

東部東シナ海における大気から海洋への栄養塩沈着量

山田弥知*¹, 武田重信*², 田村 圭*³, 塩田友樹*¹, 吉村 浩*¹

Nutrient supply fluxes from atmosphere to ocean at the eastern East China Sea

Misato YAMADA*¹, Shigenobu TAKEDA*², Kei TAMURA*³, Yuki SHIOTA*¹ and Hiroshi YOSHIMURA*¹

In order to understand the significance of atmospheric nutrients deposited over the eastern East China Sea on the primary productivity, marine aerosols collected on board T/S Nagasaki-Maru from April to December 2010 were analyzed for water-soluble concentrations of NO_3^- , NO_2^- , NH_4^+ , PO_4^{3-} , and $\text{Si}(\text{OH})_4$. Deposition of inorganic nutrients mainly occurred as NO_3^- and NH_4^+ . Only a small amount of atmospheric deposition fluxes for PO_4^{3-} and $\text{Si}(\text{OH})_4$ were observed during the observation period, and the average molar ratio of deposited water-soluble nutrients was 320 N: 1 P: 5.4 Si. Deposition fluxes of inorganic nitrogen in spring and autumn were 2.5~3.1 times higher than those observed in summer. In spring and autumn, atmospheric aerosols were under significant influences of polluted urban atmosphere from Chinese coast, and the nitrogen deposition increased along with magnitude of the Asian dust event. While unpolluted atmosphere from the North Pacific was dominant in summer. Our estimate of the atmospheric inorganic nitrogen deposition fluxes over the East China Sea between spring and autumn could account for ca. 40% of a biological nitrogen fixation in these waters, but it increased up to 200% of the biological fixation during the Asian dust events.

Key Words : 乾性沈着量 Dry deposition fluxes, 大気エアロゾル Atmospheric aerosols, 東シナ海 East China Sea, 黄砂 Asian dust

生物活動が活発な東シナ海は、中国の東部沿岸と北西太平洋に挟まれており、世界でも最も大きい縁海のひとつである。近年まで、一次生産に利用される栄養塩は主に長江と黒潮亜表層水由来であると考えられてきた。しかし近年、大気から海洋への栄養塩供給も重要な要素であると指摘されている。^{1,2)} 大気からの窒素沈着量は長江からの無機窒素の流入量に匹敵し、大気沈着が海洋の生産性と生態系構造に影響を及ぼすという報告がある。³⁾ また東シナ海へ大気から沈着する窒素供給源は、大気への汚染物質放出量が多い東中国から輸送されている空気塊が主であると考えられている。⁴⁾

一方、東シナ海に多く存在する窒素固定生物⁵⁾や珪藻によって、リンやケイ素も重要な栄養塩のひとつである。大気中に鉱物粒子由来のリンやケイ素は比較的多く存在するが、海水中にはほとんど溶出せず、生物が利用できる割合はごくわ

ずかであると言われている。⁶⁾ しかし大西洋では、サハラ砂漠からのダストイベント時にリンやケイ素が多く沈着していることが報告されている。^{7,8)} 黄砂起源のダストイベント時に太平洋でリンが比較的多く沈着していたという報告もあり、⁹⁾ ダストイベントに伴い東シナ海でもリンやケイ素の沈着量が増加することが考えられる。黄砂イベントが起こると、黄砂粒子と共に人為起源物質も多く輸送されることが報告されているため、¹⁰⁾ 人為起源物質の排出量と黄砂の規模によって窒素沈着量も、変化することが予想される。

これまでの大気から海洋への栄養塩沈着量の研究は、陸上の定点観測が主であるが、^{11,12)} 周辺地域の土壌物質や人為起源物質の影響が考えられるため、必ずしも洋上に供給される栄養塩量と同様の傾向を示すとは限らない。一方洋上での実測データ^{3,13)} は限られており、窒素以外のリンやケイ素につ

* 1 長崎大学水産学部

Faculty of Fisheries, Nagasaki University

* 2 長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科

Graduate School of Fisheries Science and Environmental Studies, Nagasaki University

* 3 長崎県環境保健研究センター

Nagasaki Prefectural Institute for Environmental Research and Public Health

いてはほとんど知見が得られていないのが現状である。そのため本研究では、東部東シナ海域における春季から秋季にかけての窒素、リン、ケイ素の乾性沈着量を明らかにし、黄砂や人為起源物質の影響について検討することを目的とした。

方法

長崎大学水産学部附属練習船長崎丸により2010年4月から12月までの第299次航海から第312次航海、第314次航海、第318次航海から第320次航海にて、洋上大気エアロゾルのサンプリングを行った。本研究では東部東シナ海を航行中のサンプルのみを用いることにする。サンプリング中の航跡をFig.1に示す。

