#### 科学研究費助成專業 研究成果報告書



平成 27 年 5 月 1 9 日現在

機関番号: 80122 研究種目: 基盤研究(C) 研究期間: 2012~2014

課題番号: 24510023

研究課題名(和文)新手法を用いた亜硝酸を含む大気中酸化態窒素成分濃度および沈着量の評価

研究課題名(英文) Evaluation of concentration and deposition of nitrogen oxide components including HONO by new filter-pack method.

#### 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・その他部局等・その他

研究者番号:10442617

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文):全国9地点における大気中窒素酸化物由来の反応性酸化態窒素(NO2,NO,HNO3,HONOおよびNO3-)の濃度・沈着量レベルとその挙動を明らかにした。多くの地点でNO2およびNO濃度が高かったが、利尻および辺戸岬ではNO2に次いでNO3-濃度が高く、NO3-の全酸化態窒素沈着量に対する寄与も大きかった。沈着速度が大きいHNO3は濃度は低かったが沈着量の寄与では大きかった。HONOは、遠隔地では濃度が低かったが、都市部などで濃度は高く、札幌および加須の冬はNO2に次ぐの沈着量寄与を示した。また利尻では気温が高かった年の夏にHONOの濃度の上昇がみられた。

研究成果の概要(英文): The concentrations and dry depositions of reactive nitrogen oxides (NO2, NO, HNO3, HONO, and NO3-) in the atmosphere were measured at eight sites in Japan, from Hokkaido to Okinawa. The rural and urban sites showed high concentrations of NO2 and NO, while the coastal remote sites showed high NO2 and NO3- concentrations in addition to high NO2 and NO levels. Therefore, the contribution of NO3- to the deposition of all reactive nitrogen oxides (NOy) was significant at the coastal remote sites, Rishiri and Cape Hedo. HNO3 showed a large contribution to NOy deposition, although its concentration was low at most of the sites. Moreover, the concentration of HONO was higher at the urban and suburban sites. The contribution of HONO in NOy deposition was secondly large after NO2 at Sapporo and Kazo in winter though its contributions were small in many case. Furthermore, the concentration of HONO increased under high temperature conditions during summer at Rishiri.

研究分野: 大気化学

キーワード: 酸化態窒素 亜硝酸 窒素沈着 乾性沈着速度 沈着速度推計プログラム

## 1.研究開始当初の背景

生物に使われやすい反応性窒素である酸化態窒素,その原因の窒素酸化物の排出量は,中国などアジアでは大幅な増加が予測され,風下側の日本を含む近隣諸国では,窒素沈着が増加すると予想されていた。これにより、植物生産の増加や森林による二酸化炭素吸収の促進がもたらされること,また一方では過剰な窒素は植生の構成種の減少を引き起こすことが知られており、窒素循環の実態把握やその変化による影響評価は喫緊の課題であった。

## 2. 研究の目的

本研究は,大気中酸化態窒素成分である二酸化窒素,一酸化窒素,硝酸,亜硝酸および硝酸塩の大気中の組成および挙動を明らかにし,その沈着量評価を行うことを目的とした。

## 3.研究の方法

大気中窒素酸化物由来成分(NOy)調査は 亜硝酸の捕集ができる新手法のフィルター パック法を用いて実施する。また,沈着量評 価のための乾性沈着速度推計プログラムの 開発も本研究で行う。

1) NOy 成分の連続広域観測(H24~26年度) NOy 濃度の長期観測による各成分濃度 レベルの把握と成分間の関連の解析。

#### 試験項目等

自動測定装置による  $NO_2$  および NO , フィルターパック法によるガス ( $HNO_3$  , HONO ) , 粒子 ( $NO_3$  ) 濃度の測定。

#### 担当機関

道総研 環境科学研究センターおよび 埼玉県環境科学国際センター。愛知県 環境調査センター,兵庫県環境研究セ ンター,和歌山県環境衛生研究センター,沖縄県衛生環境研究所が協力(高 知県環境研究所,札幌市衛生研究所も 一部参画)。

2) NOy 成分の挙動解析(H24~26年度) 短期観測による大気中窒素酸化物由来 成分(NOy)濃度の日内濃度変動把握に よる挙動解析。

#### 試験項目等

フィルターパック法を 12 個用意し,2時間おきのサイクルで2週間連続でガス(硝酸,亜硝酸),粒子(硝酸塩)濃度を捕集測定。H24-25年度は利尻および辺戸岬(沖縄),H25-26年度は海南(和歌山)および加須(埼玉)。

