

— 2009年度 日本海洋学会賞受賞記念論文 —

## 大気圏を通して海洋に運ばれる化学物質に関する研究\*

植松 光夫†

### 要 旨

大気と海洋間での生物地球化学的相互作用や、その応答は、気候や環境の変化を引き起こしたり、引き起こされたりする。私は地球規模の物質循環の観点から、海洋大気エアロゾルの化学組成変動とその挙動、そして海洋への影響について研究してきた。アジア大陸に起源を持つ鉱物粒子や人為起源エアロゾルが、北太平洋上へ春季を中心に広く輸送され、地球規模の気候変化の放射収支に影響を与えていることを示唆した。またエアロゾルが輸送されている間に海洋大気境界層内で生じている化学的、物理的変質過程や除去過程を明らかにした。海洋に沈着するこれらの物質が、海洋表層での化学的、生物的過程を通して、海洋生物活動に影響を与えていることを確かめた。一方、海洋大気エアロゾル化学組成が、海洋生物や物理環境によって変化することを示した。海洋と大気と気候間でのリンケージの定量的な理解を、さらに深化させるためには、海洋科学と大気科学の連携が不可欠である。

キーワード：海洋大気，エアロゾル，鉱物粒子，人為起源物質，大気海洋物質循環

### 1. はじめに

地球は46億年、常に変わり続けている。今の地球上では、春になると陸上で草花が咲き乱れるように、北太平洋の沿岸域から中央部にかけて、植物プランクトンのブルーム域が北上する。それは栄養塩を含んだ下層の水が湧昇し、太陽光が十分に注がれて、表層水塊が安定すると同時に、アジア大陸から外洋域の海洋生物に不足気味の微量元素を含んだ黄砂（鉱物粒子）が、何千キロメートルも偏西風に乗って飛来し、沈着するからともいわれ

る。この時期に、成層圏と対流圏を分ける圏界面は大きく歪み、成層圏の物質が対流圏へ降下する。自然現象の解明を目的とする研究が深まるほど、地球は生きているという実感を持つ。

そんな地球が、海洋へ運び込まれる物質の質や量を人間活動によって変えられ、その結果、海洋生物の種類や量など海洋生態系や、海洋大気組成も変りつつある。私の研究は、陸圏から大気圏を通して海洋圏に運ばれ、そして最終的には堆積物として地圏環境に移行する物質の循環と、その相互作用の過程を明らかにしようとする取組んできたものである。2004年には「海洋大気エアロゾルの挙動と組成変動に関する地球化学的研究」で日本地球化学会賞を受賞した（植松，2005）。

これらの研究成果を基に、さらに海洋への関わりを強め、2006～2010年度の間、特定領域研究「海洋表層・大気下層の物質循環リンケージ（大気海洋物質循環）」

\* 2013年1月4日受領；2013年1月18日受理

著作権：日本海洋学会，2013

† 東京大学大気海洋研究所

〒277-8564 千葉県柏市柏の葉5-1-5

TEL・FAX: 04-7136-6361

e-mail: uematsu@aori.u-tokyo.ac.jp

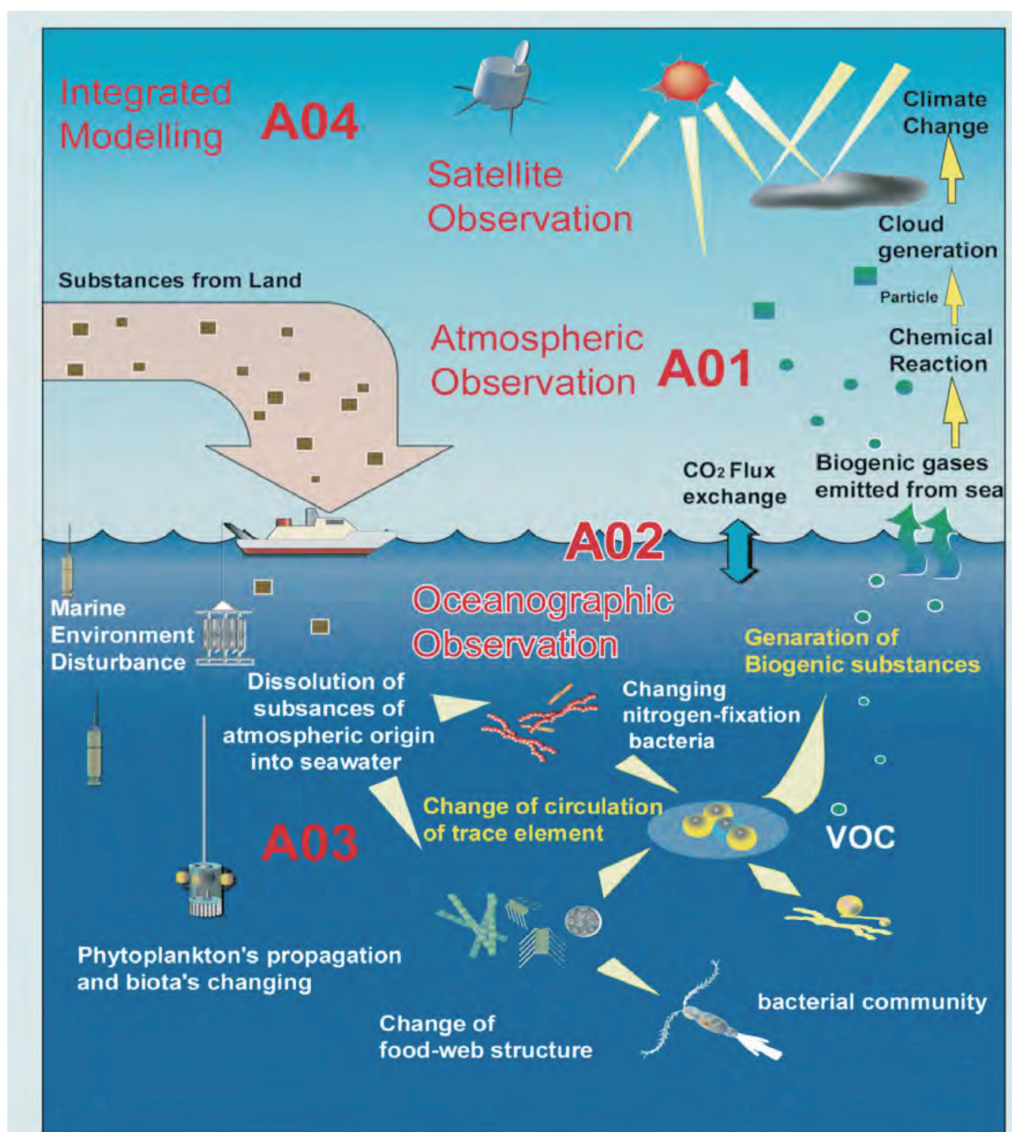


Fig. 1. Schematic concept of the W-PASS (Western Pacific Air-Sea interaction Study) project funded as the Grant-in-Aid for Scientific Research in Priority Areas (illustrated by Y. Narita).

