

雷から発生する窒素酸化物の通年地上観測

研究代表者：和田龍一 認定 NPO 法人富士山測候所を活用する会（理事）

共同研究者：三浦和彦（認定 NPO 法人富士山測候所を活用する会・理事長／兼富士山環境研究センター・シニアリサーチフェロー），畠山史郎（同・理事／兼富士山環境研究センター・センター長），鴨川仁（同・事務局長），土器屋由紀子（同・理事／兼同センター・部長），加藤俊吾（同・理事），小山朋子（同センター・研究員）

1. 研究の背景と目的

窒素酸化物 (NO_x) はオゾンを生成する要因の一つであり，人体や植物の生長に悪影響をあたえ，光化学スモッグ，酸性雨，さらには地球温暖化といった環境問題を引き起こす。 NO_x の発生源の一つとして雷が挙げられる。昔，雷が多い年は豊作になるといわれた。これは農作物の栄養となる硝酸が，雷により発生した NO_x （Lightning NO_x ，以下 LNO_x ）の酸化により生成したためである。一方， LNO_x の発生量の時間変動がメタンといった温室効果気体の濃度に変化をもたらし，地球環境に悪影響を及ぼしている可能性がある。しかしながら， LNO_x の発生量はいまだ不確かさが大きい。 LNO_x の発生量とその要因の解明は，地球温暖化をはじめとした環境問題への対策に必要である。

雷は高い高度にて発生することから，従来 LNO_x は航空機により観測されてきた。しかし航空機観測は，大きな費用がかかることから実施頻度が少なく，また観測時に雷が必ずしも発生するとは限らないことから LNO_x の観測データは非常に限られている。近年人工衛星による LNO_x の観測がなされ，その結果から LNO_x の発生量が推定されている。衛星観測は広域的な観測が可能である利点があるものの，精度

の面で LNO_x の発生量にはいまだ大きな不確定さがある。 LNO_x の衛星データの不確定さが大きい原因の一つとして、 LNO_x の観測データが不足していることが挙げられる。これは LNO_x を地上にて計測することが難しかったためである。地上付近では、化石燃料の燃焼により生成する NO_x が多く発生するため、 LNO_x と区別することが難しい。そこで、もし通年に渡る地上観測にて、 LNO_x を計測する手法を確立することができれば、観測データを積み重ねることで、 LNO_x の発生量の不確かさを低減することが可能となる。

LNO_x は通常航空機により観測され、地上観測により計測した研究例はほとんどない。これは地上観測では人為起源の化石燃料の燃焼により発生した NO_x と雷により発生した LNO_x を区別することが難しいためである。地上観測にて LNO_x を計測する方法として、山岳での観測を挙げるができる。高い山岳は地表面の大気の影響を受けにくい自由対流圏に位置し、化石燃料の燃焼に由来する NO_x の影響を無視することができるためである。富士山は独立峰であり、またその山頂は自由対流圏にあることから LNO_x の観測に適した場所であった。申請者らは 2017 年に富士山頂で LNO_x の観測を行い、1つの雷あたりに発生する LNO_x 量の推定に成功した (Wada et al., 2019)。しかしながら富士山頂には電源および観測を行うための施設 (富士山特別地域気象観測所) があるものの、夏季のみ使用可能であり、年間を通して多くの雷を観測することが難しかった。また計測装置のメンテナンスが複雑であり、長期間の観測に向いていなかった。本研究計画では、複雑なメンテナンスの必要がない LNO_x 計測装置を開発し、年間を通して LNO_x を観測する手法を確立する。年間を通して観測を行うことで多くの LNO_x データを蓄積することができるようになる。本研究では、富士山中腹における太郎坊観測所 (図 1) に観測装置を設置し、窒素酸化物の通年観測を実施した。

2. 研究方法

LNO_xの地上観測を行うには、雷から直接生成される一酸化窒素（NO）の他に、観測地までの輸送中にNOの酸化により生成する二酸化窒素（NO₂）と総反応性窒素酸化物（NO_y）を計測する必要がある。NOとNO_yの計測には申請者らが開発した化学発光法の原理を用いた分析装置を用いた（和田ら，2018）。NO₂の計測には新たに開発した装置を用いた。一般に市販のNO₂計測は加熱したモリブデン触媒を用いることでNO₂をNOに還元し、還元したNOを化学発光法により定量するが、モリブデン触媒はNO₂だけでなく、硝酸といった大気中に存在する他の窒素酸化物も還元してNOを生成するため（化学干渉と呼ばれる）市販の装置では精確なNO₂濃度の測定は難しい。特にNO₂濃度が1ppb未満と低い自由対流圏においては化学干渉のない精確な測定が必要である。本研究では、NO₂固有の吸収波長（375 nm）の光を用いて、選択的にNO₂をNOに光分解し、化学干渉のない精確なNO₂濃度の計測を行った（図2）。合わせてCO₂濃度の観測を富士山環境研究センター（御殿場市）にて実施した。



