in subtropical coastal south China. *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 4746, doi:10.1029/2002JD002131.

Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory, 2004: Summary Report No.27, 2002-2003, NOAA, U. S. Department of Commerce, 174 pp.

Dettinger, M. D., and M. Ghil, 1998: Seasonal and interannual variations of atmospheric CO_2 and climate. *Tellus*, 50B, 1-24.

Dlugokencky, E. J., E. G. Dutton, P. C. Novelli, P. P. Tans, K. A. Masarie, K. O. Lantz, and S. Madronich, 1996: Changes in CH_4 and CO growth rates after the eruption of Mt. Pinatubo and their link with changes in tropical tropospheric UV flux. *Geophys. Res. Lett.*, 23(20), 2761-2764.

Dlugokencky, E. J., B. P. Walter, K. A. Masarie, P. M. Lang, and E. S. Kasischke, 2001: Measurements of an anomalous global methane increase during 1998. *Geophys. Res. Lett.*, 28(3), 499-502.

Dlugokencky, E. J., S. Houweling, L. Bruhwiler, K. A. Masarie, P. M. Lang, J. B. Miller, P. P. Tans, 2003: Atmospheric methane levels off: Temporary pause or a new steady-state? *Geophys. Res. Lett.*, 30(19), 1992, doi: 10.1029/2003GL018126.

Dore, J. E., R. Lukas, D. W. Sadler, and D. M. Karl, 2003: Climate-driven changes to the atmospheric CO_2 sink in the subtropical North Pacific Ocean. *Nature*, 424, 754-757.

Eck T. F., B. N. Holben, J. S. Reid, N. T. O'Neill, J. S. Schafer, O. Dubovik, A. Smir-

- nov, M. A. Yamasoe, and P. Artaxo, 2003: High aerosol optical depth biomass burning events: A comparison of optical properties for different source regions, *Geophys. Res. Lett.*, 30 (20), 2035, doi:10.1029/2003GL017861.
- Feely, R. A., R. Wanninkhof, T. Takahashi, and P. Tans, 1999: Influence of El Niño on the equatorial Pacific contribution to atmospheric CO₂ accumulation. *Nature*, 398, 597-601.
- Feely, R. A., J. Boutin, C. E. Cosca, Y. Dandonneau, J. Etcheto, H.Y. Inoue, M. Ishii, C. L. Quere, D. J. Mackey, and M. McPhaden, 2002: Seasonal and interannual variability of CO₂ in the equatorial Pacific. *Deep-Sea Res. II*, 49, 2443-2469.
- Gruber, N., C.D. Keeling, and N.R. Bates, 2002: Interannual variability in the North Atlantic Ocean carbon sink. *Science*, 298, 2374-2378.
- Gurney, K.R., R. M. Law., A. S. Denning, P. J. Rayner, D. Baker, P. Bousquet, L. Bruhwiler, Y.-H. Chen, P. Ciais, S. Fan, I. Y. Fung, M. Gloor, M. Heimann, K. Higuchi, J. John, T. Maki, S. Maksyutov, K. Masarie, P. Peylin, M. Prather, B. C. Pak, J. Randerson, J. Sarmiento, S. Taguchi, T. Takahashi, and C.-W. Yuen, 2002: Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, 415, 626-630.
- Higurashi, A., and T. Nakajima, 1999: Development of a two channel aerosol retrieval algorithm on global scale using NOAA / AVHRR. *J. Atmos. Sci.*, 56, 924-941.
- Hobbs, P. V., J. S. Reid, R. A. Kotchenruther, R. J. Ferek, and R. Weiss, 1997: Direct radiative forcing by smoke from biomass burning. *Science*, 275, 1776-1778.
- Ikegami, M., K. Okada, Y. Zaizen, Y. Tsutsumi, Y. Makino, J. B. Jensen, J. L. Gras, 2004: The composition of aerosol particles in the middle troposphere over the western Pacific Ocean: aircraft observations from Australia to Japan, January 1994. *Atmos. Env.* 38, 5954-5956.
- Inoue H. Y. and M. Ishii, 2005: Variations and trends of CO₂ in the surface seawater in the Southern Ocean south of Australia between 1969 and 2002. *Tellus*, 57B, 58-69.
- Inoue, H. Y., M. Ishii, H. Matsueda, S. Saito, T. Midorikawa, and K. Nemoto, 1999: MRI measurements of partial pressure of CO₂ in surface waters of the Pacific during 1968 to 1970: re-evaluation and comparison of data with those of the 1980s and 1990s. *Tellus* 51B, 830-848.
- Inoue, H. and Y. Sugimura, 1992: Variations and distribution of CO₂ in and over the equatorial Pacific during the period from the 1986/88 El Niño to the 1988/89 La Niña event. *Tellus*, 44B, 1-22.
- IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change), 2001: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the IPCC*, Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, 881pp.
- Ishii, M., H. Y. Inoue, and H. Matsueda, 2002: Net community production in the marginal ice zone and its importance for the variability of the oceanic pCO₂ in the Southern Ocean south of Australia. *Deep-Sea Res. II*, 49, 1691-1706.