(W-PASS: Western Pacific Air-Sea interaction Study) に取組んだ (Fig. 1).

この度の受賞は、大気と海洋の間での物質循環や海洋生態系の変化が、地球大気の組成や気候に影響を及ぼすことを定量的に理解し、将来の地球環境予測の高度化のために貢献する基礎研究領域の確立とその進展に対して、評価していただいたものと感謝している。時をほぼ同じくして、2010年4月に私の所属していた東京大学海

洋研究所と、東京大学気候システム研究センターが統合され、東京大学柏キャンパスに、大気海洋科学の基礎研究を推進する大気海洋研究所が新しく設立されたのは時の流れであろう。

本論文では、植松 (2005) と内容が一部重複する箇所があるが、ご了承いただきたい。2012年末までの約90報の学術論文の被引用数は、Google scholarによれば、約3,200件、主著者であった論文は18編であり、その

被引用件数は約 900 件であった。また、h 指数は 28 であった。被引用数 28 件以上の論文が、少なくとも 28 編あることになる。Google scholar の被引用数は、Web of Science よりも 1-2 割程度、高めに出る傾向があるが、相関は極めて高く、アクセスも容易である。年を経ても被引用数が増え続ける論文もあれば、まったく増えない論文もある。これらの数字が世界のどの程度のレベルにあるのかは知る由もないが、どの論文が他の研究者に興味を持たれ、影響を与えたのか目安にはなると考える。文中の各引用文献の [ ] 内の数字は、私が著者の一員である論文の被引用数である。

## 2. 大気を通して海洋へ輸送される陸上の自然起源物質

地球上でのエアロゾルの発生量は、海塩粒子が年間 3,340 Tg ( $10^{12}$  g) とエアロゾル成分の中で最も大きい。大気中の平均滞留時間は、わずか 1 日程度である。洋上の大気物質を海洋へ効率よく取込む掃除役でもある。鉱物粒子発生量は、年間 2,150 Tg と自然起源、人為起源を含めて海塩粒子に次いで二番目に大きく、平均滞留時間は 4 日程度である (IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change), 2001)。陸起源物質、特に鉱物粒子は、発生源からそれほど遠くまで運ばれていないと考えられていた。

Duce らは 1979 年に、北太平洋のマーシャル諸島のエニウエトク環礁で、大気エアロゾルの化学成分濃度を測定した。夏に比べて春に鉱物粒子濃度が 2 桁も高く、それが 8,000 km も離れたアジア大陸の黄砂に由来するものだと結論した (Duce *et al.*, 1980)。1981 年には北太平洋上の島々に、大気エアロゾル採取装置と全降下物採取器を設置して、時空間変動を測定した。その結果、春先に頻繁にアジア大陸で発生する砂嵐 (黄砂) の鉱物粒子が、偏西風によって運ばれ、中緯度帯の北太平洋中央部を中心に、北はベーリング海、南は赤道付近まで広がっていることを明らかにした (Uematsu *et al.*, 1983 [418]; Uematsu *et al.*, 1985a [24])。海洋への鉱物粒子沈着量を見積もり、北太平洋中央部の海水中を沈降する陸起源物質の粒子束の大部分が、大気を通して運ばれていることを見出した (Uematsu *et al.*, 1985b [162])。

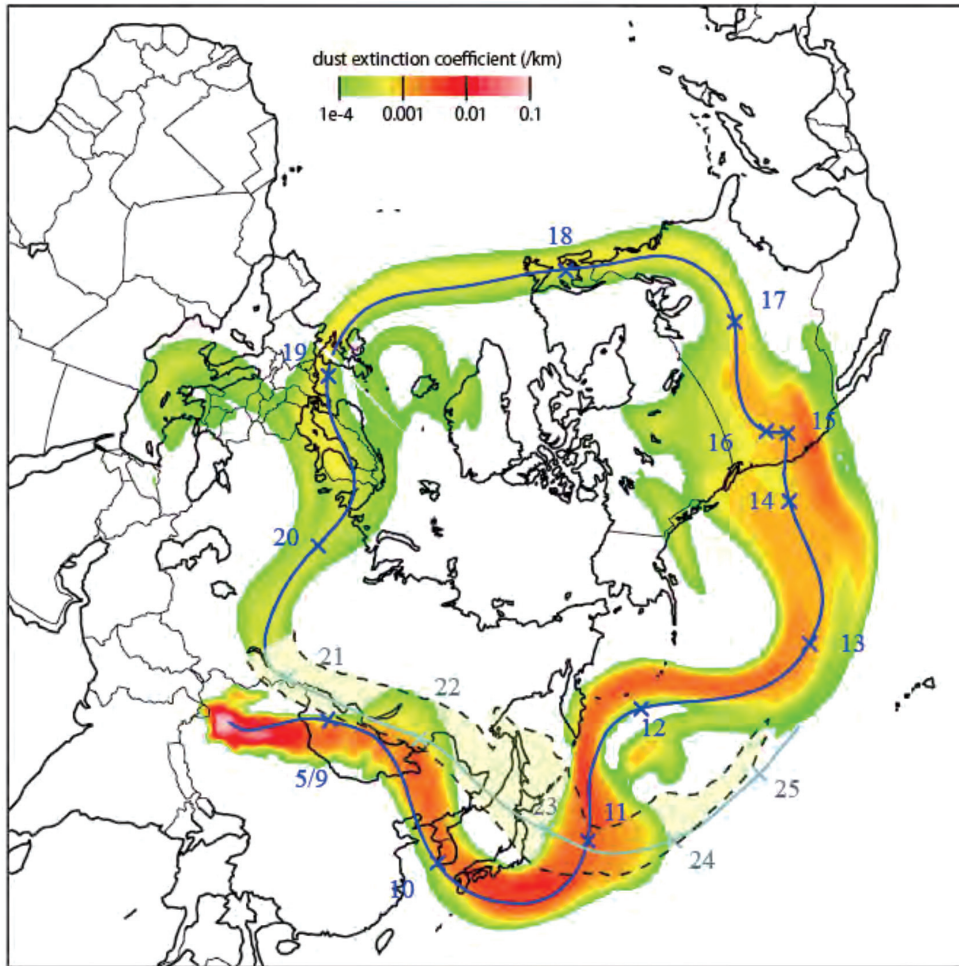
さらに ADIOS (Asian Dust Input to Oceanic System) 航海では、北太平洋中央部の貧栄養海域において、降水、大気粒子状物質、セジメントトラップや現場濾過器を用いた海洋粒子状物質を採取し、アジア大陸からの大気物質の海洋環境への影響を観測した結果、 $100 \mu\text{m}$  に近い鉱物粒子が約 7,000 km も運ばれ、短時間で観測海域の海水中の粒子組成を、大きく変化させたことを見出した (Betzer *et al.*, 1988 [116])。この黄砂飛来時の荒天下で溶存酸素の鉛直分布は均一化され、基礎生産量は大きく増加していた (Young *et al.*, 1991 [118])。自然界で鉄が加わり、栄養塩が消費され、ブルームの終焉を迎えた過程を、初めて観測した例である。