図1. 観測地：太郎坊観測所（NPO法人富士山測候所を活用する会）

富士山中腹に位置する太郎坊観測サイト（富士山南東麓太郎坊）においてLNO_x計測の実証試験を行った。太郎坊観測サイトは標高 1300 m に位置し、自由対流圏と大気境界層の間を行き来している。実証試験では、開発した窒素酸化物計測装置のほかに、一酸化窒素（CO），オゾン（O₃）の観測装置を設置し、これら大気微量成分の計測を同時に行った。これは雷によってNO_xは生成されるがCOは生成されないことを利用し、中国大陸など遠方から運ばれた化石燃料由来のNO_xと区別するためである。

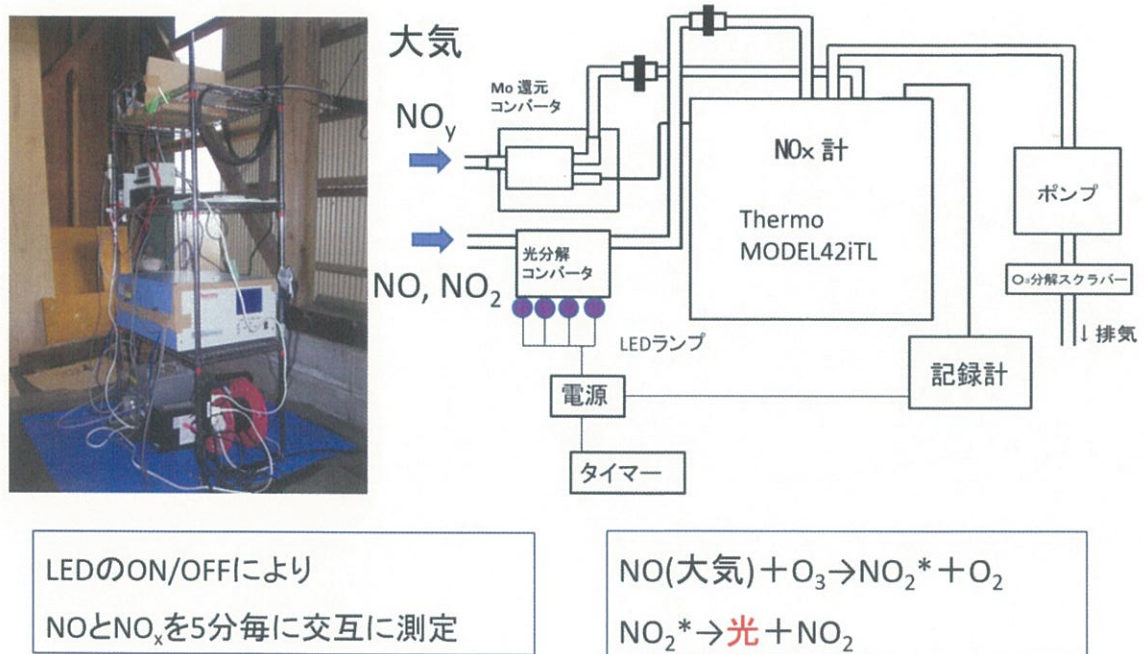


図 2. 観測セットアップ。新たに開発したコンパクトな分析装置を用いた。1台のNO_x計により、NO、NO₂、NO_y、を時間分解能 10 分にて同時に計測することが可能である。

3. 結果と考察

富士山太郎坊における NO, NO₂, NO_y, NO_z と風向の通年および拡大した 10 日間の観測結果を図 3 に示す。NO 濃度は昼高く、夜低い日変化を示した。市街地から風が吹いているときにこれら濃度が上昇した。NO_y 濃度は最大で 20ppb と高い値であった。NO_z 濃度は最大 7ppb, 年間平均 1.1ppb であった。年間を通して, NO, NO₂, NO_y, NO_z の計測に成功した。

