

産業革命から現在までの大気硝酸量の変遷を北極アイスコアから復元

～人為窒素酸化物の排出量と大気中の硝酸の存在形態が北極の大気硝酸量を制御することを解明～

ポイント

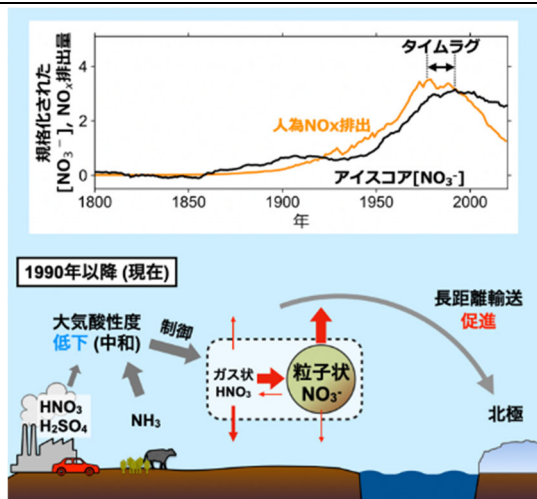
- ・グリーンランドのアイスコアから、産業革命から現在までの大気硝酸量の変遷を高精度に復元。
- ・人為窒素酸化物(NO_x)の排出量とアイスコアの硝酸塩量の変化にタイムラグがあることが判明。
- ・タイムラグが大気酸性度に依存した大気硝酸の長距離輸送のされやすさの変化に起因することを解明。

概要

北海道大学低温科学研究所の飯塚芳徳准教授、的場澄人助教、金沢大学の石野咲子助教、中国南京大学の服部祥平准教授、名古屋大学大学院環境学研究科の藤田耕史教授らの研究グループは、グリーンランドのアイスコア^{*1}に記録された産業革命から現在までの大気硝酸^{*2}濃度と、人為窒素酸化物(NO_x)^{*3}の排出量の変化との間にタイムラグがあり、そのタイムラグが大気酸性度に依存した大気硝酸の長距離輸送のされやすさの変化に起因することを解明しました。

北極のアイスコアは大気質や気候に影響を及ぼす大気硝酸量を過去から現在まで連続して記録しています。これまで分析されたグリーンランド中央部のアイスコアでは、日射による硝酸の光分解損失の影響が大きく、不確実な記録しか提示できていませんでした。研究グループは、グリーンランド氷床南東部ドームで採取したアイスコアが硝酸塩の復元に適していることを見出し、産業革命から現在まで（1800年から2020年にかけて）の連続した硝酸塩量を復元しました。220年間のアイスコアの硝酸塩量は NO_x の排出量の変動と概ね一致していました。しかし詳細に解析すると、アイスコアの硝酸塩濃度のピーク期の出現は NO_x 排出汚染のピーク期（1970年代）よりも遅く、また NO_x 排出制限が導入された1990年代以降にも高濃度を維持するというように、 NO_x 排出量とアイスコア硝酸塩濃度の変化にタイムラグがあることが分かりました。全球大気化学輸送モデルを用いた解析により、1970年代以降の大気酸性度の中和に応じて、硝酸の形態が沈着しやすいガス状から輸送されやすい粒子状へと部分的に変化したことで、長距離輸送に有利になり、この観測されたタイムラグが生じていることをつきとめました。本研究成果は、今後の大気質の緩和策の策定や気候変動予測の精度向上に貢献することが期待されます。

なお、本研究成果は、日本時間2025年5月19日（月）公開のNature Communications誌に掲載されました。



アイスコアから復元した硝酸塩量（黒）と周辺国の人為窒素酸化物(NO_x)排出量（オレンジ）の1800-2020年の経年変化（1800-1850年を基準に規格化した値）。タイムラグは、大気酸性度に応じた大気硝酸の輸送されやすさによって説明される。