2007 年 5 月に発生した大規模な黄砂の場合、タクラマカン砂漠から上空 8-10 km まで運び上げられた黄砂が、13 日間で地球を一周し、さらに東進し、北太平洋高気圧の縁辺で降下し、北太平洋上へ沈着したりする事例 (Uno *et al.*, 2009 [83]) が、衛星観測やモデルによって再現された (Fig. 2)。しかし 1980 年代に米国で開かれた学会で、黄砂が北太平洋を横断して北米大陸に運ばれている可能性はあるかと質問を受け、それはないだろうと即答した軽薄さを思い出すと、赤面の至りである。

これら一連の黄砂の発生と輸送過程について、気象観測結果を含めて、気象学的な解析を行った (Merrill *et al.*, 1989 [265])。成層圏、対流圏上部に起源を持つ天然放射性核種ベリリウム-7 を用いて、太平洋中央部でその前駆体が陸起源物質である硝酸塩エアロゾルが、対流圏上部を経由して輸送されていることを示した (Uematsu *et al.*, 1994 [12]; Uematsu, 1998 [8])。1986 年に起きたチェルノブイリ原発事故によって、人工放射性物質は地球を半周し、日本上空を越え、北太平洋上の観測網や米国研究船でも検出されたことなど (Uematsu *et al.*, 1988 [8]) によって、大気物質長距離輸送モデルの基礎と検証の先鞭をつけた。

大気中エアロゾルは、大気中から湿性沈着か乾性沈着によって海洋に除去される。自動降水連続採取装置を太平洋横断定期貨物船上に搭載して一年間稼働させた結果、降水水中の不溶性粒子化学組成は季節的に変動し、一回の降水時に除去される粒子数に大きな変動がないことなどを見出した (Uematsu *et al.*, 2000 [6])。このことから降水量ではなく、降水頻度によって鉱物粒子の沈着量





**Fig. 2.** Asian dust transported one full circuit around the globe. Approximately 44,000 km was traced from May 8–27, 2007 (Uno *et al.*, 2009). By the model, over one million tons of dust was emitted and remained about 10% at the end of trip (courtesy by I. Uno).

が左右されることを明らかにした。SEEDS II (Subarctic iron Enrichment for Ecosystem Dynamics Study II) による鉄散布実験 (Tsuda *et al.*, 2007 [43]; Uematsu *et al.*, 2009 [1]) では、添加された鉄を含む水塊内で、懸濁粒子の乾重量、個数濃度、体積濃度がクロロフィル濃度の増加と連動したが、特に有機物粒子が顕著に増加することを、個々の粒子の化学組成分析によって明らかにした (Iwamoto *et al.*, 2009 [4])。西部北太平洋亜寒帯海域では、黄砂の飛来時に発生した海霧によって、一気に大気中の鉱物粒子が、海洋に除去沈着した。その結果、海水中懸濁鉱物粒子が増加したことを実測し、

鉄散布実験で添加された鉄と同程度の溶存態鉄が、供給されていることを見積もった (Iwamoto *et al.*, 2011 [6])。

### 3. 大気を通して海洋へ輸送される人為起源物質

近年、東アジアでは、人為起源の窒素化合物の大気への放出量が、増加傾向にあり、海洋、特に東シナ海や日本海など縁辺海を中心とした西部北太平洋域において、沈着量の増加が認められている (Uno *et al.*, 2007 [17])。また、気象庁の栄養塩データを中心に、海洋表層水中の窒素化合物濃度についても、1980 年以降増加の傾向を示