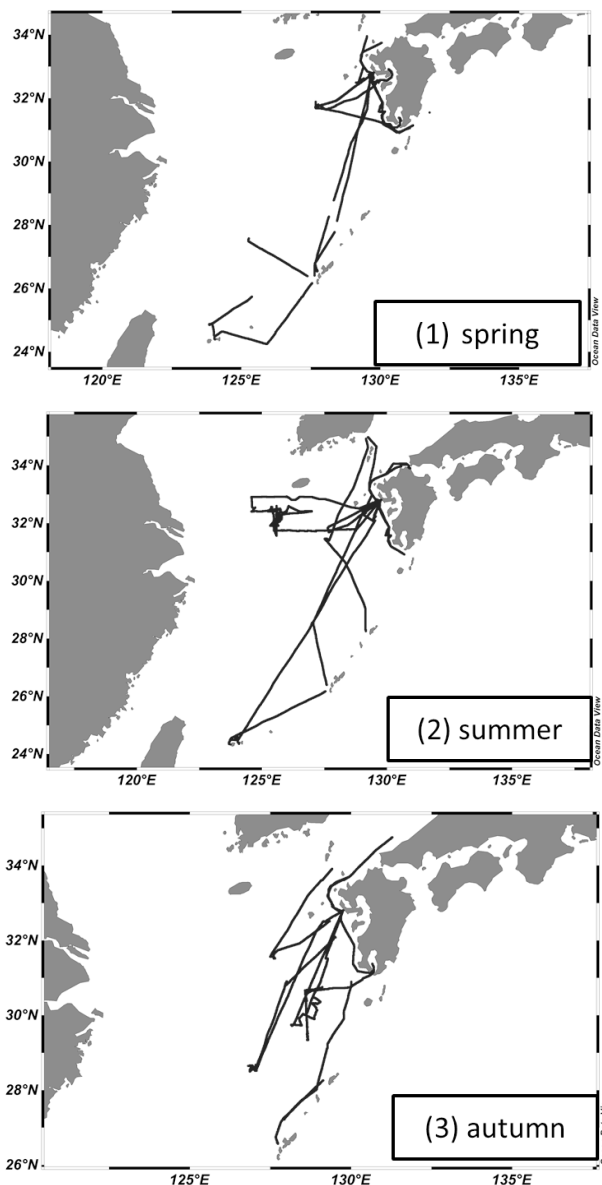


Fig.1 Ship tracks of Nagasaki-maru during (1)spring, (2)summer, and (3)autumn 2010.

エアロゾル採集には、水面から12mにある長崎丸のコンパステッキ上に設置した、ダイコトマス・ブロー式ハイボリウムサンブラ（紀本電子工業株式会社製、AS-9型）を用いた。積算流量が明らかに少なかったサンプル（60m³以下）は十分にエアロゾルを捕集できていなかったと判断し、解析時は除いた。解析に用いたサンプルは76サンプルであり、積算流量は、最小値82.4m³、最大値466.8m³、平均値237.3m³であった。また、大気中の栄養塩としては、海洋へ沈着することがほとんどないガスとしても存在するため、エアロゾルの採集にはガス吸着の少ないテフロンフィルター（ADVANTEC社製、直径90mm、PF040）を用いた。さらに、沈着量を正確に見積もるために、サンブラ内蔵の分粒装置であるバーチャルインパクトにて、PM2.5以下の小さい粒子とそれ以外の大きい粒子に分粒した。本研究ではそれぞれ微小粒子、粗大粒子と表記する。また、エアロゾル採集の際にはサンブラの隣に設置した風車型風向風速計を用い、船からの排気の影響を受ける可能性のある時は、サンブラを停止させた。

フィルターは、クラス100のクリーンベンチ内で、酸洗浄したポリカーボネート製フィルターカセットにO-リングで固定した。準備したフィルターカセットをサンブラに取り付け、出港後サンブラを起動させた。また、航海中はエアロゾルが十分量採集できる約24時間毎にフィルターを取り換え、冷蔵保存して研究室に持ち帰った。ブランクフィルターは、1航海に1度、フィルターをサンブラにセットし、作動させずにそのまま回収した。

また、航海中ではないが黄砂が飛来すると予想された期間中、三重式見港沖平岸壁（38°48.7'N, 129°46.3'E）に着岸していた長崎丸の船上で、同じサンブラにて24時間連続エアロゾル採集を行った。この期間中は船の排気の影響はないため、風向風速計は使用しなかった。

持ち帰ったフィルターは秤量し、酸洗浄したセラミック鉢で1/4に切った後、それぞれを秤量した。さらに、微小粒子と粗大粒子の境で切り分け、秤量した。栄養塩の測定後、それぞれの重さと積算流量から大気中濃度を求めた。なお、海洋に沈着した物質について、生物は水に溶け出した栄養塩しか利用できないため、本研究では水溶性の画分を測定した。特別に断りがない限り、本研究では水溶性の栄養塩を示しているものとする。

