

令和元年6月18日現在

機関番号：80122

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2015～2018

課題番号：15K00529

研究課題名（和文）反応性窒素の測定法開発と全国の沈着量評価

研究課題名（英文）Development of measurement method and deposition estimation for atmospheric reactive nitrogen in Japan

研究代表者

野口 泉（NOGUCHI, Izumi）

地方独立行政法人北海道立総合研究機構・環境・地質研究本部環境科学研究センター・課長

研究者番号：10442617

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,700,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、大気中反応性窒素の測定法開発および広域観測網用の調査手法の確立が目的である。測定法開発では、PM2.5インパクタを用いることで、アンモニウム塩とアンモニアの分別効果が高くなること、硝酸塩を粒径別に濃度測定することで沈着量評価の精度が高くなることを明らかにした。さらに既存の拡散デニューダ法に比べて、PM2.5インパクタを用いたフィルターパック法にパッシブ法によるNH₃濃度測定法を併用することで、安価で同様の精度となることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で確立された調査方法は、研究論文など以外でも全国の地方自治体の環境研究所で実施されている第6次全国酸性雨調査（全国環境研協議会の酸性雨・広域大気汚染調査研究部会が主催）などで用いられるなど、既に活用されている。

研究成果の概要（英文）：The present study aimed to develop a measurement method and to establish the survey method for the nationwide monitoring network. With the proposed PM2.5 impactor, the division efficiency of the fractional measurement of ammonium and ammonia increased. Moreover, the application of this PM2.5 impactor enhanced the accuracy of dry deposition estimation by dividing the particle diameter of nitrate. In addition, compared with conventional annual denuder methods, the concatenate measurement method of the filter-pack with the PM2.5 impactor and the passive sampler of NH₃, which is more cost-effective, has the same grade accuracy.

研究分野：大気化学

キーワード：反応性窒素 アンモニア アンモニウム塩 硝酸塩 窒素沈着 乾性沈着 沈着速度推計プログラム

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

中国などでは肥料や化石燃料の使用量が増大し、その風下となる日本では生態系への窒素過剰負荷の影響が懸念される状況にある。中でも生物に利用されやすい反応性窒素成分で、かつ評価が難しいガスや粒子の直接沈着による窒素負荷の評価が課題となっており、広域測定網に適した大気中濃度調査方法を確立し、かつ簡便で精度の高い沈着量評価を行うことが求められている。

2. 研究の目的

本申請研究では、先行研究により開発された大気中窒素酸化物由来の酸化態窒素に加え、粒子成分がガス化しやすく分別が難しいアンモニウム塩とアンモニアの還元態窒素の分別測定法を開発し、これらと前述の酸化態窒素を合わせた反応性窒素の測定法を確立し、全国自治体の環境研究所(全国環境研協議会)の協力により全国調査を実施する。さらに先行研究で開発されてきた乾性沈着速度推計プログラムを用い、全国の反応性窒素沈着量とその組成について評価を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

1) 還元態窒素の分別方法開発 (H27~28年度)

- ・ねらい: 分別が難しいアンモニウム塩とアンモニアの還元態窒素の分別測定法の開発。
- ・試験項目等: フィルターバック法(FP法)におけるインパクトを用いた効果の検証及び評価。

2) 反応性窒素成分濃度の広域観測 (H27~29年度)

- ・ねらい: 先行研究で開発された観測方法を用い、全国の反応性窒素濃度測定及び沈着量評価を行う。
- ・試験項目等: 先行研究で開発されたFP法にさらにインパクトを加えた観測を行い、自動測定装置やパッシブサンプラー(PS)によるデータも加え、全国の反応性窒素濃度測定及び沈着量評価を実施する。

3) 乾性沈着速度推計プログラムによる反応性窒素成分沈着量評価 (H27~29年度)

- ・ねらい: 硝酸塩などについて、インパクトを用いたFP法で得られる粒径別濃度から、地域別、土地利用別の粒径の違いを明らかにするとともに、沈着量評価におけるその影響を検討する。
- ・試験項目等: 乾性沈着速度推計プログラムによる硝酸塩粒径の違いなどの沈着量に対する影響を解析する。