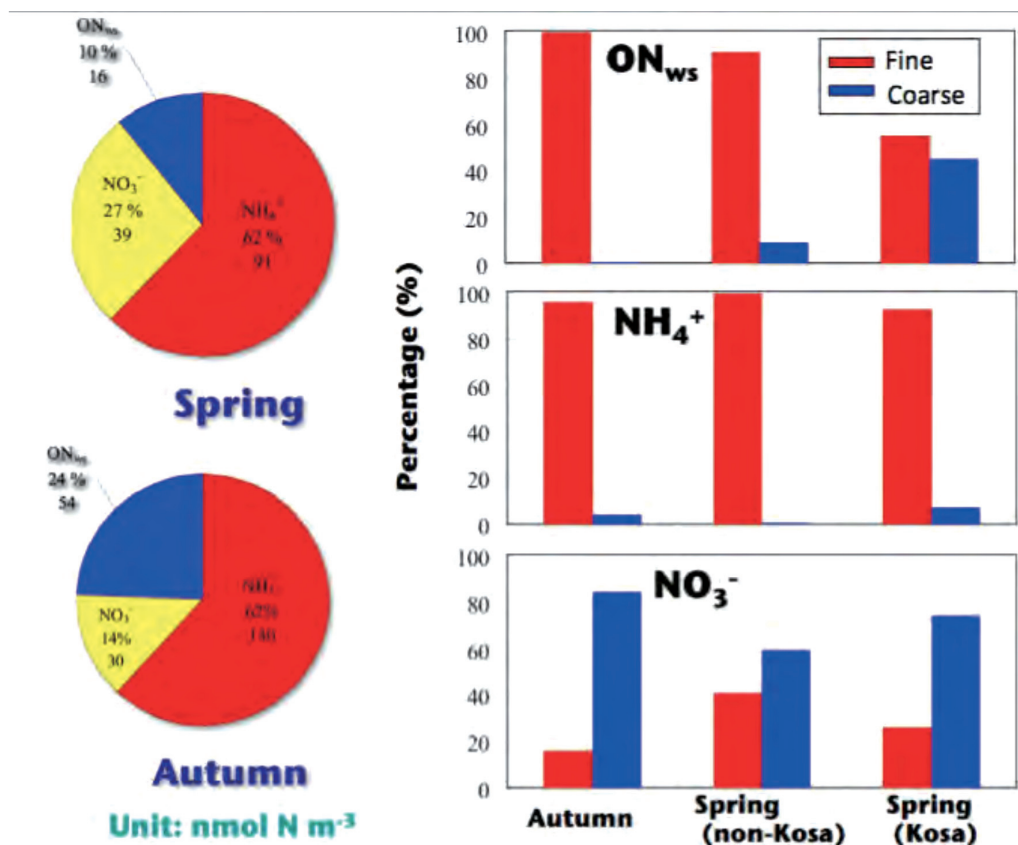


Fig. 3. Importance of organic nitrogen compounds for total nitrogen in marine aerosol and its unique reaction with mineral dust particles (after Nakamura *et al.*, 2006).

し、その増加が大気からの窒素沈着によるものであることが示されている (Kim *et al.*, 2011).

長崎での集中観測によって、硫酸塩粒子などの人為起源物質が、寒冷前線直前の湿った空気塊に含まれ、その後から黄砂粒子が、乾燥した空気塊によって運ばれることを、高時間分解のサンプリングと X 線マイクロアナライザを用いた個別粒子化学分析によって明らかにした (Uematsu *et al.*, 2002 [75]). また鉍物粒子表面には硫酸ガスよりも、同じ人為起源である硝酸ガスの方が、吸着しやすいことを確かめた (Ooki and Uematsu, 2005 [57]). さらに海洋エアロゾル中の無機窒素化合物の粒径分布を実測し、大気中濃度の高いアンモニウム微小粒子よりも、大気中濃度の低い硝酸塩大粒子の方が沈着速度が速いことから、沈着量はより大きいことを明らかにし、海洋への全無機窒素沈着量を見積もった (Matsumoto

and Uematsu, 2009 [4]). 東シナ海においては、大気から東シナ海へのアンモニウム塩、硝酸塩の沈着量が、長江からの流入量に匹敵し、大気海洋への栄養素の重要な供給経路であることを示した (Nakamura *et al.*, 2005 [51]). さらに水溶性有機態窒素は、陸に主な発生源を持ち、大気中で鉍物粒子に特異的に吸着し、輸送されていることが分かった (Fig. 3). 全窒素に対する水溶性有機態窒素の割合は、平均 22% を占め、東アジアの影響を受ける海域では、水溶性有機態窒素が窒素循環に大きく影響を与えるものであることを示した (Nakamura *et al.*, 2006 [28]). 大気中エアロゾル中のリンについても、西部北太平洋で高濃度であり、人為起源の水溶性成分の占める割合が高いことを見出した (Furutani *et al.*, 2010 [5]). 東シナ海でのエアロゾル中の微量金属成分については、鉍物の指標元素の一つであるマンガンを含め、鉛、

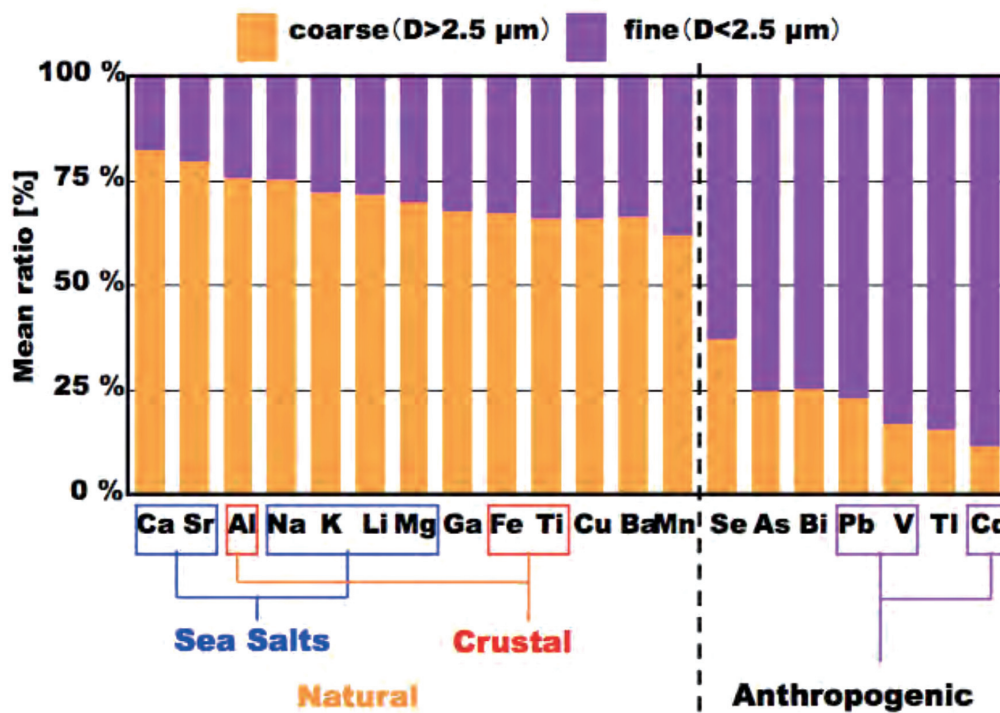


Fig. 4. Distribution of chemical elements between coarse and fine fraction of marine aerosol (Uematsu, unpublished data).

