

## 東アジア域における窒素系化合物の輸送と変質

## Transport and transformation of nitrogen compounds in East Asia

# 高見 昭憲 [1]; 滝口 善洋 [2]; 定永 靖宗 [3]; 坂東 博 [3]; 畠山 史郎 [4]

# Akinori Takami[1]; Yoshihiro Takiguchi[2]; Yasuhiro Sadanaga[3]; Hiroshi Bandow[3]; Shiro Hatakeyama[4]

[1] 国環研; [2] 農環研; [3] 阪府大院・工・応化; [4] 国立環境研

[1] NIES; [2] NIAES; [3] Appl. Chem., Osaka Pref. Univ.; [4] NIES

近年、中国をはじめとする東アジア地域では急速な経済発展に伴い大気汚染物質の放出が増加しており、季節風の風下となる日本では越境大気汚染問題が危惧されている。窒素酸化物は、はじめ一酸化窒素 (NO) や二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) として大気中に放出されるが、大気中に滞留し輸送される過程で硝酸 (HNO<sub>3</sub>)、硝酸アンモニウム (NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>)、硝酸ナトリウム (NaNO<sub>3</sub>) などに変質する。反応性の窒素系化合物に関する越境の寄与を評価するためには、そうした二次生成物質を定量的に調べる必要がある。そこで本研究では、2006年1月より国立環境研究所 沖縄辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおいて、窒素酸化物の二次生成物質である大気エアロゾルに含まれる硝酸塩 (PM<sub>10</sub>NO<sub>3</sub>-と表記する) の観測を開始した。同ステーションで同時に観測している NO<sub>x</sub>\*, NO<sub>y</sub>、HNO<sub>3</sub> のデータをあわせて解析し、窒素系化合物の季節変動や輸送中の変質過程、越境大気汚染の影響等を検討した。

観測および解析の結果、全反応性窒素酸化物 (NO<sub>y</sub>)、ガス状窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>\*), 粒子状窒素酸化物 (PM<sub>10</sub>NO<sub>3</sub>-) の濃度はいずれも春季や秋季に高く夏季に低い季節変動を示した。気塊の履歴を NOAA HYSPLIT 4 で計算した結果、春季や秋季には中国大陸や日本韓国などから気塊が輸送されているのに対し、夏季には主に太平洋から気塊が輸送されてきた。季節変動の大きな要因は主に気塊の履歴に依存していることが分かった。

NO<sub>y</sub> に対する気相中および粒子相中の窒素系化合物の分配比を計算した。夏季は気相中に存在する窒素系化合物が NO<sub>y</sub> の大半を占めていた。これは温度上昇に伴い NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> が粒子相から気相中に蒸発し NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub> となるからだと考えられる。

中国からの気塊を対象に粒子中の NO<sub>3</sub>-の輸送中の変質過程を調べたところ、中国では硝酸塩は主として微小粒子中に存在していたのに対し、沖縄辺戸岬では主に粗大粒子中 (PM<sub>10</sub>NO<sub>3</sub>-) に存在することが分かった。東シナ海域の北部から南部に輸送される間に NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> は温度上昇に伴い気化し NH<sub>3</sub>、HNO<sub>3</sub> となる一方、土壌粒子や海塩粒子と混合し HNO<sub>3</sub> は粗大粒子に付着した結果、辺戸岬では主に粗大粒子中に NO<sub>3</sub>-が存在するものと考えられる。