4. 研究成果

- ・札幌では2週間毎、利尻では月毎に、FP法におけるインパクト付き(IFP)とインパクトなし(OFP)の並行試験を行い、ガス及び粒子成分の測定結果を比較した。その結果、OFPは粗大粒子が風で吹き付けられたことにより、過大評価となる傾向が見られた。また特にOFPの濃度で、アンモニウム塩(NH_4^+)は過小、アンモニア(NH_3)は過大評価(特に夏)となった。なお、この原因は特定できなかった。
- ・ NH_4^+ 及び NH_3 濃度を拡散デューダ(AD)法と同様の高い精度で、安価に測定するには $\text{NH}_4^++\text{NH}_3$ はIFP法で測定し、 NH_3 はIFP又はパッシブサンプラー法(PS法)の濃度の低い値を用い、その差を NH_4^+ とする方法が最適であると評価した。
- ・また窒素沈着で重要な硝酸塩(NO_3^-)のより精度の高い沈着量評価のためには、粒径別濃度が得られるIFP法を用いるべきと評価した。

< 具体的データ >

図1に札幌の結果について例示する。

風の強い利尻の測定結果などから、海塩及び土壌由来の粗大粒子で、OFPでより濃度が高く、風で吹き付けられることにより、過大評価となる傾向が見られた。

札幌及び利尻とも、二酸化硫黄(SO_2)、硫酸塩(SO_4^{2-})及び硝酸ガス(HNO_3) + NO_3^- 、 $\text{NH}_3+\text{NH}_4^+$ ではIFPとOFP法及びAD法との差異は認められなかった(図1-a、b参照)。しかし、夏に、特にOFPで NH_4^+ は過小評価、 NH_3 は過大評価となった。この原因として、微小粒子(NH_4) $_2\text{SO}_4$ と粗大粒子 CaCO_3 の共存などによる NH_3 の再飛散が考えられたが、特定はできなかった。

AD法との比較により、冬はIFP法で分別評価できるが、夏はIFP法でも NH_4^+ 濃度の過小、 NH_3 濃度の過大評価の傾向は無視できなかった(図1-c)。一方、夏はPS法で NH_3 濃度の精度が高かったが、冬には微小粒子成分の影響を受け(図1-d)、 NH_3 濃度が過大評価となる場合が認められたことから、 $\text{NH}_4^++\text{NH}_3$ はIFP法で測定、 NH_3 はIFP法とPS法の濃度の低い値を採用し、その差を NH_4^+ とする方法が、AD法と同様の高い精度で、安価に測定する方法であると考えられた。

また全国各地の調査結果から、乾性沈着では、特に森林地域で粒径の違いによって沈着量評価が大きく変化し、特に地域及び季節によって粒径分布が変化する NO_3^- の影響が大きかった。このため、より精度の高い沈着量評価には、粒径別濃度が得られるIFP法を採用すべきと判断された。