NO₃⁻、NH₄⁺、NO₂⁻、主要イオン(Na⁺、Mg²⁺、K⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻)は、超純水にて超音波抽出し、テフロンフィルター（Millipore社製、Millex-LCR0.45μm）にて濾過した。^{8,14} PO₄³⁻、Si(OH)₄はpHにより溶解度が異なるため、0.1NのHClにてpH7に調整した1mM炭酸水素ナトリウム抽出液にて、超音波抽出し、上記と同様に濾過した。^{7,8,14} NO₃⁻、NH₄⁺、NO₂⁻、PO₄³⁻は、オートアナライザー（ピーエルトック社製、AACS-4）を用い、吸光度法により分析した。Si(OH)₄は、自作のシングルチャンネルオートアナライザーにて、モリブデンブルー法で分析した。主要イオンは、イオンクロマトグラフィー（使用カラム anion: IonPac AS12A, analytical 4×250mm, Product No.046073, 溶離液

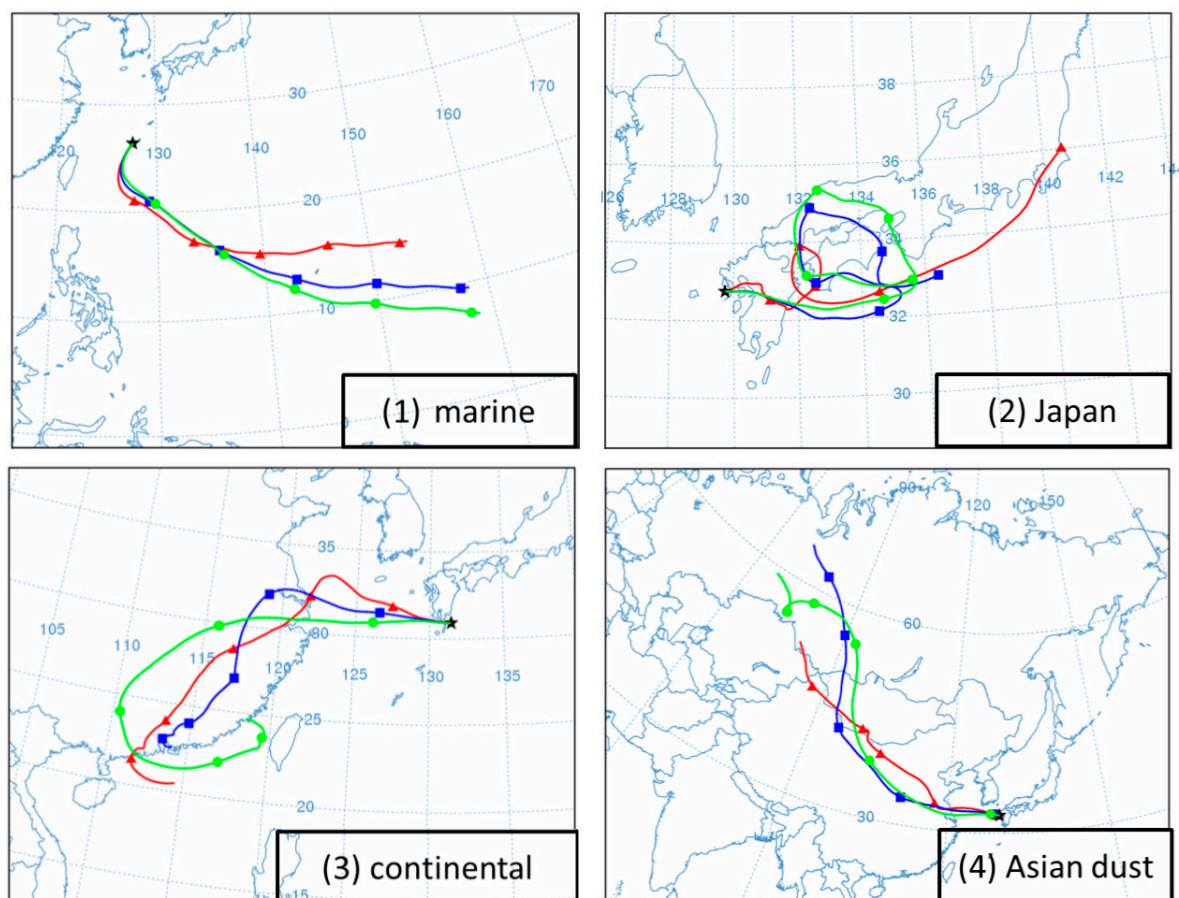


Fig.2 Composite plots of five-day multiple backward trajectories originated from (1)marine, (2)Japan, (3)continental, and (4)Asian dust. Red line is a track of air mass at 500m, blue line is at 1000m, and green line is at 1500m.

20mM メタンスルホン酸, 使用カラム cation: IonPac AS12A, analytical 4×200mm, Product No.046034, 溶離液 2.7mM Na₂CO₃/0.3mM NaHCO₃) を使用し測定した。検出限界以下であったサンプルは、計算上は“0μM”として扱った。

取得したサンプルの空気塊の起源は、バックワードトラジェクトリー（後方流線跡解析, NOAA Air Resources Laboratory HYSPLIT モデル, <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>) を用いて調べた。バックワードトラジェクトリーとは、天気図を時系列的に重ね、空気塊の動きを推測しその位置変化を線で表したものである。本研究では気流の出発高度を、エアロゾルの降塵を考慮し指定した場所の上空500m, 1000m, 1500m とし、遡った期間は5日間とした。調べた結果から、北太平洋上からきた海洋起源、日本を通過してきた日本起源、中国大陸を通過してきた大陸起源にサンプルを分類した (Fig.2)。さらに大陸起源のうち、土壌性ダストの大気輸送モデル (CFORS, 九州大学, 国立環境研究所)¹⁵⁾ を参考に黄砂が飛来したと予想される時のサンプルは、黄砂起源とした。また季節変化を調べるため、4月から6月を春, 7月から9月を夏, 10月から12月を秋として分類した。

