

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・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80124353

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：海洋－大気の窒素循環、窒素負荷量、硝酸塩、反応性窒素化合物、沖縄辺戸岬

1. 研究計画の概要

海洋大気中に存在する窒素酸化物は最終的にはガス状硝酸もしくは粒子状硝酸塩となり海洋に吸収され海洋の生物生産活動における N の供給源として生物活性も支配すると考えられている。本研究では、主に窒素酸化物種を周辺からの人為活動の影響の少ない海洋境界層で直接観測する。具体的には主に、総 NO_y やガス状硝酸・粒子状硝酸塩など NO_x 由来の物質やアンモニア・アンモニウム塩等を中心とする人為活動由来物質の長期連続観測を継続することにより、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、 NO_x やアンモニアからの最終生成物であるガス状硝酸および粒子状硝酸塩・アンモニウム塩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する。

2. 研究の進捗状況

現在までは主に、沖縄本島辺戸岬において、総 NO_y や硝酸・硝酸塩といった NO_x 由来の物質やアンモニア・アンモニウム塩等を中心とする人為活動由来の長期連続観測を行ない、そのデータについて解析を行ってきた。その結果、季節変化、気塊起源依存性、硝酸塩の輸送による変質について知見を得ることができた。アンモニアについては、本研究での観測が初めての試みであったが、A01-3 班とのアンモニア濃度測定相互比較により、装置の信頼性が確認され、確度精度の良いデータを得ることに成功した。

更には、平成 20 年春に沖縄辺戸岬で当該領域の関係者他と共同で W-PASS の集中観

測を行なった。これらの観測結果と A04-1 班（現：A01-3 班）の鶴野グループによる CMAQ 化学物質輸送モデルの計算結果と比較を行なった。 NO_y 濃度については観測とモデルとでおおむね良く一致したが、ガス状硝酸・粒子状硝酸塩はモデルがそれぞれ過大・過小評価する結果となった。これは、CMAQ モデルでは海塩粒子や黄砂とガス状硝酸との反応が組み込まれていないことにより、モデルにおける硝酸のガス－粒子分配比がガスのほうに偏っているためと考えられる。一方、アンモニウム塩、硫酸塩はモデルと観測が良く一致したという結果になった。観測結果から、アンモニウム塩はほとんど $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の形態で存在していると考えられ、中国大陸からのアンモニウム塩、アンモニア、 $\text{SO}_y (= \text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-})$ の排出および輸送過程については、CMAQ で非常に良く再現されていると考えられる。

また、海洋への窒素供給に関する知見の精度を向上させることを目的に、長崎県福江島においても、 NO_y 、硝酸の連続観測を平成 20 年 11 月より始動した。このデータ解析は現在進行中である。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

沖縄辺戸岬における連続観測の項目・システムの立上げは順次ここまで順調に進捗し、必要と思われる項目はほぼ立ち上がった。今後はこれらのデータの蓄積とそれを用いた解析に重点を移すことが可能となる。更には、福江島や能登半島における観測データも加わり、より広範囲の窒素流入量の評価に踏み込むことが可能になると期待できる。

4. 今後の研究の推進方策

本研究では、平成 20 年度までで得られた成果をもとに、沖縄本島辺戸岬において、総 NO_y、ガス硝酸、粒子状硝酸塩 NH₃、NH₄⁺ の連続観測を継続する。観測を継続することにより、アジア大陸からの輸送過程により窒素化合物の変調に関する議論の精度が向上することが期待される。更に、これとは別に、長崎県福江島、石川県能登半島においても総 NO_y や硝酸・硝酸塩の観測を行なう。これらおよび同時観測データ、A01-3 班の鶴野グループによる CMAQ 化学物質輸送モデルの計算結果等を用いて、東シナ海や日本海における窒素の流入量の推定を試みる。更には、平成 20 年度に導入した粒子質量分析器とその他の測器を用いて沖縄辺戸岬での粒子状物質測定強化を図り、粒子の密度および混合状態の解明を試みる。また、A02-1 班の角皆グループと共同で、硝酸塩中の酸素同位体の分析から大気光化学反応由来の硝酸・硝酸塩の寄与を明らかにすることも試みる。

なお、当初計画ではラジカル種の観測も視野に入れていた。しかしながら、大気から海洋への窒素フラックスの見積もりは SOLAS の重要テーマとして挙げられており、本特定領域においてもその重要性について議論が高まってきている。そのような状況もあり、本研究では窒素化合物の観測に焦点を絞ることとした。また、観測形態についても、当初は船舶観測も視野に入れていたが、地上連続観測のほうが窒素フラックスの見積もりの精度が向上すると考え、地上連続観測に焦点を絞る。その代わりに、先に述べたように観測地点をこれまでの 1 点から 3 点に増やす。

5. 代表的な研究成果

(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] (総計 25 件)

- ① Sadanaga, Y., Imabayashi, H., Suzue, T., Kimoto, H., Kimoto, T., Takenaka, N., Bandow, H.: Quantitative reduction of particulate nitrate to nitric oxide by a molybdenum catalyst: Implications for NO_y measurements in the marine boundary layer, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L21810, doi:10.1029/2008GL035557, 2008. (査読有)
- ② Takiguchi, Y., Takami, A., Sadanaga, Y., Y., Lun, X., Shimizu, A., Matsui, I., Sugimoto, N., Wang, W., Bandow, H., Hatakeyama, S.: Transport and transformation of total reactive nitrogen over the East China Sea, *J. Geophys. Res.*, 113, D10306, doi:10.1029/2007JD009462, 2008. (査読有)
- ③ Sadanaga, Y., Yuba, A., Kawakami, J., Takenaka, N., Yamamoto, M., Bandow, H.: A gaseous nitric acid analyzer for remote

atmosphere based on the scrubber difference / NO-ozone chemiluminescence method, *Anal. Sci.*, 24, 967-971, 2008. (査読有)

- ④ Uno, I., Uematsu, M., Hara, Y., He, Y. J., Ohara, T., Mori, A., Kamaya, T., Murano, K., Sadanaga, Y., Bandow, H.: 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, 2007. (査読有)
- ⑤ Takami, A., Miyoshi, T., Shiono, A., Kaneyasu, N., Kato, S., Kajii, Y., Hatakeyama, S.: Transport of anthropogenic aerosols from Asia and subsequent chemical transformation, *J. Geophys. Res.* 112, D22S31, doi:10.1029/2006JD008120, 2007. (査読有)

[学会発表] (総計 69 件)

- ① Y. Sadanaga, 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.
- ② A. Yuba, 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.
- ③ Y. Sadanaga, Observations of NO_y 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.
- ④ A. Takami, Long-term monitoring of ambient aerosol at Okinawa, Japan, International Aerosol Symposium 2008, 2008年8月21日, 金沢.
- ⑤ A. Takami, Transformation of Aerosol Chemical Composition during Transport over East China Sea, IUGG, 2007年7月3日, Perugia, Italy.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

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