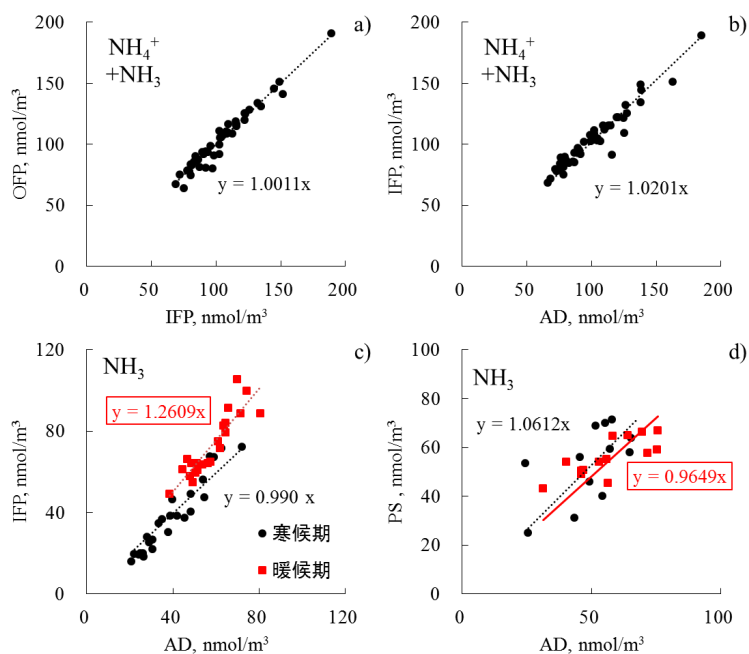


図 1. アンモニア態窒素の分別採取状況(札幌の場合)

a. b: AD 法と OFP 及び IFP 法の比較

c. d: AD 法と IFP 法及び AD 法と PS 法の寒候期と暖候期の比較

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

- 1) 野口泉, 山口高志, 北海道の大気中反応性酸化態窒素の挙動. 環境科学研究センター所報, **5**, 25-30, 2015.
- 2) 野口泉, 山口高志, 北海道におけるアンモニウム塩の挙動. 大気環境学会誌, **54**, 印刷中, 2019 (7月に発行予定).

〔学会発表〕(計 23 件)

- 1) 野口泉, 山口高志, 松本利恵, 岩崎綾, 森下一行, 堀江洋佑, 竹友優, 竹中規訓, 大気中酸化態窒素成分濃度および沈着量の評価. 第 56 回大気環境学会, 2015 年 9 月 15-17 日, 新宿区.
- 2) 野口泉, 山口高志, 鈴木啓明, 松本利恵, 岩崎綾, 竹中規訓, 大気中 HONO の生成について. 第 56 回大気環境学会, 2015 年 9 月 15-17 日, 新宿区.
- 3) 野口泉, 山口高志, 乾性沈着調査におけるフィルターパック法のインパクトの効果. 第 56 回大気環境学会, 2015 年 9 月 15-17 日, 新宿区.
- 4) 松本利恵, 遠藤朋美, 福田裕, 野口泉, 松田和秀 全国酸性雨調査(92) - 乾性沈着(沈着量の推計) -. 第 56 回大気環境学会, 2015 年 9 月 15-17 日, 新宿区.
- 5) 野口泉, 山口高志, 鈴木啓明, 大気中窒素成分の挙動とそれに対する温暖化の影響. 第 63 回気候情報連絡会, 平成 27 年 7 月 3 日, 札幌.
- 6) 野口泉, 山口高志, 鈴木啓明, アンモニウム塩および硝酸塩の測定と沈着量評価について. 第 22 回大気環境学会北海道東北支部集会, 2015 年 11 月 6 日, 福島市.
- 7) I. Noguchi, T. Yamaguchi, R. Matsumoto, A. Iwasaki, N. Takenaka, Dry deposition of reactive nitrogen oxides in Japan. The 9th International Conference of Acid

Deposition, 19 - 23 Oct. 2015, Rochester NY, USA.