ここで、サンプル中の海塩粒子の影響を考える。海塩粒子とは海面から大気中に放出された微小な海水が、液滴の状態もしくは乾燥した固体粒子として大気中に浮遊しているもの

である。この海塩粒子をサンプルとして採集していると予想され、その影響を、海水の含有 Na⁺ 濃度とその各元素比から海塩由来の主要イオン量の値を使って除去することができる。^{16,17)} そのため、太平洋表層水含有元素濃度¹⁸⁾ を参考に、Na⁺ との比を SO₄²⁻/Na⁺ (0.0596), Ca²⁺/Na⁺ (0.0213), K⁺/Na⁺ (0.0213), Mg²⁺/Na⁺ (0.113) とし、海塩の影響を除去した。本研究では海塩粒子の影響を除去した画分を nss (non sea salt) と表記する。

エアロゾルの沈着速度は微小粒子・粗大粒子それぞれ 0.1cm/s, 2cm/s とし¹⁾、大気濃度との乗法により、沈着量とした。本研究では、沈着量は何も断りがなければ、微小粒子と粗大粒子の沈着量の合計とする。

結果および考察

大気からの窒素供給

東部東シナ海における大気からの栄養塩沈着として、PO₄³⁻ や Si(OH)₄ と比べ無機窒素 (DIN : NO₃⁻, NH₄⁺, NO₂⁻ の合計とする) が非常に多かった (Fig.3)。無機窒素沈着を詳しく見ると、NO₂⁻ の沈着は非常に少なく、NO₃⁻, NH₄⁺ が同程度重要であることがわかった。

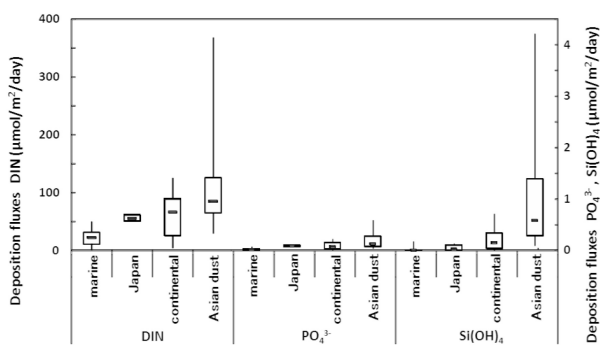


Fig.3 Box plot diagram of deposition of water-soluble inorganic nitrogen, PO_4^{3-} , and Si(OH)_4 in aerosol collected in air mass of marine, Japan, continental, and Asian dust origin. Horizontal lines of the box show first quartile, median, and third quartile from below. Error bars denote maximum and minimum percentiles.

まず、 NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} の微小粒子大気濃度の関係をFig.4(1),(2)に示した。 nss-SO_4^{2-} は主に石炭を燃焼させることにより生じる、ばい煙中に多く存在するため、特に石炭の使用の多い中国からの人為起源汚染物質の指標として用いられている物質である。Fig.4(1)において両者に相関があったことは(両側検定、 $P < 0.01$ で相関が有意であった。本研究で相関があったと記述しているものは同様の検定に基づくものとする。)、従来の報告^{3,12)}と一致した。これらはアンモニアガスと硫酸化物由来の硫酸が大気中で中和反応し、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ や NH_4HSO_4 としてエアロゾルとなり存在していると報告されている。³⁾ 本研究の NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} との比はおよそ2:1であったことから、主に $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ として存在していたと考えられる。なお本研究では日本起源のサンプルが少ないため、今後さらに調べていく必要がある。海洋起源においては、 nss-SO_4^{2-} の値が $< 20 \text{ nmol/m}^3$ のサンプルとそれ以外のサンプルにわけると、 $< 20 \text{ nmol/m}^3$ のサンプルでは相関がみられた (Fig.4(2))。 nss-SO_4^{2-} の値が $> 20 \text{ nmol/m}^3$ のサンプルは、大陸起源や黄砂起源の NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} の比より大幅に nss-SO_4^{2-} が過剰であった。これは、起源となる洋上に NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} のいずれの絶対量も少なかったこと、さらに双方ともに海洋に吸着除去されるが、硫酸は光化学反応等により生成され増加する¹²⁾ためであると推測される。一方 nss-SO_4^{2-} の値が $< 20 \text{ nmol/m}^3$ のサンプルに相関がみられたことは、陸上を経由し NH_4^+ や nss-SO_4^{2-} を多く含んだ空気塊が洋上に輸送されたのち、比較的短時間しか経過していなかったためではないかと推察される。