【背景】

大気中に浮遊する微粒子（エアロゾル）は、その一部が直径 2.5 μm 以下の微粒子（PM2.5）として人体に悪影響を及ぼします。また、エアロゾルは雲の核としても作用し、エアロゾルの増加により雲の光反射率が高まることで、日射を遮り地球表面を寒冷化させることが知られています。このようにエアロゾルは 20 世紀における地球と地域の気候変動に大きな役割を果たしてきました。特に硫酸・硝酸エアロゾルは大気エアロゾルの主成分であるだけでなく、人類が排出してきた SO_x （硫黄酸化物）や NO_x （窒素酸化物）が大気中で酸化されることで生成するため、今後の大気環境政策を講じる上でもその動態把握は重要です。

産業革命以後から 1980 年代にかけて、北半球では人間活動（化石燃料の使用や農業など）の拡大によって SO_x や NO_x の排出量は劇的に増加しました。特に、1970-80 年代は世界的に大気汚染が問題となり、日本国内でも公害問題などが顕在化した時代でした。（この時代、気温が低下したのも、これらのエアロゾルによる影響があったと言われています。）その後、先進国では大気浄化法などにより SO_x や NO_x の排出規制が強化され、近年では先進国の SO_x や NO_x の排出量は着実に減少しています。

最近の大気化学-エアロゾル輸送モデルシミュレーションでは、 SO_x 排出量や硫酸エアロゾルについては、精度よく過去の変動を復元できつつあります。他方で、 NO_x 排出量や硝酸エアロゾルについては、大気中での反応が複雑なため、その正確な増加量や削減効果がよく分かっておらず、将来の気候予測における不確実性の要因となっています。将来予測の不確実性を減らす有力な取り組みの一つに、過去から現在までの大気硝酸（ガス状硝酸： HNO_3 + エアロゾル粒子状硝酸塩： NO_3^- ）の変遷を解読し、その変動メカニズムを理解することがあります。

寒冷圏の雪氷は、年々のガスやエアロゾルを含む降雪の堆積を通じて大気硝酸が硝酸塩（ NO_3^- ）として保存されている貴重な自然のタイムカプセルです。このような評価をするために、氷床を垂直下向きに掘削してアイスコアと呼ばれる氷柱試料が採取されています。アイスコアは表面付近が現在に近い降雪で、深い部分がより過去に降った雪からなっており、過去から現在まで連続に時系列情報（古環境情報）を得ることができます。なかでも北極グリーンランド氷床は欧州や北米などの人為起源 NO_x 排出地域と近いことから、人為起源エアロゾル変遷の評価に最適な地域です。

【本研究の目的】

アイスコアから大気硝酸の古環境情報を抽出するのには大きな問題がありました。硝酸塩（ NO_3^- ）は揮発しやすく、長期間の日射で分解してしまい降雪時の情報が損失してしまうことです。そこで、本研究では北極グリーンランド氷床にいくつかある頂上（ドーム）のうちで、最も雪が多く降る南東部に着目して、アイスコア掘削を行いました。たくさん雪が降るということは、次々と新しい雪が堆積するので、積雪表面に雪が置かれている時間が短いということになります。これにより、雪に含まれている物質が揮発や日射による再配分の影響を受ける時間が短くなり、各成分の損失が抑制されます。さらに、1 年間に降り積もる雪が多いとアイスコアの 1 年あたりの長さが長いということになり、精度の良い年代決定を行える可能性が高くなります。

このグリーンランド南東ドームで掘削されたアイスコアに含まれる、産業革命から現在まで（1800 年から 2020 年にかけて）の連続した硝酸塩（ NO_3^- ）濃度の変遷を復元しました。得られた結果を各国からの NO_x の排出量や大気化学エアロゾル輸送モデルの計算結果と比較し、北極大気まで運ばれグリーンランドに堆積した大気硝酸の動態を追跡しました。

【研究手法】

グリーンランド南東ドームで 2021 年に 250 m のアイスコア掘削に成功しました。2021 年はコロナ禍で海外出張が困難な状況でしたが、北海道大学及び現地グリーンランドの方々の協力により、5 名

