

カメヤマ ソオヒコ
亀山 宗彦

共同研究者

橋本 燎

(北海道大学大学院環境科学院 修士課程2年)

小川 浩史

(東京大学大気海洋研究所 教授)

佐藤 孝紀

(室蘭工業大学大学院工学研究科 教授)

略 歴

2007年	3月	北海道大学大学院理学研究科 地球惑星科学専攻 博士課程修了
2007年	4月	国立環境研究所・ アジア自然共生研究グループ 日本学術振興会特別研究員 (PD)
2008年	4月	国立環境研究所・ 地球環境研究センター NIES ポストドクフェロー
2010年	4月	北海道大学・大学院 地球環境科学研究院 助教
2015年	4月	北海道大学・大学院 地球環境科学研究院 准教授 現在に至る

雷放電が誘発する大気—海洋境界層における 新しい窒素循環像

雷放電は大気中での窒素の酸化を促し、自然起源の窒素酸化物の主要な生成要因となるため、大気化学における重要な現象の一つである (Wang et al., 1998)。雷放電は積乱雲を形成しやすい陸域で多く発生するだけでなく、海域でも日常的に発生することが分かっている。また貧栄養海域と知られている、熱帯、亜熱帯の海域は、特に雷放電が多い海域とされている。近年の研究から地球温暖化の促進による雲の生成量の増加から雷放電の増加が予想されており (Romps et al., 2014)、これにより海洋の一次生産を支える主要な栄養塩である窒素酸化物の海域への沈着量が増加するかもしれない。

そこで本研究では、実験室内で様々な環境因子を変化させながらプラズマ放電を人工的に起こすことで海面付近での雷放電を模擬し、窒素酸化物の生成、消費とその質の変化について定量的に評価した。

放電によって窒素酸化物が生成し、その中で、硝酸と亜硝酸では、亜硝酸の方が比較的多く生成することが分かった。次に窒素酸化物は液相でも生成されるのか確認するために、窒素の存在しない気相条件下 (Ar 雰囲気下) で放電を発生させた所、少量の窒素酸化物の生成が確認された。また液相における窒素酸化物の生成源を調べるために、脱気した海水試料と脱気していない海水試料を用いて放電し、窒素酸化物の生成量を比較した。その結果、脱気の状態の違いで生成量に差異がなかったため、液相では溶存態 (含酸素、含窒素) 化合物を介した生成が示唆された。そして、天然環境に近い状況での放電を想定するために、リアクター内を加湿して放電を発生させた結果、加湿度最大時で液相中での溶存態窒素酸化物の量の増加 (約 1.69 倍) と気相中での窒素酸化物の量の減少 (約 17.6%) が確認された。

室内放電実験の結果を基に、実際の雷放電にスケールアップした際の窒素酸化物の生成量を

見積もった。その結果、雷放電1回あたりに窒素酸化物は $2.67 \times 10^1 - 8.39 \times 10^2$ mol 生成されると算出された。そして、雷による窒素酸化物（栄養塩）の貧栄養海域への供給量を窒素固定生物のそれと比較するために、貧栄養海域における雷と窒素固定生物の窒素固定速度を算出して比較した。その結果、1 km²、数日-1週間程度の範囲においては雷の窒素固定速度の方が高いことが分かった。したがって、貧栄養海域において、雷放電は局所的に窒素固定生物よりも多くの栄養塩を供給し、生物生産を活性化させていることが示唆された。

1. 序論

雷放電は大気中では窒素の酸化を促し、自然起源の窒素酸化物の主要な生成要因となるため、大気化学における重要な現象の一つである (Wang et al., 1998)。大気中には窒素や酸素などが安定した分子として存在している。雷放電が発生し、窒素、酸素の分子間に0.4-6.7 GJほどの膨大なエネルギーが流れると分子間の結合が切れる (Schumann and Huntrieser, 2007)。そうすると不安定な窒素、酸素のラジカルが発生し、このラジカル同士が反応して結合することで窒素酸化物（以下、雷 NO_xとする）が発生する。

雷放電は大気、陸、海洋の生態系と化学組成へ影響を与える可能性を持っている。まず雷 NO_xは陸、海域において、植物や植物プランクトンの栄養塩としての役割を持っているからである。また大気中では、雷 NO_xの1種である亜酸化窒素は二酸化炭素やメタンに次ぐ第3の温室効果気体とされている (Hansen et al., 1988)。そして雷 NO_xは地表付近の大気での寿命は数時間程であるが、自由対流圏においては数日と寿命が長く、大気中で様々な物質と反応する。例えば、対流圏においては人体に有害な物質である対流圏オゾンの形成、そして成層圏においてはオゾン層の破壊などに寄与すると言われている (秋元ら 2002)。