## 担当

道総研 環境科学研究センターおよび 埼玉県環境科学国際センター。和歌山 県環境衛生研究センターおよび沖縄県 衛生環境研究所が協力。

3) 乾性沈着速度推計プログラムの開発と 沈着量評価(H26年度)

NOy 濃度の沈着量評価と乾性沈着速度推計プログラムの開発

#### 試験項目等

インファレンシャル法の改良と沈着量 評価のための乾性沈着速度算出。

## 担当機関

道総研 環境科学研究センター ,大阪府立大および埼玉県環境科学国際センター。

## 4. 研究成果

全国9地点における大気中窒素酸化物由来成分(二酸化窒素,一酸化窒素,硝酸,亜硝酸および硝酸塩)の濃度とその挙動を調査するとともに、インファレンシャル法による沈着速度算出プログラムを用い、沈着量評価を行った。なお、遠隔地は森林、都市部は市街地、田園部は農地として沈着量評価を行った。

酸化態窒素 (NOv)の濃度では、多くの地点 で二酸化窒素(NOゥ) および一酸化窒素濃度 (NO)が高いが、利尻および辺戸岬ではNO2 および硝酸塩(NO3)濃度が高かった。その ため、利尻および辺戸岬では NO3 の酸化態室 素沈着量に対する寄与が大きかった。沈着量 の寄与では濃度は低かったが沈着速度が大 きい硝酸(HNO3)が大きい場合が多かった。 加須は農地で沈着量評価を行ったため、植物 による取り込みの影響で NO2 の沈着量寄与 がより大きかった。なお、NO は濃度が高い 場合が多かったが、沈着速度は小さく、沈着 量は少なかった。亜硝酸 (HONO)は、遠隔 地では濃度が低かったが、都市部およびその 近郊で濃度は高く、北日本の札幌では HNO3 より高い濃度を、他の地域でも HNO3 と同程 度の濃度を示した。沈着量は少ない場合が多 かったが、札幌および加須の冬の沈着量では、 それぞれ 36%および 13%と NO2に次ぐ寄与 を示した。また、特に報告事例の少ない HONO について、より詳細に検討した結果、 HONO と NO2 濃度の変動は連動する地点が 多く, NO。と水の各種表面での反応による間 接発生の寄与が大きいと考えられた。また、 辺戸岬では HONO と NO2濃度の比が全般に 大きく、間接発生の反応がより進んでいるこ と、同じくバックグランドである北海道の利 尻では、HONO/NO。比は気温および絶対湿度 との相関が高く、気象条件が反応の律速とな っていると考えられた。そのため利尻では気 温が高かった年の夏は反応が進み、HONO の 濃度の上昇がみられた。また気温の上昇は、 沈着速度の大きい HNO3 濃度の上昇も招くこ とから、気象条件による制限が大きい北日本 などでは、温暖化による大気組成の変化とそ れに伴う窒素循環への影響が大きくなると 考えられた。

#### 5 . 主な発表論文等

(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](計 1件)

1) 岩崎綾, <u>野口泉</u>, 友寄喜貴, 嘉手納恒, 渡口輝 (2014) 沖縄県における亜硝酸ガ スの挙動. 沖縄県衛生環境研究所報, 48, 46-49.