- Ishii, M., H. Y. Inoue, H. Matsueda, S. Saito, K. Fushimi, K. Nemoto, T. Yano, H. Nagai, and T. Midorikawa, 2001: Seasonal variation in total inorganic carbon and its controlling processes in surface waters of the western North Pacific subtropical gyre. *Mar. Chem.*, 75, 17-32.
- Ishii, M., S. Saito, T. Tokieda, T. Kawano, K. Matsumoto, and H. Y. Inoue, 2004: Variability of surface layer CO₂ parameters in the western and central equatorial Pacific. In: *Global Environmental Change in the Ocean and on Land*. ed. Shiyomi et al., TERRAPUB, Tokyo, pp. 59-94.
- Kajii, Y., S. Kato, D. G. Streets, N. Y. Tsai, A. Shvidenko, S. Nilsson, I. McCallum, N. P. Minko, N. Abushenko, D. Altyntsev, and T. V. Khodzer, 2002: Boreal forest fires in Siberia in 1998: Estimation of area burned and emissions of pollutants by advanced very high resolution radiometer satellite data. *J. Geophys. Res.*, 107, No. D24, 4745-4752.
- Kasischke, E. S., K. Bergen, R. Fennimore, F. Sotelo, G. Stephens, A. Janetos, and H. H. Shugart, 1999: Satellite imagery gives a clear picture of Russia's boreal forest fires, *EOS Trans. AGU*, vol. 80, 141-147.
- Kasischke, E. S., L.P. Bruhwiler, 2003: Emissions of carbon dioxide, carbon monoxide, and methane from boreal forest fires in 1998. *J. Geophys. Res.*, 108(D1), 8146-8159.
- Keeling, C. D., H. Brix, and N. Gruber, 2004: Seasonal and long-term dynamics of the upper ocean carbon cycle at Station ALOHA near Hawaii. *Global Biogeochem. Cycles*, 18, GB4006, doi:10.1029/2004GB002227.
- Keeling, C. D., T. P. Whorf, M. Wahlen, and J. van der Plicht, 1995: Interannual extremes in the rate of rise of atmospheric carbon dioxide since 1980. *Nature*, 375: 666-670.
- 気象庁, 2005: 大気・海洋環境観測報告, 第5号.
- Lefèvre, N., A. J. Watson, A. Olsen, A. F. Ríos, F. F. Pérez, and T. Johannessen, 2004: A decrease in the sink for atmospheric CO₂ in the North Atlantic. *Geophys. Res. Lett.*, 31, L07306, doi: 10.1029/2003GL018957.
- Lelieveld, J., P. J. Crutzen, and F. J. Dentener, 1998: Changing concentration, lifetime and climate forcing of atmospheric methane. *Tellus*, 50B, 128-150.
- Lowe, D. C., M. R. Manning, G. W. Brailsford, and A. M. Bromley, 1997: The 1991-1992 atmospheric methane anomaly: Southern hemisphere ¹³C decrease and growth rate fluctuations. *Geophys. Res. Lett.*, 24(8), 857-860.
- Masuda, K., Y. Mano, H. Ishimoto, M. Tokuno, Y. Yoshizaki, N. Okawara, 2002: Assessment of the nonsphericity of mineral dust from geostationary satellite measurements. *Remote Sensing of Environment*, 82, 238-247.
- Masuda, K., Y. Mano, H. Ishimoto, M. Tokuno, Y. Yoshizaki, N. Okawara, R. Yamagiwa, A. Uchiyama, A. Yamazaki, Y. Tsutsumi, 2003: Comparisons of mineral dust optical thickness retrieved from Geostationary Meteorological Satellite with ground-based radiometer measurements. *Remote Sensing of Environment*, 85, 484-488.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue, and M. Ishii 2002: Aircraft observation of carbon dioxide at 8-