- 8) 野口 泉, 山口高志, 鈴木啓明, 反応性窒素エアロゾルについて. 第 3 回大気エアロゾルシンポジウム, 平成 27 年 11 月 26 日, 江別.
- 9) 木戸 瑞佳, 濱村 研吾, 野口 泉, 家合 浩明, 松本 利恵, 向井 人史, 藍川 昌秀, 全国酸性雨調査(94) フィルターパック法による粒子・ガス成分濃度およびインパクト効果 その1-. 第 57 回大気環境学会, 2016 年 9 月 7-9 日, 札幌.
- 10) 野口 泉, 山口 高志, 鈴木 啓明, 木戸 瑞佳, 松本 利恵, フィルターパック法におけるインパクト効果 -その2-. 第 57 回大気環境学会, 2016 年 9 月 7-9 日, 札幌.
- 11) 松本 利恵, 木戸 瑞佳, 野口 泉 フィルターパック法におけるインパクト効果 -その3-. 第 57 回大気環境学会, 2016 年 9 月 7-9 日, 札幌.
- 12) 松本 利恵, 野口 泉, 山添 良太, 甲斐 勇, 浜野 晃, 吉田 芙美香, 村野 健太郎, 松田 和秀 全国酸性雨調査(96) - 乾性沈着(沈着量の推計) -. 第 57 回大気環境学会, 2016 年 9 月 7-9 日, 札幌.
- 13) 野口 泉, 山口 高志, 鈴木 啓明, 松本 利恵, 岩崎 綾, 竹中 規訓 HONO を含む大気中窒素酸化物由来成分の挙動. 第 57 回大気環境学会, 2016 年 9 月 7-9 日, 札幌.
- 14) 野口 泉, 山口 高志, 鈴木 啓明, 木戸 瑞佳, 松本 利恵, フィルターパック法におけるインパクト効果 -その4-. 第 58 回大気環境学会, 2017 年 9 月 6-8 日, 神戸.
- 15) 野口 泉, 山口 高志, 鈴木 啓明, 松本 利恵, 岩崎 綾, 竹中 規訓 HONO を含む大気中窒素酸化物由来成分の挙動. 第 58 回大気環境学会, 2017 年 9 月 6-8 日, 神戸.
- 16) 木戸 瑞佳, 濱村 研吾, 野口 泉, 松本 利恵, 藤田 大介, 家合 浩明, 遠藤 朋美, 岩崎 綾, 上野 智子, 藍川 昌秀, 向井 人史 全国酸性雨調査(98) フィルターパック法による粒子・ガス成分濃度およびインパクト効果 その5 . 第 58 回大気環境学会, 2017 年 9 月 6-8 日, 神戸.
- 17) 松本 利恵, 野口 泉, 木戸 瑞佳, 家合 浩明, 遠藤 朋美, 上野 智子, 堀江 洋祐, 岩崎 綾 フィルターパック法による粒子・ガス成分濃度およびインパクト効果 その6 . 第 58 回大気環境学会, 2017 年 9 月 6-8 日, 神戸.
- 18) 野口泉, 大気から得るもの-窒素循環-. 第 25 回衛生工学シンポジウム, 2017 年 11 月 10 日, 札幌.
- 19) 野口 泉, 窒素沈着研究 -地方自治体だからできたこと-. 大気環境学会関東支部酸性雨部会 第 30 回酸性雨東京講演会, 2018 年 2 月 19 日, 府中.
- 20) 野口 泉, 山口 高志, 木戸 瑞佳, 松本 利恵, インパクト付きフィルターパック法による反応性窒素成分の乾性沈着量評価. 第 59 回大気環境学会, 2018 年 9 月 12-14 日, 福岡.
- 21) 木戸瑞佳, 袖野新, 野口泉, 松本利恵, 家合浩明, 遠藤朋美, 岩崎綾, 上野智子, フィルターパック法におけるインパクト効果 -その7-. 第 59 回大気環境学会, 2018 年 9 月 12-14 日, 福岡.
- 22) 野口 泉, 山口 高志, 北海道におけるアンモニウム塩の挙動. 第 25 回大気環境学会北海道東北支部学術集会, 2018 年 10 月 12 日, 札幌.
- 23) 野口 泉, 山口 高志, 北海道におけるアンモニウム塩の挙動について. 第 6 回大気エアロゾルシンポジウム, 2018 年 11 月 9 日, 札幌.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

http://www.hro.or.jp/list/environmental/research/ies/katsudo/taiki/kaken_noguchi3/main.htm

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：木戸 瑞佳

ローマ字氏名：Mizuka KIDO

所属研究機関名：富山県環境科学センター

部局名：

職名：副主幹研究員

研究者番号（8桁）：00393091

(2) 研究分担者

氏名：松本 利恵

ローマ字氏名：Rie MATSUMOTO

所属研究機関名：埼玉県環境科学国際センター

部局名：研究推進室

職名：副室長

研究者番号（8桁）：60415370

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。