

## 都市域における窒素酸化物の酸化・除去

## Oxidation and removal of nitrogen oxides in Tokyo

# 福田 真人 [1]; 近藤 豊 [2]; 宮崎 雄三 [3]; 森野 悠 [4]; 竹川 暢之 [5]; 宮川 拓真 [1]; 金谷 有剛 [6]; 谷本 浩志 [7]

# Masato Fukuda[1]; Yutaka Kondo[2]; Yuzo Miyazaki[3]; Yu Morino[4]; Nobuyuki Takegawa[5]; Takuma Miyakawa[1]; Yugo Kanaya[6]; Hiroshi Tanimoto[7]

[1] 東大・理・地球惑星; [2] 東大先端研; [3] 東大・理・地球惑星物理; [4] 東大・先端研; [5] 東大・先端研; [6] 海洋研究開発機構・地球環境フロンティア; [7] 環境研・大気

[1] Earth and Planetary Sci., Univ. of Tokyo; [2] RCAST, Univ. of Tokyo; [3] Earth and Planetary Physics, Univ. of Tokyo; [4] RCAST, Univ. Tokyo; [5] RCAST, Univ of Tokyo; [6] FRCGC/JAMSTEC; [7] NIES/AED

<http://noysun1.atmos.rcast.u-tokyo.ac.jp/>

反応性窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) は放射収支や大気質に関わる対流圏オゾン (O<sub>3</sub>) やエアロゾル化学の鍵となる重要な化学成分である。大気中の NO<sub>x</sub> は光化学的に酸化され、HNO<sub>3</sub>、PAN といった NO<sub>x</sub> のリザーバーとなり、最終的には HNO<sub>3</sub> となって数時間から 1 日で大気中から除去される。これらの窒素酸化物の総量は総反応性窒素酸化物 (NO<sub>y</sub> = NO<sub>x</sub> + NO<sub>3</sub> + 2(N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) + HNO<sub>3</sub> + Peroxyacyl nitrates(PANs) + Organic nitrates + Particulate nitrate(NO<sub>3</sub>-)) と定義される。地表面への沈着による HNO<sub>3</sub> の大気中からの除去は NO<sub>y</sub> の除去・酸性物質の沈着という観点から重要である。都市域は NO<sub>y</sub> の大きな発生源であるが、都市大気中の NO<sub>x</sub> の酸化・NO<sub>y</sub> の除去過程は未だ理解が不十分である。特に東京都心部では、総量および個々の窒素酸化物の高精度・高時間分解能の連続測定が行われた例はない。

2003-2004 年 7-8 月 (夏季) および 2004 年 1-2 月 (冬季) に東京都心部 (目黒区駒場) において集中地上観測キャンペーンが行われた。連続測定された NO<sub>y</sub>、NO<sub>x</sub>、HNO<sub>3</sub>、PANs、NO<sub>3</sub>-のデータから NO<sub>y</sub> 構成成分比の日変動および季節変動の支配要因を明らかにした。光化学活性度の高い日の日中では NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> の低下によって NO<sub>x</sub> の酸化が確認されたが、発生源近傍において測定が行われたため夏季 (NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> = 0.63-0.87)・冬季 (NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> = 0.83-0.95) とともに NO<sub>x</sub> が NO<sub>y</sub> の主成分であった。また NO<sub>x</sub> の酸化生成物 (NO<sub>z</sub>) の分配は季節によって異なり、夏季は HNO<sub>3</sub>(HNO<sub>3</sub>/NO<sub>z</sub> ~ 0.35)、冬季は NO<sub>3</sub>-(NO<sub>3</sub>-/NO<sub>z</sub> ~ 0.42) が NO<sub>z</sub> の主成分であった。この季節変化は全硝酸 (TN = HNO<sub>3</sub> + NO<sub>3</sub>-) の気相 (HNO<sub>3</sub>)・エアロゾル相 (NO<sub>3</sub>-) の分配が気温の低下によって、エアロゾル相に傾くことによって生じたと考えられる。

NO<sub>y</sub> の消失を定量化するために、NO<sub>y</sub> と類似した発生源を持つ CO を用いて NO<sub>y</sub> の消失率の推定を行った。その結果、NO<sub>y</sub> の消失率は夏季に最大 (24%)、冬季に最小 (4%) であった。夏季から冬季にかけての NO<sub>y</sub> の消失率の季節変動は、OH 濃度の低下によって HNO<sub>3</sub> の生成量が減少する効果、および TN の分配がエアロゾル相に傾くことによって沈着速度が低下する効果の両方によって引き起こされていると考えられる。