亜鉛、セレンなどが、非海塩性硫酸塩粒子と相関が高く、人為起源元素として微小粒子に存在する (Uematsu *et al.*, 2010 [11]) ことを明らかにした (Fig. 4). また、単一微粒子質量分析法 (ATOFMS) による個々の粒子の粒径と化学成分を解析し、東アジア縁辺海での鉄を含んだ微小エアロゾルは、大陸由来の石炭燃焼起源が多く、外洋大気中ではバナジウムが指標となる船舶の排気起源の鉄含有微小粒子の存在を明らかにした (Furutani *et al.*, 2011 [9]). こうして太平洋上の海洋大気境界層に流入した気体やエアロゾルは、海塩粒子や鉍物粒子と共に海洋表面へ沈着し、鉍物粒子や人為起源粒子から溶け出した鉄や、海洋大気エアロゾルに吸着した硝酸やアンモニアが、海洋生物の栄養塩として利用される。

北太平洋亜寒帯に多発する海霧の pH は、日本海で 2.6、北太平洋北西部でも平均 4.0 という酸性であり (Sasakawa and Uematsu, 2002 [14]; 2005 [10]), 人為起源物質だけではなく、海洋生物から放出される自然起源の硫黄化合物による場合もあることを示した (Ooki

*et al.*, 2003 [4]). また、硝酸イオンが硫酸イオンに比べて、海霧に約 2 倍の効率で除去されていることがわかった (Sasakawa *et al.*, 2003 [19]). 生物生産の高い亜寒帯海域で多発する海霧は、陸起源の窒素化合物を海洋へ供給する反面、硫酸塩微小粒子となる硫黄化合物を除去する存在である。大気から供給される人為起源窒素化合物による海洋基礎生産に対する寄与の割合は、現時点で平均すると、新基礎生産量の 10% 以下程度であると見積もられている。

今まで窒素が不足気味の海域では、大気中の窒素を固定して生息する植物プランクトン中心の海洋生態系が維持されていた。しかし、大気からの窒素供給と、地球温暖化による表面水温の上昇に伴う海洋成層化の強まりと相まって、変化が生じ始めている可能性が考えられる。

Duce ら (2008 [250]) は、地球規模の物質循環モデルによって、全海洋への窒素化合物の沈着量と、その将来予測をまとめた。2030 年にはインド洋や西部太平洋域において、窒素供給量が数倍程度まで増加し、植物プラ



ンクトンも増加する。それによって大気中の二酸化炭素が海洋に吸収されるが、その約 10%が、大気からの窒素化合物の沈着による施肥効果の寄与であるとみなされる。しかし同時に、二酸化炭素の約 300 倍の地球温暖化指数を持つ一酸化二窒素が、海水中で生成して大気中に放出され、二酸化炭素減少による温暖化抑制効果の 3 分の 2 が相殺されると見積もった。

#### 4. 海洋から大気へ放出される海洋生物起源物質

海洋生態系の変化は、化学物質の供給や物理的な過程によっても引き起こされるが、海洋生物の生命活動や、死亡、腐敗によって、様々な気体が吸収され、生成される (Kameyama *et al.*, 2009 [9]; 2010 [6])。その結果、二酸化炭素が大気から吸収され、硫化ジメチル (DMS) をはじめとする揮発性有機化合物 (VOC) (Hashimoto *et al.*, 2009 [7]; Kurihara *et al.*, 2010 [4]) が、海水中で生成され、大気中に放出 (Nagao *et al.*, 2009 [4])、粒子化されて、二次生成エアロゾルとして、大気エアロゾル組成に変化をもたらす (Ooki *et al.*, 2007 [6])。この定量的な議論は、現在、海面での二酸化炭素や DMS フラックスの実測 (Griessbaum *et al.*, 2010 [1]) や、エアロゾルの鉛直フラックス測定によって取組まれている。特に南太平洋での外洋大気においては、北半球の海洋大気と比べ、人為起源物質の影響は極めて小さく、エアロゾル数濃度も低い (Jung *et al.*, 2011 [0])。そんな海洋大気環境下で、もし海洋生物生産が低下すれば、海洋生物起源エアロゾルの減少を導き、雲粒数濃度が低くなって、雲粒粒径が大きくなり、雲の寿命が短くなるなどから、温暖化が一層促進されることになる。仮説としては興味深いが、定量的にどうなのかを評価する必要があるであろう。

#### 5. 無人海洋大気観測艇「かんちゃん」による観測

島の存在しない北緯 30 度から 50 度にかけての北太平洋中緯度帯では、観測やサンプリングは船舶か係留ブイに頼るしかない。しかし、航海中に出現する突発的な自然現象に直ちに対応できる大気観測は、あまり期待でき

ない。

そこで無人海洋大気観測艇「かんちゃん」が開発された。無人で自動航走あるいは定点保持をして、大気エアロゾルや気体成分と海洋表層の物理・生物パラメーターを、連続測定するプラットフォームであり、全長 8 m、幅 2.8 m の単艇体ヨットをベースとしている (Senga *et al.*, 2000)。「かんちゃん」による海洋大気観測によって、三宅島の火山噴煙から二酸化硫黄とともにアンモニアガスが放出され、海洋生物への栄養塩としての供給が無視できない可能性を見出した。そして衛星画像解析から、夏季の西部北太平洋の生物生産が増加していることを確かめた (Uematsu *et al.*, 2004 [20])。