がフィールド調査に参加して掘削しました。掘削が終わって、日本にアイスコアが輸入されてから、同大学研究所の低温実験室内でグリーンランド南東ドームアイスコアの解析をはじめました。アイスコアに含まれる硝酸塩濃度は、低温室内でアイスコアを 5cm 長に切り出し、汚れている試料の表面をセラミックナイフで除去し、その汚れを除去した氷を融解し、融解水をイオンクロマトグラフィーという装置を用いて分析します（正確には「硝酸塩量」ではなくて「硝酸イオン濃度」ですが、本稿では硝酸塩量と表記します）。この南東ドーム域は極めて降雪量が多いため、5 cm の試料が約 2 週間という高い時間分解能をもちます。北海道大学の大学院生をはじめとするグリーンランド南東ドームアイスコアプロジェクトのメンバーが交代で低温室での切削作業や分析に従事し、深さ 250 m まで約 5,000 試料の硝酸塩量を約 2 年の時間をかけて分析しました。

加えて、GEOS-Chem という既存の全球大気化学エアロゾル輸送モデルを用いて歴史シミュレーションを行い、アイスコアから復元された硝酸塩量の再現性を検証しました。この計算は金沢大学環日本海域環境研究センターで行われました。

【研究成果】

1800 年から 2020 年にかけてのアイスコア硝酸塩量の変遷を図 1a（黒）に示します。硝酸塩量は 1850 年代から増加し、1970-2000 年にかけて最大に達しました。2000 年代以降、硝酸塩量はわずかに減少しましたが、2010-2020 年にかけては高い値を維持しています。人為的 NO_x 排出量（図 1b オレンジ）も同様に 1850 年代から増加しており、1970 年代に極大となりました。過去 220 年間のアイスコアの硝酸塩量の概ねの変動は人為的 NO_x 排出量で説明できます。

しかしより詳細に見ると、1920 年から 1970 年までのアイスコアの硝酸塩量の増加は、 NO_x 排出量の増加よりも緩やかです（図 1b）。逆に、1990 年代以降のアイスコアの硝酸塩量の減少は、 NO_x 排出量の大幅な減少よりも緩やかでした。このように、 NO_x 排出量とアイスコアの硝酸塩量にタイムラグがあることが初めて明らかになりました。

硝酸塩は、大気中ではガス状 (HNO_3) と粒子状の硝酸塩 (NO_3^-) の二つの形態で存在します。ガス-粒子の比率は大気の酸性度で決まりますが、ガス状の硝酸と粒子状の硝酸塩はそれぞれ大気中に存在できる寿命と沈着速度が異なるため、その割合の変化は長距離輸送される硝酸塩量に影響を与えます。この知見を基に、図 1b で見られたアイスコア硝酸塩量と NO_x 排出量の差分（タイムラグの代替指標）を、大気の酸性度を示す「アンモニアガス指標」*4（図 1c）と比較したところ、両者には有意な相関があることが明らかになりました（図 2）。この結果は、 NO_x と硝酸塩量のタイムラグが、大気酸性度に起因する大気硝酸（ガス + 粒子）の長距離輸送の変化によって説明されることを示唆しています。また、1800-2020 年の大気酸性度の変遷と、 NO_x の変化に対するアイスコア硝酸塩量の応答のタイムラグは、モデルシミュレーションでも概ね再現されることが確認されました（図 1b 緑）。モデル内のプロセスを詳細に追跡した結果、1970 年代以降の大気酸性度の低下（中和）に応じて、大気硝酸の形態が、沈着しやすいガス状から輸送されやすい粒子状へと部分的に変化したことで、長距離輸送に有利になり、北極域の大気硝酸が高濃度に維持されていることをつぎとめました（図 3）。

【今後への期待】

まず、北極アイスコアから、信頼できる産業革命から現在までの硝酸塩量を復元できたことが重要な成果です。このデータは公開されており、研究者から小中学生の教材まで幅広く使っていただけます。これまで硫酸エアロゾルについては信頼できる産業革命からの歴史観測データがありましたが、大気硝酸（ガス + 粒子）についての歴史観測データはほとんどありませんでした。