粗大粒子大気濃度の NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} では(Fig.4(3),(4))、大陸起源と nss-SO_4^{2-} が $< 20 \text{ nmol/m}^3$ の黄砂起源について相関がみられた。従来の報告¹⁹⁾では粗大粒子中の NH_4^+ と nss-SO_4^{2-} の関係は、微小粒子の $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ や NH_4HSO_4 が凝固し粗大粒子として存在するとしている。しかし本研究での微小粒子と粗大粒子の NH_4^+ 大気濃度では、大陸起源以外は相関がみられなかった。さらに大陸起源より海洋起源は NH_4^+ や nss-SO_4^{2-} が少ないことから、人為起源汚染物質の影響が大

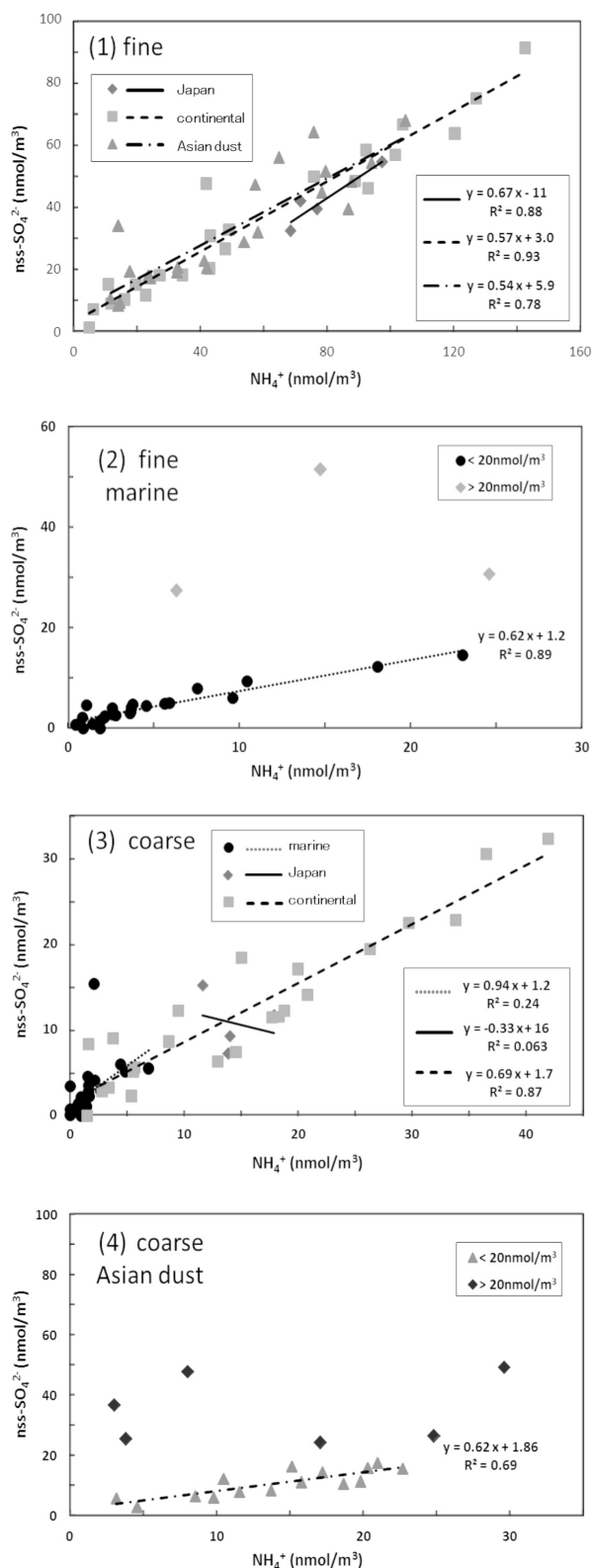


Fig.4 Relationship between equivalent concentrations of nss-SO_4^{2-} and NH_4^+ (1) in the fine aerosols of Japan, continental, and Asian dust origin, (2) in the fine aerosols of marine origin, (3) in the coarse aerosols of marine, Japan, and continental origin, and (4) in the coarse aerosols of Asian dust origin.

きい大陸起源では支持できる説であるが、影響の少ない海洋起源では粗大粒子は既に除去されており違った結果となったと考えられる。また、黄砂起源において nss-SO_4^{2-} の値が $<20\text{nmol/m}^3$ のみ相関が見られたことにより、 nss-SO_4^{2-} の供給が多くなると NH_4^+ のみならず他の物質にも吸着するのではないかと考えられる。すなわち $>20\text{nmol/m}^3$ のサンプルは、都市大気の影響を非常に大きく受けていることを示している。

粗大粒子大気濃度の NO_3^- と nss-Ca^{2+} の関係を Fig.5(1),(2) に示した。 nss-Ca^{2+} は主に鉱物粒子中に存在している。また、鉱物粒子は主に粗大粒子中に存在することが知られている。²⁰⁾