- 13 km altitude over the western Pacific from 1993 to 1999. *Tellus*, 54B, 1-21.
- Matsueda, H., H. Inoue, M. Ishii, and Y. Nogi, 1996: Atmospheric methane over the North Pacific from 1987 to 1993. *Geochem. J.*, 30, 1-15.
- Matsueda, H., S. Taguchi, H. Y. Inoue, and M. Ishii 2002: A large impact of tropical biomass burning on CO and CO₂ in the upper troposphere. *Science in China (Series C)*, 45, 116-125.
- 緑川貴, 石井雅男, 2004: 温室効果ガスの循環を把握するための海洋観測. *測候時報*, 71, S87-S101.
- Midorikawa, T., K. Nemoto, H. Kamiya, M. Ishii, and H. Y. Inoue, 2005: Persistently strong oceanic CO₂ sink in the western subtropical North Pacific. *Geophys. Res. Lett.*, 32 (5), L05612, doi:10.1029/2004GL021952.
- Midorikawa, T., K. Ogawa, H. Kamiya, N. Hiraishi, T. Umeda, A. Wada, K. Nemoto, and M. Ishii, 2003: Interannual variations of net community production and air-sea CO₂ flux from winter to spring in the western subarctic North Pacific. *Tellus*, 55B, 466-477.
- 村田昌彦, 伏見克彦, 吉川久幸, 廣田道夫, 根本和宏, 岡邊光邦, 矢吹英雄, 浅沼市男, 1996: 北西太平洋域における大気 - 海洋間の CO₂ 交換についての評価 - pCO₂ の分布と CO₂ フラックス -. *研究時報*, 48, 33-58.
- Naja, M., and H. Akimoto, 2004: Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data over Japan. *J. Geophys. Res.*, 109, D21306, doi:10.1029/2004JD004687.
- Novelli, P. C., K. A. Masarie, P. M. Lang, B. D. Hall, R. C. Myers, and J. W. Elkins, 2003: Reanalysis of tropospheric CO trends: Effects of the 1997-1998 wildfires. *J. Geophys. Res.*, 108 (D15), 4464, doi: 10.1029/2002JD003031.
- Okada, K. and J. Heintzenberg, 2003: Size distribution, state of mixture and morphology of urban aerosol particles at given electrical mobilities. *Atmospheric Environment*, 34, 1539-1553.
- Penner, J. R. Dickinson, C. O'Neill, 1992: Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget. *Science*, 256, 1432-1433.
- Pochanart, P., H. Akimoto., Y. Kinjo and H. Tanimoto, 2002: Surface ozone at four remote inland sites and the preliminary assessment of the exceedances of its critical level in Japan. *Atmospheric Environment*, Vol.36, Issue26, 4235-4250.
- Rayner, P. J., I. G. Enting, R. J. Francey and R. Langenfelds, 1999: Reconstructing the recent carbon cycle from atmospheric CO₂, ¹³C and O₂/N₂ observations. *Tellus*, 51B, 213-232.
- Robock, A. and J. Mao, 1995: The volcanic signal in surface temperature observations. *J. Climate*, 8, 1086-1103.
- Roedenbeck, C., S. Houweling, M. Gloor, and M. Heimann, 2003: CO₂ flux history 1982-2001 inferred from atmospheric data using a global inversion of atmospheric transport. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 1919-1964.
- Sabine, C. L., R. A. Feely, N. Gruber, R. M. Key, K. Lee, J. L. Bullister, R. Wanninkhof, C. S. Wong, D. W. R. Wallace, B. Tilbrook, F. J. Millero, T. -H. Peng, A. Kozyr, T. Ono,

- and A. F. Rios, 2004: The oceanic sink for anthropogenic CO₂. *Science*, 305, 367-371.
- Takahashi, T., S.C. Sutherland, C. Sweeney, A. Poisson, N. Metzl, B. Tilbrook, N. Bates, R. Wanninkhof, R. A. Feely, C. Sabine, J. Olafsson, and Y. Nojiri, 2002: Global sea-air CO₂ flux based on climatological surface ocean pCO₂, and seasonal biological and temperature effects. *Deep-Sea Res. II*, 49, 1601-1622.
- Tohjima, Y., 2000: Method for measuring changes in the atmospheric O₂/N₂ ratio by gaschromatograph equipped with a thermal conductivity detector, *J. Geophys. Res.* 105(D11), 14575-14584.
- Tsutsumi, Y., Y. Igarashi, Y. Zaizen, and Y. Makino, 1998: Case studies of tropospheric ozone events observed at the summit of Mt. Fuji. *J. Geophys. Res.*, Vol. 103 (D14), 16935-16951.
- Tsutsumi, Y., Y. Makino, and J. B. Jensen, 2003: Vertical and latitudinal distributions of tropospheric ozone over the western Pacific: Case studies from the PACE aircraft missions. *J. Geophys. Res.*, 108(D8), 4251, doi:10.1029/2001JD001374.
- Uchino, O. T. Nagai, T. Fujimoto, W. A. Matthews and J. Orange, 1995: Extensive lidar observation of the Pinatubo aerosol layers at Tsukuba (31.6N) Naha (26.2N), Japan and Lauder (45.0S), New Zealand. *Geophys. Res. Lett.*, 22, 57-60.
- Wang, X. and Mauzerall, D. L., 2004: Characterizing distributions of surface ozone and its impact on grain production in China, Japan and South Korea: 1990 and 2020, *Atmospheric Environment*, Vol. 38, 4383-4402.
- Wanninkhof, R., 1992: Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean. *J. Geophys. Res.*, 97, 7373-7382.
- WHO, 2000: Air Quality Guidelines for Europe, Second Edition. WHO regional publications, Europe series, No. 91, 273 pp.
- Wu, P. -M., Okada, T. Tanaka, T. Sasaki, T. Nagai, T. Fujimoto, O. Uchino, 1994: Balloon observation of the Pinatubo aerosols over Tsukuba, Japan, two years after the Pinatubo volcanic eruption. *J. Meteor. Soc. Japan*, 72, 475-480.