### [学会発表](計15件)

- 1) 野口泉 (2014) フィルターパック法における流量,採取期間およびろ紙の種類などの影響. 大気環境学会酸性雨分科会関西支部情報交換会,2014年7月27日,名古屋市.
- 2) <u>野口泉</u>,<u>山口高志</u>,岩崎 綾,<u>松本利恵</u>, 堀尾拓矢,堀江洋佑,浴口智行,桑尾房 子,惠花孝昭,松田和秀(2012)わが国 における大気中亜硝酸ガスの挙動(3). 第 53 回大気環境学会講演要旨集, 452. 2012 年 9 月 12-14 日,横浜.
- 3) <u>野口泉,山口高志,松本利恵</u>,岩崎 綾, 玉森洋樹,堀江洋佑,浴口智行,富田健 介,惠花孝昭,<u>竹中規訓</u>(2013)わが国 における大気中HONOの挙動(4).第54 回大気環境学会講演要旨集,342,2013 年9月18-20日,新潟.
- 4) 野口泉,山口高志,秋山雅行,岩崎 綾(2013)フィルターパック法を用いた大気中ガス・エアロゾル成分濃度の日内変動(3).第54回大気環境学会講演要旨集、255,2013年9月18-20日,新潟.
- 5) <u>野口泉,山口高志</u>,高木健太郎,三枝信子,松田和秀(2013)大気汚染物質の日内濃度変動とそのモデルによる乾性沈着量評価の試み.第54回大気環境学会講演要旨集,457,2013年9月18-20日,新潟.
- 6) 野口泉,山口高志,高木健太郎,深澤達矢,松田和秀(2013)北日本冷温帯カラマツ林における乾性沈着.第20回大気環境学会北海道東北支部集会,14-15,11月8日,盛岡.
- 7) <u>野口泉,山口高志</u>,鈴木啓明(2013)森 林への粒子成分の沈着.第1回大気エア ロゾルシンポジウム-黄砂から PM<sub>2.5</sub>ま で-,2013年11月15日,江別市,酪農学 園大学.
- 8) 野口泉,山口高志,高木健太郎,三枝信子(2014)天塩における大気中物質の日内濃度変動とその乾性沈着量評価への影響.森林生態系炭素収支・リモセンに係わるモニタリング研究集会2月19-20日,つくば.
- 9) <u>野口泉,山口高志</u>,秋山雅行,<u>松本利恵</u>, 竹友優(2014)フィルターパック法を用 いた大気中ガス・エアロゾル成分濃度の 日内変動(4).第 55 回大気環境学会講 演要旨集,507,9月 17-19日,松山.
- 10) <u>野口泉,山口高志,松本 利恵</u>,岩崎 綾, 玉森洋樹,堀江洋佑,竹友優,坂本武大, 惠花孝昭,<u>竹中規訓</u>(2014)わが国にお ける大気中 HONO の挙動(5). 第 55 回 大気環境学会講演要旨集,507,9月 17-19

日,松山.

- 11) 野口泉 (2014) 北日本冷温帯カラマツ林 における硫黄酸化物,アンモニアおよび 窒素酸化物由来成分の湿性および乾性 沈着. 低温科学研究所 平成 26 年度共同 利用研究集会「寒冷圏陸域植生と大気微 粒子・気体成分を介した大気環境の相互 作用」, 2014 年 12 月 4-5 日, 札幌市.
- 12) <u>野口泉</u>,<u>山口高志</u>,高木健太郎,三枝信子(2014)天塩サイトにおける窒素沈着量評価の精度向上に関する研究.森林生態系炭素収支・リモセンに係わるモニタリング研究集会,2月19-20日,つくば.
- 13) <u>松本利恵</u> (2014) 乾性沈着速度推計ファイルについて. 大気環境学会酸性雨分科会 関西支部情報交換会, 2012 年 7 月 27日. 名古屋市.
- 14) 惠花孝昭,<u>野口泉</u>,武口裕,宮本啓二,宮田淳 (2014) 札幌市における亜硝酸ガスの挙動.第 54 回大気環境学会,2013年9月18-20日,新潟市.
- 15) 岩崎綾,<u>野口泉</u>,友寄喜貴,嘉手納恒, 渡口輝 (2014) 沖縄辺戸岬における亜 硝酸ガスの挙動.第54回大気環境学会, 2013年9月18-20日,新潟市.

[図書](計0件)

〔産業財産権〕 出願状況(計0件)

名称: 発明者: 権利類: 種号: 番号: 田内外の別:

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

タイトル

科学研究費補助金基盤研究(C) 新手法 を用いた亜硝酸を含む大気中酸化態窒素 成分濃度および沈着量の評価

URL

http://www.ies.hro.or.jp/katsudo/taik
i/kaken\_noguchi/main.htm

備考

現在、HP 移行作業中、今後は以下のアドレスになる予定。

http://www.hro.or.jp/list/environment al/research/ies/katsudo/taiki/kaken\_n oguchi/main.htm

## 6. 研究組織

# (1)研究代表者

野口 泉(NOGUCHI IZUMI) (地独)北海道立総合研究機構・環境科学 研究センター・環境保全部・研究主幹

研究者番号:10442617

## (2)研究分担者 なし

### (3)連携研究者

山口 高志 (YAMAGUCHI TAKASHI)

(地独)北海道立総合研究機構・環境科学研究センター・環境保全部・研究主任研究者番号:90462316

松本 利恵 (MATSUMOTO RIE) 埼玉県環境科学国際センター・大気担当部 長

研究者番号:60415370

竹中 規訓 (TAKENAKA NORIMICHI) 大阪府立大学・工学研究科・教授 研究者番号:70236488