2020 年 8 月 19 日～9 月 16 日の NO₂ 濃度を図 4 に示す。2017 年富士山頂における夏季の窒素酸化物濃度は 0.11 ± 0.10 ppb であった。太郎坊で観測された窒素酸化物濃度はほとんどの時間帯にて富士山頂で観測された濃度より高いが 9 月 7 日～9 月 8 日は、富士山頂と同程度の濃度を示した。これは太郎坊観測所が自由対流圏に位置している時間帯がある可能性を示したと考えられる。

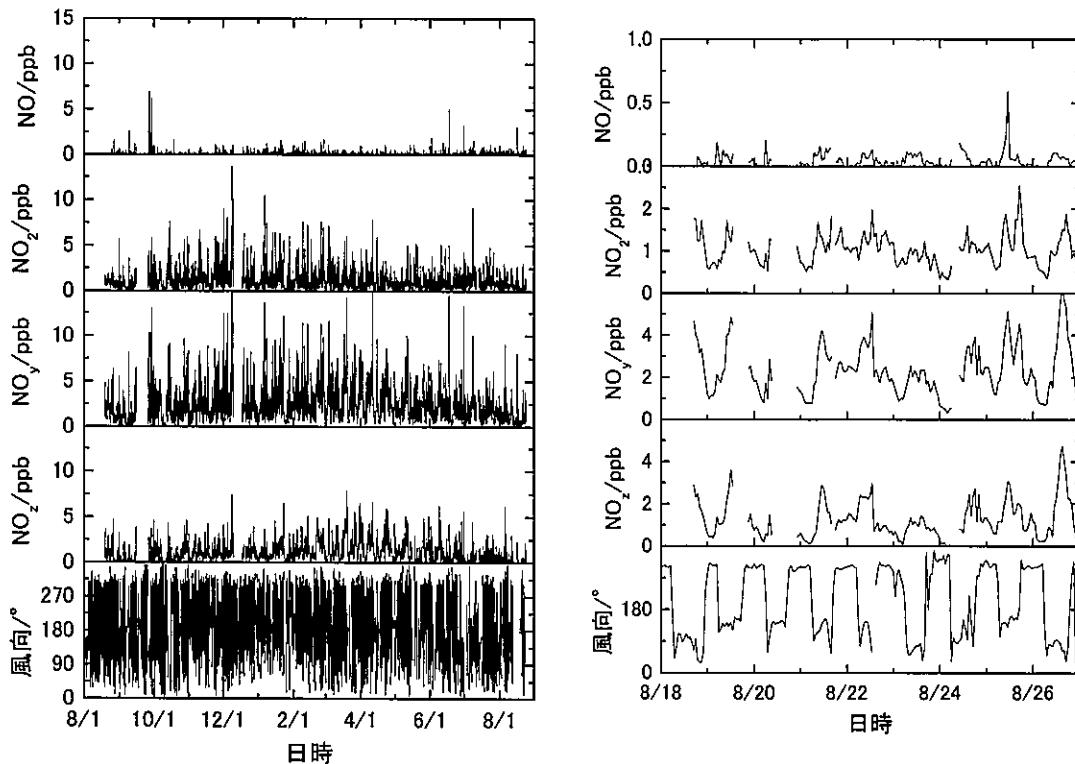


図 3. 太郎坊観測における NO, NO₂, NO_y, NO_z の観測結果。

左) 年間の観測結果, 右) 10 日間の拡大した観測結果。

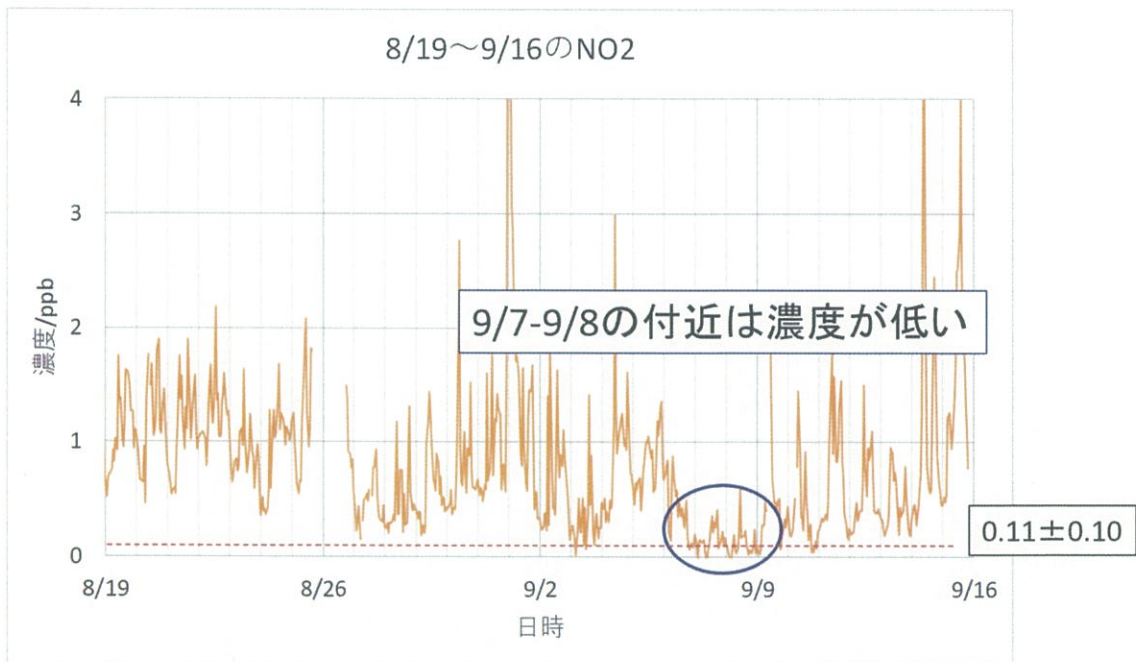


図 4. 太郎坊で観測した NO₂ 濃度 拡大図. 図中の赤の点線は富士山頂にて 2017 年に観測された濃度を示す.

4. まとめ

市販の分析装置を改良し、1 台の NO_x 計を用いて、メンテナンスの必要の少ない NO, NO₂, NO_y, NO_z を計測する分析装置を開発し、開発した装置を用いて富士山太郎坊観測所にて通年観測の実証試験に成功した. 富士山頂に比べ太郎坊は窒素酸化物濃度が高いものの、富士山頂と同程度に低い濃度を示す期間があり、自由対流圏に位置している時間帯がある可能性があることがわかった. LNO_x は大気成分の寿命を決定する重要なヒドロキシルラジカルの濃度に影響を及ぼすことがモデル計算により示されており、LNO_x の発生量の時間変動が、メタンといった温室効果気体の濃度変動を通じて地球環境に大きな影響を及ぼしている可能性がある. しかしながら LNO_x の発生量はいまだに不確かさが大きく、その結果地球規模のモデル計算に含まれる不確かさも大きくなる. 年間を通した連続的な地上観測により