#### 6. 自然界の突発現象の把握

海洋上での突発的な自然現象は、生物地球化学的物質循環にも大きな影響を与える。私が今まで関わったプロジェクトや研究航海で、予期せぬ突発的な現象を経験したことは、他の研究者よりも多いと思う。放射能物質やテフロンが発見に繋がるような serendipity とまではいかないが、こういった現象に遭遇したことは幸運であったとしかいいようがない。1986 年の ADIOS 航海時の黄砂巨大粒子 (Betzer *et al.*, 1988 [116]) やチェルノブイリ事故による人工放射性物質の飛来 (Uematsu *et al.*, 1988 [8]) を始めとして、2001 年の三宅島噴火による窒素化合物の供給 (Uematsu *et al.*, 2004 [20])、2007 年の黄砂と霧の出現 (Iwamoto *et al.*, 2011 [6])、2008 年のアリューシャン列島の火山噴火による鉄供給、キラウエア火山噴煙による硫酸塩微小粒子生成 (Eguchi *et al.*, 2011 [1])、そして台風による海洋環境の擾乱など、これらの現象を確認したのは、現場観測だけではない。航海中の船上での衛星による大気や海洋の観測によって、これらの現象を確認し、その規模を把握することができたこともあった。これまでの観測データや衛星画像解析、モデルグループと連携し、洋上での突発的な現象をモデルで再現できるかについて、定量的な議論が可能となってきた。大気科学と海洋科学のグループが互いに理解し合い、共通の課題に取り組み始めたのは、大気と海洋間の物質循環の重要さが認識されてきたからだと考えている。



Fig. 5. A group photo on the 4<sup>th</sup> W-PASS general meeting at Jozankei, Sapporo in the fall of 2009. The scientists of 89 from 29 organization were joined the W-PASS project from 2006 to 2010.

## 7. おわりに

これからの海洋化学を考えると、どの分野でもいわれるように若い優秀な人材を獲得し、養成していく必要がある。分析化学関係の基礎的な教育が薄まり、高度に自動化された機器分析を駆使することが要求されている。難易度の高い分析技術を武器に、海洋科学のあらゆる分野に挑戦することもひとつである。かなりの高度な専門知識がインターネットで得られる世の中で、なにが面白いと感じるか、それに取組むのにどんな技術、解析手法を使うのか、物知り少年達の知的好奇心を刺激することが必要かもしれない。私は縁があって、国際的なIGBP (International Geosphere-Biosphere Programme) のコアプロジェクトであるIGAC (International Global Atmospheric Chemistry) やSOLAS (Surface Ocean-Lower Atmosphere Study) の研究に携わって来た。若手研究者には国際的な視野と交流が、もっと必要となってくるはずである。IGBPに代わって、新しく始まろうとしている国際的な枠組みであるFuture Earth/ICSU (International Council for Science) などにも目を向け、世界に貢献していく大志を抱いて欲しい。

昨今、大型研究プロジェクトが、トップダウンの形で次々と立案され、実行されている。その目的は当初から明確であり、仮説を検証し、その成果はほぼ期待されるものである。しかし自然科学では、まだ我々の予想を超える現象や過程が、数多く見逃されているのではないだ

ろうか。自然界のいま起こっている現象を、物質循環の観点から捉えるには、標準化された観測測定手法を、地球規模で広く進めなければならない。同時に個々のプロセス基礎研究への取組みも不可欠である。わが国にも、これらを長期的に推し進める船舶や航空機、定点観測、観測機器開発などについて、省庁間を越えて総合施策する、例えば米国のNOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) のような政府機関が必要ではないだろうか。

最後にこの栄誉ある日本海洋学会賞に値すると評価された業績は、一緒に研究を進めてきた学生達、多くの共同研究者達 (Fig. 5) や、研究船の乗組員の皆様の協力、良き指導者の先生方の教唆なしではあり得なかった。特に化学を武器として、どう自然現象を解き明かしていくかを、ご指導下さった角皆静男北海道大学名誉教授、そして国際的な研究社会で、どうサイエンスと自分の存在感を高め、人生を楽しむかを自ら示し続けてくれているRobert A. Duce テキサス農工大学名誉教授に深く感謝する。また、私の許で航海を共にし、飲み明かし、博士課程を修了した笹川基樹、大木淳之、中村篤博、岩本洋子、Jung Jinyoung、そして私の研究室の研究員として時間を共有できた松本潔、皆川昌幸、宮田佳樹、成田祥、服部裕史、古谷浩志、近藤文義、これらの博士達にお礼を述べる。これからも大気と海洋間の物質循環を中心とした領域の充実と深化、地球科学における大気海洋科学の発展に尽力していきたい。