また、産業革命から現在までの大気硝酸量の変動は人為窒素酸化物の排出量で概ね説明ができますが、それだけではなく、硝酸の存在形態（ガスか粒子か）が重要であるというメカニズムを証拠づけ

ました。これによりエアロゾル輸送モデルの改良が進み、将来の地球環境変動予測の精度向上が期待できます。現在、脱硫装置の普及により硫酸エアロゾルの削減は効果的に進められているものの、NO_x除去技術の発展は道半ばです。このため将来、硝酸エアロゾルは北極圏の主要なエアロゾルとなると見込まれます。今後はアイスコアデータなどを用いて、大気硝酸の動態理解と削減策に関する研究が加速されると期待されます。乗り越えるべき課題は大きいですが、エアロゾルが地球の気温を低下させるメカニズムを過去からひも解くことで、地球工学（ジオエンジニアリング：人類が気候変動を緩和するために、地球の気候を意図的に改変する技術）等の研究への貢献にもつながります。

【謝辞】

本研究は、日本学術振興会科学研究費（JP18H05292、JP23H00511、JP23K28212、JP23K18519、JP23K24976）、北極域研究加速プロジェクト（ArCS II:JPMXD1420318865）、推進費：「環境省・環境再生保全機構の環境研究総合推進費（JPMEERF20232001）」、北海道大学低温科学研究所の共同研究プログラムの一環として行われたものです。

論文情報

論文名	Acidity-driven gas-particle partitioning of nitrate regulates its transport to Arctic through the industrial era（大気酸性度により駆動される硝酸塩のガス-粒子分配は産業時代を通じて北極への硝酸塩輸送を制御している）
著者名	飯塚芳徳 ¹ 、松本真依 ² 、川上 薫 ¹ 、捧 茉優 ² 、石野咲子 ³ 、服部祥平 ^{4,5} 、植村 立 ⁶ 、松井仁志 ⁶ 、藤田耕史 ⁶ 、大島 長 ⁷ 、Andrea Spolaor ⁸ 、Anders Svensson ⁹ 、Bo Møllersøe Vinther ⁹ 、大野 浩 ¹⁰ 、関 宰 ¹ 、的場澄人 ¹ （ ¹ 北海道大学低温科学研究所、 ² 北海道大学大学院環境科学院、 ³ 金沢大学環日本海域環境研究センター、 ⁴ International Center for Isotope Effects Research, Nanjing University, China、 ⁵ School of Earth Sciences and Engineering, Nanjing University, China、 ⁶ 名古屋大学環境学研究科、 ⁷ 気象庁気象研究所、 ⁸ Institute of Polar Sciences, National Research Council of Italy, Italy、 ⁹ Niels Bohr Institute, University of Copenhagen, Denmark、 ¹⁰ 北見工業大学）
雑誌名	Nature Communications
D O I	10.1038/s41467-025-59208-0
公表日	2025 年 5 月 19 日（月）（オンライン公開）