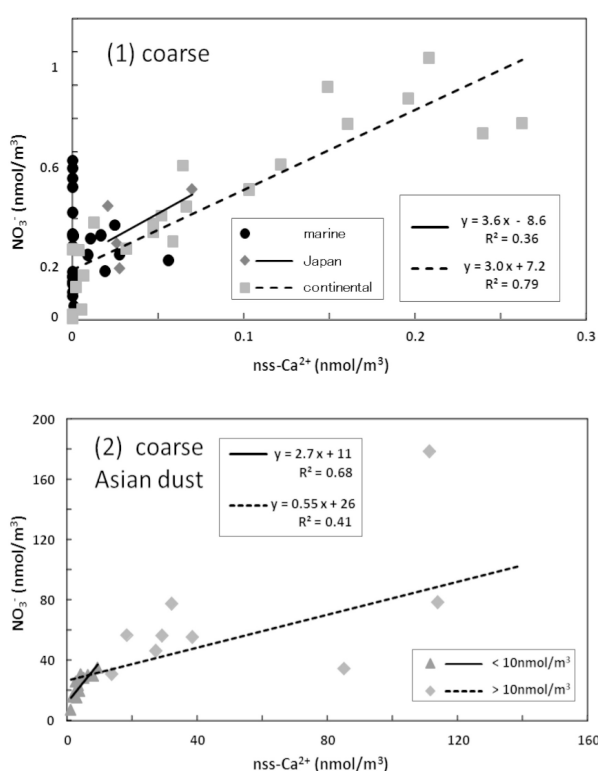


Fig.5 Relationship between equivalent concentrations of NO_3^- and nss-Ca^{2+} (1) in the coarse aerosols of marine, Japan, and continental origin, and (2) in the coarse aerosols of Asian dust origin.

大陸起源と nss-Ca^{2+} が $<10\text{nmol/m}^3$ の黄砂起源において相関がみられたことは、従来の報告^{3,20)}と同様であった。しかし黄砂起源の $>10\text{nmol/m}^3$ で相関が見られなかったことは、本研究のサンプルでは、 NO_3^- の供給には限界があったため、それを上回る黄砂が飛来すると頭打ち状態となり相関が不明瞭となったと推察される。また従来の報告³⁾ではこれらは $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ として輸送されていると報告されているが、本研究の $<10\text{nmol/m}^3$ において NO_3^- と nss-Ca^{2+} との比はおよそ 3:1 であり、 NO_3^- が過剰であった。このことは、 NO_3^- の量に対して鉱物粒子中の nss-Ca^{2+} が少ない際は、 NO_3^- がカルシウムとの化合物としてだけでなく鉱物粒子そのものに吸着した形でも運ばれている可能性を示す。海洋起源の空気塊

には鉱物粒子が少ないため、 NO_3^- と nss-Ca^{2+} の関係は小さいと考えられる。また、 NO_3^- は沈降速度の大きな粗大粒子として多く存在するため、無機窒素沈着量としてこの関係は非常な位置を占めると予想される。

ここで大気からの DIN 沈着(Fig.3)は、黄砂イベント時に非常に多くなるサンプルもあるが、沈着量が増加しないサンプルもあった。これは黄砂を含んだ空気塊が、DIN の供給源である都市部を通過したかどうかによるものであると推測される。

さらに PO_4^{3-} や $\text{Si}(\text{OH})_4$ の沈着量は非常に少ないが(Fig.3)、黄砂イベント時にはそれぞれ1.6~8倍、4~35倍と明確に増加したことから、黄砂が東部東シナ海表層のリンとケイ素の供給源になっていることが確認された。これは黄砂イベントの有無やその規模が、 PO_4^{3-} や $\text{Si}(\text{OH})_4$ についての供給量の指標になることを示している。

植物プランクトンが主に利用する栄養塩の取り込み比率(レッドフィールド比, 16:1:16)と比べ、大気から供給される栄養塩の比率を調べるため N:P:Si 比をみると、それぞれ海洋起源 2636:1:0.0, 日本起源 638:1:0.2, 大陸起源 818:1:2.5, 黄砂起源 611:1:3.9 となった。黄砂起源においては DIN 沈着が増加するが P や Si も増加するため、ほかの起源と比べると N の供給割合は小さい。しかしその黄砂起源においても窒素供給はレッドフィールド比より大幅に大きく、窒素制限下²⁾におかれている東部東シナ海の植物プランクトンにとって、大気からの窒素供給は栄養塩の吸収や利用を促進させるものであると推測される。

長期観測の重要性

2002年春に東部東シナ海で採集された大陸起源の大気中のエアロゾルに含まれる NO_3^- や NH_4^+ の平均濃度³⁾は、それぞれ本研究の中央値の1.8倍、2.4倍であった。このことにより、この文献値は本研究と比較して人為起源汚染物質の影響を強く受けていたことを示している。さらに2002年秋に東部東シナ海で秋に採集された大気エアロゾルの NO_3^- と NH_4^+ 、 nss-SO_4^{2-} 、 nss-Ca^{2+} の平均大気濃度²¹⁾は、それぞれ本研究の中央値の2.3倍、3.0倍、3.1倍、6.3倍であった。文献値の nss-Ca^{2+} が大きいことから2002年のサンプリング期間は大規模な黄砂イベントが発生していたため、より人為起源汚染物質の影響を強く受けていたと考えられる。