## References

- Betzer, P. R., K. L. Carder, R. A. Duce, J. T. Merrill, N. W. Tindale, M. Uematsu, D. K. Costello, R. W. Young, R. A. Feely, J. A. Breland, R. E. Bernstein, and A. M. Greco (1988): Long-range transport of giant mineral aerosol particles. *Nature*, **336**, 568–571.
- Duce, R. A., C. K. Unni, B. J. Ray, J. M. Prospero, and J. T. Merrill (1980): Long-range atmospheric transport of soil dust from Asia to the tropical North Pacific: temporal variability. *Science*, **209**, 1522–1524.
- Duce, R. A., J. LaRoche, K. Altieri, K. R. Arrigo, A. R. Baker, D. G. Capone, S. R. Cornell, F. Dentener, J. N. Galloway, R. S. Ganeshram, R. J. Geider, T. Jickells, M. M. Kuypers, R. Langlois, P. S. Liss, S. M. Liu, J. J. Middelburg, C. M. Moore, S. Nickovic, A. Oschlies, T. F. Pedersen, J. M. Prospero, R. Schlitzer, S. P. Seitzinger, L. L. Sorensen, M. Uematsu, O. Ulloa, M. Voss, B. Ward, and L. Zamora (2008): Impacts of Atmospheric Anthropogenic Nitrogen on the Open Ocean. *Science*, **320**, 893–897, DOI: 10.1126/science.1150369.
- Eguchi, K., I. Uno, K. Yumimoto, T. Takemura, T. Y. Nakajima, M. Uematsu, and A. Liu (2011): Modulation of Cloud Droplets and Radiation over the North Pacific by Sulfate Aerosol Erupted from Mount Kilauea. *SOLA*, **7**, 077–080, doi : 10.2151/sola.2011–020.
- Furutani, H., A. Meguro, H. Iguchi, and M. Uematsu (2010): Geographical distribution and sources of phosphorus in atmospheric aerosol over the North Pacific Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, **37**, L03805, doi : 10.1029/2009GL041367.
- Furutani, H., J. Jung, K. Miura, A. Takami, S. Kato, Y. Kajii, and M. Uematsu (2011): Single-Particle Chemical Characterization and Source Apportionment of Iron-Containing Atmospheric Aerosols in Asian Outflow. *J. Geophys. Res.*, **116**, D18204, doi : 10.1029/2011JD015867.
- Griessbaum, F., B. I. Moat, Y. Narita, M. J. Yelland, O. Klemm, and M. Uematsu (2010): Uncertainties in wind speed dependent CO<sub>2</sub> transfer velocities due to airflow distortion at anemometer sites on ships. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 5123–5133, doi : 10.5194/acp–10–5123–2010.
- Hashimoto, S., S. Toda, Y. Narita, M. K. Kurihara, Y. Akatsuka, H. Oda, T. Nagai, I. Nagao, S. Kato, I. Kudo, K. Suzuki, and M. Uematsu (2009): Production and air-sea flux of methyl halides in the western subarctic Pacific in relation to phytoplankton pigment concentrations during iron fertilization experiment (SEEDS II). *Deep-Sea Res. II*, **56**, 2928–2935.
- IPCC (2001): *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, edited by J. T. Houghton *et al.*, Cambridge Univ. Press, New York, 896 pp.
- Iwamoto, Y., Y. Narita, A. Tsuda, and M. Uematsu (2009): Single particle analysis of oceanic suspended matter during the SEEDS II iron fertilization experiment. *Mar. Chem.*, **113**, 212–218.
- Iwamoto, Y., K. Yumimoto, M. Toratani, A. Tsuda, K. Miura, I. Uno, and M. Uematsu (2011): Biogeochemical implications of increased mineral particle concentrations in surface waters of the northwestern North Pacific during an Asian dust event. *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L01604, doi : 10.1029/2010GL045906.
- Jung, J., H. Furutani, and M. Uematsu (2011): Atmospheric inorganic nitrogen in marine aerosol and precipitation and its deposition to the North and South Pacific Oceans. *J. Atmos. Chem.*, **68**, 157–181, I 10.1007/s10874–012–9218–5.
- Kameyama, S., H. Tanimoto, S. Inomata, U. Tsunogai, A. Ooki, Y. Yokouchi, S. Takeda, H. Obata, and M. Uematsu (2009): Equilibrator inlet-proton transfer reaction-mass spectrometry (EI-PTR-MS) for sensitive, high-resolution measurement of dimethyl sulfide dissolved in seawater. *Anal.Chem.*, **81**, 9021–9026, doi : 10.1021/ac901630h.
- Kameyama, S., H. Tanimoto, S. Inomata, U. Tsunogai, A. Ooki, Y. Yokouchi, S. Takeda, H. Obata, M. Uematsu (2010): High-resolution measurement of multiple volatile organic compounds dissolved in seawater using equilibrator inlet-proton transfer reaction-mass spectrometry (EI-PTR-MS). *Mar. Chem.*, **122**, 59–73.
- Kim, T.-W., K. Lee, R. G. Najjar, H.-D. Jeong, and H. J. Jeong (2011): Increasing N abundance in the Northwestern Pacific Ocean due to atmospheric nitrogen deposition. *Science*, **334**, 505–509, DOI: 10.1126/science.1206583.
- Kurihara, M. K., M. Kimura, Y. Iwamoto, Y. Narita, A. Ooki, Y.-J. Eum, A. Tsuda, K. Suzuki, Y. Tani, Y. Yokouchi, M. Uematsu, and S. Hashimoto (2010): Linkage between ocean and air in short-lived iodocarbons and oceanic distributions of biogenic trace gases in the western North Pacific. *Mar. Chem.*, **118**, 156–170.
- Matsumoto, K., and M. Uematsu (2009): Geographical distribution of particle number density in the accumulation mode range over the North Pacific Ocean. *Atmos. Res.*, **92**, 251–257.
- Merrill, J. T., M. Uematsu, and R. Bleck (1989): Meteorological analysis of long range transport of mineral aerosols over the North Pacific. *J. Geophys. Res.*, **94**, 8584–8598.
- Nagao, I., S. Hashimoto, S. Toda, Y. Narita, K. Suzuki, A. Tsuda, H. Saito, I. Kudo, K. Kato, Y. Kajii, and M. Uematsu (2009): Responses of seawater and atmospheric DMS to iron enrichment experiment (SEEDS-II) in the subarctic western North Pacific. *Deep-Sea Res. II*, **56**, 2899–2917.
- Nakamura, T., K. Matsumoto, and M. Uematsu (2005): Chemical properties of aerosols and transport from the Asian continent to the East China Sea in autumn. *Atmos. Environ.*, **39**, 1749–1758.
- Nakamura, T., H. Ogawa, D. M. Kumar, and M. Uematsu (2006): Contribution of water soluble organic nitrogen to total nitrogen in marine aerosols over the East China Sea and western North Pacific. *Atmos. Environ.*, **40**, 7259–7264.
- Ooki, A., K. Miura, and M. Uematsu (2003): The increase of biogenic sulfate and particle number over the high primary productive region in the northwestern North Pacific. *J. Oceanogr.*, **59**, 799–807.
- Ooki, A. and M. Uematsu (2005): Chemical interactions between mineral dust particles and acid gases during Asian dust events. *J. Geophys. Res.*, **110**, doi : 10.1029/2004JD004737.
- Ooki, A., M. Uematsu, and S. Noriki (2007): Size-resolved sulfate and ammonium measurements in marine boundary layer over the North and South Pacific. *Atmos. Environ.*, **41**, 81–91.
- Sasakawa, M. and M. Uematsu (2002): Chemical composition of aerosol, sea fog, and rainwater in the marine boundary layer of the