お問い合わせ先

北海道大学低温科学研究所 准教授 飯塚芳徳（いづかよし のり）

T E L 011-706-7351 F A X 011-706-6888 メール iizuka@lowtem.hokudai.ac.jp

金沢大学環日本海域環境研究センター 助教 石野咲子（いしのさきこ）

T E L 076-264-6511 メール ishino-sakiko@se.kanazawa-u.ac.jp

配信元

北海道大学社会共創部広報課（〒060-0808 札幌市北区北 8 条西 5 丁目）

T E L 011-706-2610 F A X 011-706-2092 メール jp-press@general.hokudai.ac.jp

金沢大学理工系事務部総務課（〒920-1192 金沢市角間町）

T E L 076-234-6957 F A X 076-234-6844 メール s-somu@adm.kanazawa-u.ac.jp

気象庁気象研究所企画室（〒305-0052 つくば市長峰 1-1）

T E L 029-853-8535 メール ngmn11ts@mri-jma.go.jp

名古屋大学総務部広報課（〒464-8601 名古屋市千種区不老町）

T E L 052-558-9735 F A X 052-788-6272 メール nu_research@t.mail.nagoya-u.ac.jp

【参考図】

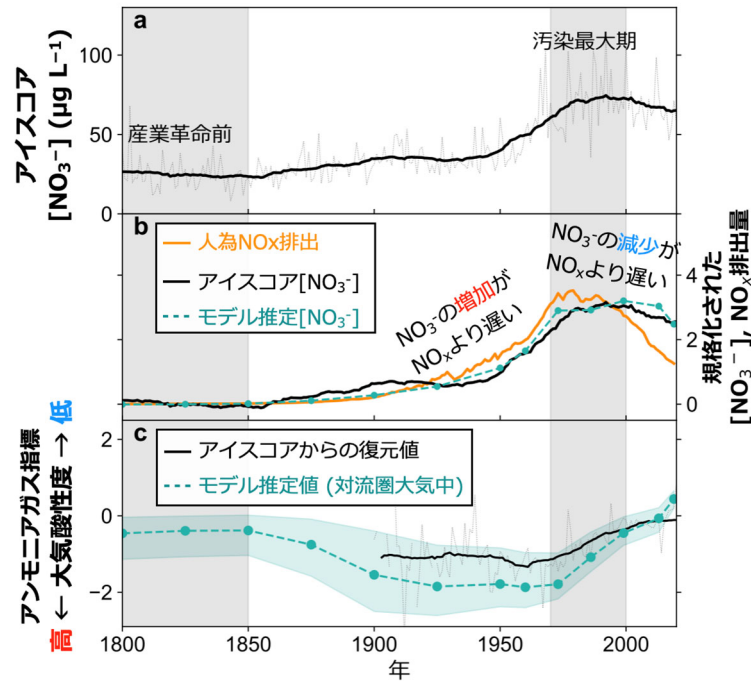


図 1. (a) グリーンランド南東ドームアイスコアから復元した硝酸塩量（正確には硝酸イオン濃度）（黒、 $\mu\text{g L}^{-1}$ ）の経年変化。(b) 周辺国の人為窒素酸化物 (NO_x) 量（オレンジ）、アイスコアから復元した硝酸塩量（黒）、モデルで推定された硝酸塩量（緑）の経年変化。（比較のため、硝酸塩量は 1800-1850 年の平均値を差し引き、硝酸塩量も NO_x 量も平均値で割って規格化している。）(c) アイスコア（黒）とモデル（緑）に基づき計算されたアンモニアガス比（定義： $([\text{NH}_4^+] - 2[\text{nss-SO}_4^{2-}]) / [\text{NO}_3^-]$ 、ガス状アンモニア量の代替指標）の経年変化。