本研究の結果は春から秋にかけての長期的な多数のデータに基づくものであり、より平均的な大気中濃度をあらわすと考えられ、これら既存のデータでは東部東シナ海の沈着量を見積もる上では過大評価になる可能性がある。これらのことは、洋上で長期間のサンプリングが必要なことを示しており、その点で本研究は、実際の沈着量を見積もる上で重要な役割を果たし得ると考えられる。

栄養塩沈着の季節変化

季節別沈着量を Fig.6 に示した。 nss-Ca^{2+} の季節別沈着量は、夏にはほとんど見られず、春より秋に多いことがわかった。 nss-Ca^{2+} は前述のとおり黄砂イベントの指標となるた

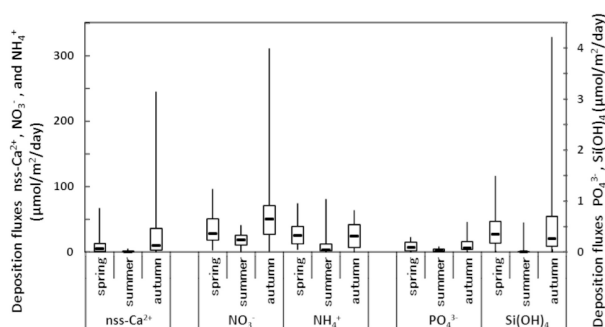


Fig.6 Box plot diagram of deposition of water-soluble inorganic, nitrogen, nss-Ca²⁺, PO₄³⁻, and Si(OH)₄ in aerosol collected in spring, summer, and autumn. See Fig. 3. captions for box plot explanations.

め、2010年は春より秋に大規模な黄砂イベントが発生したことを示している。

窒素沈着量を季節別でみると、NO₃⁻とNH₄⁺共に夏に少なく春や秋に多くなった。DINで比較すると、春は夏の2.5倍、秋は夏の3.1倍の沈着があった。その要因は夏に海洋起源のサンプルが多く、春や秋は陸域の影響を受けた大陸起源や黄砂起源のサンプルが多かったためであると考えられる。すなわち、沈着量を大きく左右する要因として、季節よりも起源が重要であることを示している。また、NH₄⁺の沈着量は春と秋の違いはほとんどなかったのに対し、NO₃⁻の沈着量は春より秋に多かった。これはNH₄⁺の沈着は黄砂に左右されない難いのに対し、NO₃⁻は黄砂に吸着して沈着すること、本研究では春より秋の黄砂が大規模であったことに起因すると推察される。

PO₄³⁻とSi(OH)₄も同様に黄砂からの溶出があるため、春と秋で沈着量が多くなる傾向を示した。前述のとおり秋に黄砂が多く飛来しており、PO₄³⁻、Si(OH)₄の沈着量が春より秋のほうが多いことも、黄砂イベントがこれらの沈着量の指標になるという説を支持している。ただし、黄砂イベントは主に春に起こるもので、秋の発生回数は通常は限られているため、本研究の特に秋季の結果を東シナ海への沈着量の見積りに使う場合は注意が必要である。

大気からの窒素沈着が東部東シナ海に及ぼす影響

本研究での大気から供給されるDINの中央値(68μmolN/m²/day)と、東部東シナ海表層の生物窒素固定(180μmolN/m²/day²²⁾を比較すると、大気からのDIN沈着が生物窒素固定の約38%と同程度の供給量を担っていると推測される。これが黄砂起源のみの中央値(84μmolN/m²/day)では約47%、さらに本研究の最大無機窒素沈着量(368μmolN/m²/day)でみると約200%もの供給量を担っているという結果となった。黄砂イベントの大きさにも大きく左右されるが、東部東シナ海は窒素制限⁹⁾でありかつ光の量が十分に存在する表層に沈着することを考慮すると、大気からの窒素供給は新生産に多大な影響を与えると推測される。このことは今後、東アジアの窒素排出量の監視を行い、東シナ海への沈着量の動向を追うことが重要であると

示している。また、窒素沈着に関し本研究は乾性沈着の無機窒素のみであるため、有機窒素や湿性沈着から供給される窒素を明らかにするとともに、東シナ海における一次生産者の窒素沈着に対する応答を代表的な藻類グループ別に調査し、大気降下物質が一次生産に及ぼす影響を定量的に評価する必要がある。

要 旨

大気から海洋への栄養塩沈着量を明らかにするため、2010年4月から12月に長崎丸にてエアロゾルを採集し、水溶性のNO₃⁻、NO₂⁻、NH₄⁺、PO₄³⁻、Si(OH)₄について分析した。沈着する栄養塩は、NO₃⁻とNH₄⁺が同程度に重要であり、NO₃⁻は黄砂飛来時に多く沈着する。それに対してPO₄³⁻とSi(OH)₄は非常に少なかった。春季と秋季の窒素沈着量は夏季に比べて2.5~3.1倍程度高く、清浄な海洋大気の影響を受ける夏季と、陸域の影響を受ける春季および秋季との間に違いがみられた。また本研究では春季より秋季のほうが窒素沈着量は多く、黄砂の量に大きく影響されることが推察される。東部東シナ海への大気からの無機窒素沈着は、中央値で見積もると生物窒素固定の40%と同程度であり、最大供給量で見積もると200%の沈着があった。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、長崎大学水産学部附属練習船長崎丸乗組員の皆様にはサンプリングの便宜を図っていただき心より御礼申し上げます。長崎大学水産学部の中田研究室、梅澤研究室の皆様には、オートアナライザーでの測定にて、ご指導いただき、便宜を図っていただきましたことを心より感謝の意を表す。2名の査読者からは有益かつ貴重なコメントをいただき、深く御礼申し上げます。