- northwestern North Pacific and its marginal seas. *J. Geophys. Res.* **107**, 4783, doi : 10.1029/2001JD001004.
- Sasakawa, M., A. Ooki, and M. Uematsu (2003): Aerosol size distribution during sea fog and its scavenge process of chemical substances over the northwestern North Pacific. *J. Geophys. Res.* **108**, doi : 10.1029/2002JD002329.
- Sasakawa, M. and M. Uematsu (2005): The acidifying process of sea fog over the northern North Pacific and its marginal seas. *Atmos. Environ.* **39**, 1357–1362.
- Senga, Y., M. Uematsu, M. Suemori, T. Kimoto, and S. Konashi (2000): Self Cruising Ocean Observation Platform (SCOOP). *Proceedings of Techno-Ocean2000 International Symposium*, **3**, 635–638.
- Tsuda, A., S. Takeda, H. Saito, J. Nishioka, I. Kudo, Y. Nojiri, K. Suzuki, M. Uematsu, M.L. Wells, D. Tsumune, T. Yoshimura, T. Aono, T. Aramaki, W.P. Cochlan, M. Hayakawa, K. Imai, T. Isada, Y. Iwamoto, W.K. Johnson, S. Kameyama, S. Kato, H. Kiyosawa, Y. Kondo, M. Lefebvre, R. Machida, I. Nagao, F. Nakagawa, T. Nakanishi, S. Nakatsuka, A. Narita, Y. Noiri, H. Obata, H. Ogawa, K. Oguma, T. Ono, T. Sakuragi, M. Sasakawa, M. Sato, A. Shimamoto, H. Takata, C.G. Trick, Y.Y. Watanabe, C.S. Wong, and N. Yoshie (2007): Evidence for the grazing hypothesis: Grazing reduces phytoplankton responses of the HNLC ecosystem to iron enrichment in the western subarctic Pacific (SEEDS II). *J. Oceanogr.*, **63**, 983–994.
- Uematsu, M., R. A. Duce, J. M. Prospero, L. Q. Chen, J. T. Merrill, and R. L. McDonald (1983): Transport of mineral aerosol from Asia over the North Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, **88**, 5343–5352.
- Uematsu, M., R. A. Duce, S. Nakaya, and S. Tsunogai (1985a): Short-term temporal variability of eolian particles in surface waters of the northwestern North Pacific. *J. Geophys. Res.*, **90**, 1167–1172.
- Uematsu, M., R. A. Duce, and J. M. Prospero (1985b): Deposition of atmospheric mineral particles in the North Pacific Ocean. *J. Atmos. Chem.*, **3**, 123–138.
- Uematsu, M., J. T. Merrill, T. L. Patterson, R. A. Duce, and J. M. Prospero (1988): Aerosol residence times and iodine gas/particle conversion over the North Pacific as determined from Chernobyl radioactivity. *Geochem. J.*, **22**, 157–163.
- Uematsu, M., R. A. Duce, and J. M. Prospero (1994): Atmosphere beryllium-7 concentrations over the Pacific Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 561–564.
- Uematsu, M. (1998): Distribution and characterization of Asian aerosols over the Western North Pacific region. *Global Environ. Res.*, **2**, 39–45.
- Uematsu, M., K. Kinoshita, and Y. Nojiri (2000): Scavenging of insoluble particles from the marine atmosphere over the sub-Arctic North Pacific. *J. Atmos. Chem.*, **35**, 151–164.
- Uematsu, M., A. Yoshikawa, H. Muraki, K. Arao, and I. Uno (2002): Transport of mineral and anthropogenic aerosols during a Kosa event over Asia. *J. Geophys. Res.*, **107**, 10.1029/2001JD000333.
- Uematsu, M., M. Toratani, M. Kajino, Y. Narita, Y. Senga, and T. Kimoto (2004): Enhancement of primary productivity in the western North Pacific caused by the eruption of the Miyake-jima Volcano. *Geophys. Res. Lett.*, **31**, doi : 10.1029/2003GL018790.
- 植松光夫 (2005) : 海洋大気エアロゾルの挙動と組成変動に関する地球化学的研究. 地球化学, **39**, 197–208.
- Uematsu, M., M. L. Wells, A. Tsuda, and H. Saito (2009): Introduction to Subarctic iron Enrichment for Ecosystem Dynamics Study II (SEEDS II). *Deep-Sea Research II*, **56**, 2731–2732.
- Uematsu, M., H. Hattori, T. Nakamura, Y. Narita, J. Jung, K. Matsumoto, and D. Kumar (2010): Atmospheric transport and deposition of anthropogenic substances from the Asia continent to the East China Sea. *Mar. Chem.*, **120**, 108–115, doi : 10.1016/j.marchem.2010.01.004.
- Uno, I., M. Uematsu, Y. Hara, Y. J. He, T. Ohara, A. Mori, T. Kamaya, K. Murano, Y. Sadanaga, and H. Bandow (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.
- Uno, I., K. Eguchi, K. Yumimoto, T. Takemura, A. Shimizu, M. Uematsu, Z. Liu, Z. Wang, Y. Hara, and N. Sugimoto (2009): Asian dust transported one full circuit around the globe. *Nature Geoscience*, **2**, 557–560, doi: 10.1038/NGEO583.
- Young, R., K. Carder, P. Betzer, D. Costello, R. Duce, J. Ditullio, N. Tindale, E. Laws, M. Uematsu, J. Merrill, and R. Feely (1991): Atmospheric iron inputs and primary productivity: phytoplankton responses in the North Pacific. *Global Biogeochem. Cycles*, **5**, 119–134.

# Study on the chemical substance transported to the ocean through the atmosphere

Mitsuo Uematsu<sup>†</sup>

## Abstract

The biogeochemical interactions and feedbacks between the ocean and the atmosphere affect and are affected by climate and environmental changes. I have been studying the variability of chemical composition and behavior of marine atmospheric aerosols from the biogeochemical point of view since the early 1980's. My contributions to our understanding of atmospheric aerosol processes are reviewed briefly here: Anthropogenic and mineral dust aerosols from the Asian continent are found to be transported over the large area of the North Pacific Ocean and to affect the global radiation budget and climate. Atmospheric transport of the aerosols, their chemical and physical interactions and scavenging processes within the marine boundary layer are explained in detail. The impact of atmospheric deposition flux over the sea surface is also found to strongly influence chemical and biological processes in water column and affect rates of marine biological activities. Marine aerosol properties could be altered by feedbacks from marine biological and physical processes. To achieve the quantitative understanding of the linkages among the ocean, the atmosphere and climate, it is necessary to collaborate with community of marine biology, physical oceanography, meteorology and modeling.

Finally, I am indeed honored to have been selected to receive the 2009 Oceanographic Society of Japan Award.

**Key words:** marine atmosphere, aerosol, mineral dust, anthropogenic materials,  
material exchange between atmosphere and ocean

(Corresponding author's e-mail address: uematsu@aori.u-tokyo.ac.jp)

(Received 4 January 2013; accepted 18 January 2013)

(Copyright by the Oceanographic Society of Japan, 2013)

---

<sup>†</sup> Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo  
5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8564, Japan