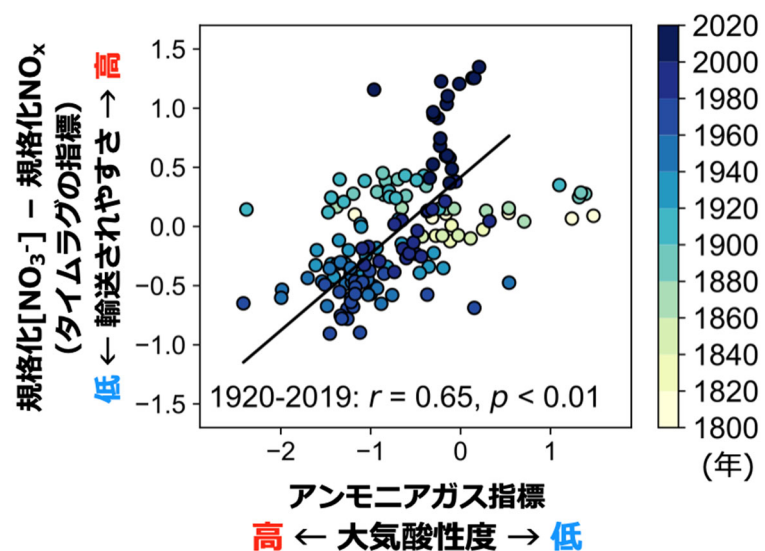


図 2. タイムラグ（図 1b の黒－オレンジ）とアンモニアガス指標（図 1c）の関係。

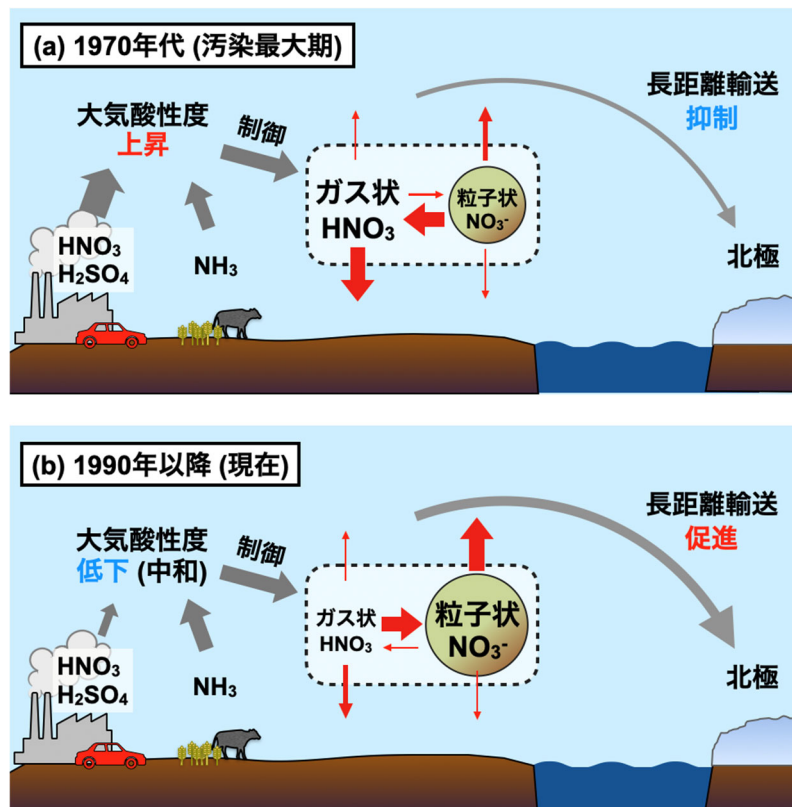


図 3. 大気酸性度が大気硝酸の形態割合（ガス状 HNO₃ vs 粒子状 NO₃⁻）を変化させることで、大気硝酸の長距離輸送を制御するメカニズム。

【用語説明】

- * 1 アイスコア … 極地氷床などで鉛直方向にくり貫かれる円柱状の氷試料のこと。
- * 2 大気硝酸 … 窒素酸化物の一種である硝酸は、大気中でガス状（HNO₃）または他の陽イオンと結合した微粒子状（NO₃⁻）として浮遊している。大気硝酸は雨等により大気圏から取り去られ、海洋や森林などの生物圏に再び沈着される。
- * 3 窒素酸化物 NO_x … 窒素の酸化物で、一酸化窒素（NO）と二酸化窒素（NO₂）を合わせた総称。NO_x は工場の煙や自動車排気ガスなどから人為的に排出され、さらに大気中で酸化されると大気硝酸を生成する。気管支炎、酸性雨、PM2.5、流域の富栄養化など、人間の健康や環境に悪影響を与えている。
- * 4 アンモニアガス指標 … 大気中の塩基性成分を代表するアンモニアは、ガス状（NH₃）と粒子状（NH₄⁺）のいずれかの形態で浮遊している。このうちガス状の割合を示す代替指標が「アンモニアガス比」であり、大気またはアイスコア中のアンモニウム、硫酸塩、硝酸塩のバランス（ $\frac{([NH_4^+] - 2[nss-SO_4^{2-}])}{[NO_3^-]}$ ）で定義される。この値が高いほど、大気酸性度が低い（中和されている）ことを示す。