文 献

- 1) Duce, R.A., P.S. Liss, J.T. Merrill, E.L. Atlas, P. Baut-Menard, B.B. Hick, J.M. Miller, J.M. Prospero, R. Arimoto, T.M. Church, W. Ellis, J.N. Galloway, L. Hansen, T.D. Jickells, A.H. Knap, K.H. Reinhardt, B. Schneider, A. Soudine, J.J. Tokos, S. Tsunogai, R. Wollast and M. Zhou: *Global Biogeochemical Cycles*, **5**, 193–259 (1991).
- 2) Uematsu, M., M. Toratani, M. Kajino, Y. Narita, Y. Senga and T. Kimoto : *Geophysical Research Letter*, **30(6)**, 1342, doi:10. 1029/2002GL016645 (2003).
- 3) Nakamura, T., K. Matsumoto and M. Uematsu: *Atmospheric Environment*, **39**, 1749–1758 (2005).
- 4) Kang, J., B.C. Cho and C.B. Lee: *Science of the Total Environment*, **408**, 2369–2377 (2010).
- 5) 塩崎拓平：東京大学院農学生命科学研究科水圏生物化学専攻、博士論文(2009)

- 6) Baker, A.R., T.D. Jickells, K.F. Biswas, K. Weston and M. French: *Deep-Sea Research II*, **53**, 1706–1719 (2006).
- 7) Baker, A.R., T.D. Jickells, M. Witt and K.L. Linge: *Marine Chemistry*, **98**, 43–58 (2006).
- 8) Baker, A.R., T.D. Jickells, M. Witt and K.L. Linge: *Marine Chemistry*, **98**, 43–58 (2006).
- 9) Furutani, H., A. Meguro, H. Iguchi and M. Uematsu: *Geophysical Research Letters*, **37**, L03805, doi:10. 1029/2009GL041367 (2010).
- 10) 大平武俊, 角田寛, 三原利之: 岐阜県保健環境研究所報, 21–28 (2007).
- 11) Zhang, J., S.M. Liu, J.L. Ren, Y. Wu and G.L. Zhang: *Progress in Oceanography*, **74**, 449–478 (2007).
- 12) 畠山史郎, 高見昭憲, 三好猛雄, 王璋: エアロゾル研究, **21**, 147–152 (2006).
- 13) Hsu, S.-C., G.T.F. Wong, G.-C. Gong, F.-K. Shiah, Y.-T. Huang, S.-J. Kao, F. Tsai, S.-C.C. Lung, F.-J. Lin, I.-I. Lin, C.-C. Hung and C.-M. Tseng: *Marine Chemistry*, **120**, 116–127 (2010).
- 14) Baker, A.R., S.D. Kelly, K.F. Biswas, M. Witt and T.D. Jickells: *Geophysical Research Letters*, **30(24)**, doi:10. 1029/2003GL018518 (2003).
- 15) Uno, I., S. Satake, G. R. Carmichael, Y. Tang, Z. Wang, T. Takemura, N. Sugimoto, A. Shimizu, T. Murayama, T. A. Cahill, S. Cliff, M. Uematsu, S. Ohta, P. K. Quinn and T. S. Bates: *Journal of Geophysical Research*, **109**, D19S24, doi:10. 1029/003JD004222 (2004).
- 16) Sasakawa, M., A. Ooki and M. Uematsu: *Journal of Geophysical Research*, **108(D3)**, 4120, doi:10. 1029/2002JD002329 (2003).
- 17) Cheng, Z.L., K.S. Lam, L.Y. Chan, T. Wang and K.K. Cheng: *Atmospheric Environment*, **34**, 2771–2783 (2000).
- 18) Li, Y.H.: *Princeton University Press*, Princeton, 304–307 (2000).
- 19) Ottley, C.J., R.M. Harrison: *Atmospheric Environment*, **26A**, 1689–1699 (1992).
- 20) 関谷勲生, 田中浩: 名城大学理工学部研究報告書, **47**, 137–141 (2007).
- 21) Nakamura, T., H. Ogawa, D.K. Maripi, M. Uematsu: *Atmospheric Environment*, **40**, 7259–7264 (2006).
- 22) Shiozaki, T., K. Furuya, T. Kodama, S. Kitajima, S. Takeda, T. Takemura, and J. Kanda: *Global Biogeochemical Cycles*, **24**, GB1015, doi:10. 1029/2009GB003620 (2010).