LNO_xの観測データを積み重ね、LNO_x発生量の不確かさを減らすことで、モデル計算の予測精度を向上させ、地球環境問題の有効な対策に繋がることを期待できる。今後、今回取得した年間の観測データを用いて、雷の発生時刻及び、CO と O₃の濃度データを合わせて LNO_xの解析を進める。

5. 参考文献

1. R. Wada, Y. Sadanaga, S. Kato, N. Katsumi, H. Okochi, Y. Iwamoto, K. Miura, H. Kobayashi, M. Kamogawa, J. Matsumoto, S. Yonemura, Y. Matsumi, M. Kajino, S. Hatakeyama, 2019. Ground-based observation of lightning-induced nitrogen oxides at a mountaintop in free troposphere, *Journal of Atmospheric Chemistry*, doi:10.1007/s10874-019-09391-4. **76**, 133-150.
2. 和田龍一, 定永靖宗, 加藤俊吾, 勝見尚也, 大河内博, 岩本洋子, 三浦和彦, 小林拓, 鴨川仁, 松本淳, 米村正一郎, 松見豊, 梶野瑞王, 畠山史郎, 2018. NO_x酸化物質(NO_z)計測手法の開発と山岳地域における実大気への応用, *分析化学*, **67**, 333-340.

6. 成果発表

和田龍一, 定永靖宗, 加藤俊吾, 大河内博, 森樹大, 三浦和彦, 小林拓, 鴨川仁 皆已幸也, 松見豊, 梶野瑞王, 松本淳, 米村正一郎, 速水洋, 土器屋由紀子, 畠山史郎 富士山南東麓森林域における NO_x酸化物質(NO_z)の特徴の解明. 第 62 回大気環境学会年会, 2021 年 9 月 15 日-17 日, オンライン開催.