研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		我が国への窒素化合物の長距離輸送とその陸域及び海洋環境への影響							
研究テーマ (欧文) AZ		Long range transport of atmospheric nitrogen species and its impacts on terrestrial and marine environments							
研 究氏	ከタカナ cc	姓) マツモト	名) キヨシ	研究期間 в	2008 ~ 2009 年				
代表名 者	漢字 CB	松 本	潔	報告年度 YR	2010 年				
	□-マ字 cz	Matsumoto	Kiyoshi	研究機関名	山梨大学				
研究代表者 cp 所属機関・職名		山梨大学·准教授							

概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)

東アジア地域の経済発展により、大気汚染物質、特に硝酸やアンモニアといった窒素化合物の排出量と我が国への輸送量の増加が懸念されている。これらの窒素化合物は陸域や海域へ沈着し、酸性沈着物として或いは栄養塩の過剰供給として、生態系に様々な問題を引き起こす。これら成分の沈着は、そのガス/粒子相分配と、粒子中での粒径分布に大きく依存するが、これらの支配因子に関する理解は不十分である。一方、大気中には硝酸やアンモニアなどの無機態窒素種と同様の環境影響を有する成分として有機態窒素化合物の存在が指摘されているが、その測定例は非常に乏しく、環境影響を議論するに十分なデータは得られていない。本研究の目的は、大気中の硝酸及びアンモニアのガス/粒子相分配と、粒子中での粒径分布の支配因子の解明、及び、過去に測定例の乏しい有機態窒素化合物の測定方法を確立しその濃度レベルを把握することである。

本研究では大気エアロゾル及びガス試料を、山梨大学甲府キャンパス(都市大気)及び山梨県環境科学研究所実験林(森林大気)において、2009年冬季から1週間間隔で1年間継続的に採取した。得られた試料は、水抽出ーイオンクロマト法により、硝酸塩、アンモニウム塩、及び関連成分の定量を行なった。本観測で得られた結果を、国設利尻酸性雨測定局近傍及び国設佐渡関岬酸性雨測定局(海洋大気)で採取された試料の分析結果とあわせて解析した結果、以下の知見が得られた。

大気中の硝酸成分(ガス状硝酸及び粒子状硝酸塩)は、多くの先行研究で報告されているように気温に依存したガス/粒子相分配を示し、高温下でガス/粒子比が高くなる。しかし本研究では、ガス/粒子比が高い大気では更に海塩粒子の存在が重要であり、高濃度で存在する海塩粒子がガス/粒子比を下げることが確認された。一方、ガス/粒子比が低い大気ではアンモニアガスの存在が重要であり、微小粒子中硫酸塩を中和して余りあるアンモニアガスの存在により、ガス/粒子比が低下することも確認された。粒子状硝酸塩の粒径分布に関しても、やはり多くの先行研究と同様に気温への依存性が確認され、高温下で粒径が大きくなる。しかしここでも海塩粒子の存在が重要であり、高濃度で存在する海塩粒子の影響で硝酸塩の粒径が粗大側にシフトすることが確認された。このように、硝酸成分の相分配や粒径分布は、これまでに考えられてきた気温依存性だけでなく、海塩粒子やアンモニアガスの影響を強く受けていることが明らかになった。

アンモニア成分(ガス状アンモニア及び粒子状アンモニウム塩)のガス/粒子相分配は、大気中の粒子状硫酸塩と硝酸成分の濃度和に依存しており、この濃度和が高い条件下でガス/粒子比が下がる傾向を示した。一方、粒子状アンモニウム塩の粒径分布は微小粒子優位のままほとんど変化しなかった。

このように、硝酸成分やアンモニア成分の沈着量の評価に重要なガス/粒子相分配や粒径分布の支配因子として、従来より注目されてきた気温だけではなく、海塩粒子、アンモニアガス、粒子状硫酸塩、硝酸成分の濃度や割合が重要であることが明らかになった。今後、これらの因子を考慮した沈着量の評価が必要である。

エアロゾル中の有機態窒素に関しては、高温触媒燃焼法により全窒素濃度を測定後、上記の方法で得た無機態窒素種濃度を差し引くことにより定量が可能であることが確認された。本研究より、都市大気エアロゾル中で無機態窒素種のおよそ25%程度に達することも確認され、大気由来窒素化合物の環境影響の議論において重要な化合物種であることが明らかになった。

キーワード FA 硝酸				アンモニア		ガス/粒子相分配				岩	粒径分布					
(以下は記入しない	(以下は記入しないでください。)															
助成財団コード TA						研究課題番	号 AA									
研究機関番号 AC						シート番号				<u>.</u>						

発表文献(この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。)								
雑誌	論文標題GB							
	著者名 GA		雑誌名 GC					
	ページ GF	~	発行年 GE				巻号 GD	
雑	論文標題GB							
誌	著者名 GA		雑誌名 GC					
	ページ GF	~	発行年 GE				巻号 GD	
雑	論文標題GB							
誌	著者名 GA		雑誌名 GC					
	ページ GF	~	発行年 GE				巻号 GD	
図	著者名 на							
書	書名 HC							
	出版者 нв		発行年 HD				総ページ HE	
図書	著者名 HA							
	書名 HC				_			
	出版者 нв		発行年 HD				総ページ HE	

欧文概要 EZ

Atmospheric deposition of fixed nitrogen species (particulate NO₃, NH₄⁺, gaseous HNO₃, and NH₃) has significant impacts on terrestrial and marine ecosystems. Recent increases of emissions of these nitrogen species from anthropogenic sources such as fossil fuel burning and agricultural activities would enhance the impacts of these species on the ecosystems. Phase partitioning of these nitrogen species between gas and aerosols, and their size distribution in the particulate phase are important factors when discussing their dry deposition fluxes and wet scavenging efficiencies. In order to clarify the factors controlling the partitioning of these nitrogen species among gas phase, fine, and coarse mode particles, year-round observations of these species and other particulate major compounds were conducted at urban, forested, and marine sites, in Japan. In addition, recent investigations have found the importance of organic nitrogen compounds in the fixed nitrogen pool and their influences on the ecosystems. The present study also aimed to establish an analytical method of the organic nitrogen species in the ambient atmosphere and clarify their atmospheric concentrations.

Aerosol/gas partitioning of total NO_3 species (gaseous HNO_3 and particulate NO_3) was largely changed corresponding to ambient temperature, the concentration of sea-salt particles, and the ratios of nss- $SO_4^{2^-}/NH_4^+$ in fine particles. Lower temperature and excess NH_4^+ for neutralization of nss- $SO_4^{2^-}$ accelerate the formation of NO_3^- in fine mode aerosols. In addition, the reaction of HNO_3 gas from the dissociation of fine mode NH_4NO_3 in higher temperatures with sea-salt particles also affect the aerosol/gas partitioning through the formation of coarse mode aerosols. Aerosol/gas partitioning of the total NH_4 species (gaseous NH_3 and particulate NH_4^+) was related with the sum of the total NO_3 species and fine mode nss- $SO_4^{2^-}$. Concentrations of acid species that can potentially react with NH_3 gas are a factor controlling the aerosol/gas partitioning of the total NH_4 species.

Measurements of particulate organic nitrogen were achieved by subtracting the measurements of inorganic nitrogen species (NO₃ and NH₄⁺) from those of the total nitrogen measured with a combustion method. Concentrations of organic nitrogen in the particulate phase were occupied approximately 20% of total nitrogen in the particulate phase, which means that the organic nitrogen species would be significantly important in discussing atmospheric deposition of the fixed nitrogen species.