窒素酸化物の起源として雷放電の他に人間活動によるバイオマス燃焼、化石燃料燃焼、人工窒素肥料の施肥や微生物による脱窒・硝化反応などがある。各緯度の雷 NO_xの発生量の割合を平均すると、雷はNO_xの起源全体の内、約10%占めるということがわかる (Schumann and Huntrieser, 2007)。また全球規模における窒素固定量のうち、雷が占める割合は約2%と言われている (Canfield et al., 2010)。

雷放電発生の要因は上昇気流である。上昇気流は低気圧、大気と地表の温度差、前線、地形等の要因によって大気が不安定になった時に発生する。上昇気流によって、空気が上昇していくと周囲の気温は低くなっていくので空気は凝結していき、水滴となり、そのかたまりが雲になる。さらに空高くまで雲が発達すると、周囲の温度が氷点下に達し、雲の中には氷の粒ができる。氷の粒は上昇と共に成長し、ある程度の大きさになると、上昇する力を重力が勝り、下降が始まる (Takahashi, 1984; Saunders, 1993; Deierling et al., 2005; Petersen et al., 2005; Kuhlman et al., 2006; Sherwood et al., 2006)。この上昇、下降している氷の粒同士がぶつかり合って大きな氷の粒と小さな氷の粒との間で静電気が発生し、大きな氷の粒にはマイナス、小さな氷の粒にはプラスの電荷が帯電する。大きな氷の粒にマイナス、小さな氷の粒にプラスが帯電する理由はいまだ不明である。このような現象が続くと、雲に電荷がどんどん帯電し、雷雲（積乱雲）となる (Marshall et al., 1995)。雷雲が

成長していくと、雲と大地の間または雲内の電位差が大きくなり、不安定さを解消するために電気が流れようとする。絶縁体である空気が電圧の大きさに耐えられなくなった時に雷放電が発生する (Stolzenburg et al., 2007)。

では、雷は世界のどこで多く発生するのであろうか。陸域と海域の雷放電を比較してみると、海域に比べ地表が熱しやすく、エアロゾル粒子が多く存在する等の理由から陸域で雷は多くみられるが、海域でも比較的頻繁にみられることが知られている (Lee, 2016)。また、雷放電は熱帯、亜熱帯 (低緯度域) で多く発生する特徴も知られている (Christian et al., 2003)。その理由として、低緯度域は高緯度域に比べて、気温が高いことから雷の発生要因となる上昇気流を発生しやすいためだと考えられる。この低緯度の海域は一部の海域を除き、貧栄養な所が多くみられるという特徴を持っている。したがって、雷放電が比較的多く発生する低緯度の海域は貧栄養な所が多いということが言える。

また、雷放電の頻度はこれから増加することが予測されている。Romps et al. (2014) によると、雷放電の頻度は地球温暖化によって増加し、全米の陸域では地球温暖化に伴う1度の気温上昇に対して、平均12%の落雷が増加するとされている。21世紀終わりには約3.6℃の気温上昇が予想されることから、雷放電の頻度が約50%増加することが予測されている。これは気温が上昇することで、地表と大気の温度差が大きくなり、雷の発生要因となる上昇気流が発生しやすくなるためであると考えられる。また、Thornton et al. (2017) では船舶粒子が多い地域には雷放電の頻度が高いことを報告している。このことから今後、海洋上においては船舶からの粒子や他起源のエアロゾル粒子の放出が増加した場合、雷放電が増加するかもしれない。

そこで本研究では、気相中、液相表面において、プラズマ放電を人工的に起こすことで、自然界における雷放電や海面への落雷を模擬し、大気—海洋境界層における窒素酸化物の生成、消費とその質の変化について、定性的、定量的に評価した。本研究の主な研究対象は海洋の一次生産に必要な栄養塩である硝酸、亜硝酸 (NO_2^- 、 NO_3^-) と NO_x (NO 、 NO_2) とした。

2. 実験手法

2-1. プラズマ放電実験システム

本研究では、共同研究者である室蘭工業大学の佐藤孝紀教授の研究室にあるプラズマ放電システムを用いて実験を行った (図1)。放電実験は2019年の9月、2020年の7月、10月、12月の計4回にわたって行った。

リアクター内にある銀の皿電極に海水試料80 mlを入れ密閉し、気相部には N_2 と O_2 を8:2の割合で混合した純空気及びArを流速2 L/minで流しながら放電を発生させた。一定時間放電を発生させた後に、海水試料をGF/Fフィルターをかませたシリンジで試料管に採取し、すぐに冷凍保存した。海水試料中に含まれる窒素酸化物は、後日栄養塩測定装置 QuAAtro2-HRを用いて測定した。

2-5. 海水の採水域

今回放電実験に使用した海水は航行中 (KH-13-7次航海、KS-16-9次航海) に船底から採取された海水である。したがって、正確な採水地点は把握できていないが、KH-13-7次航海では北緯20-25度、東経155-160度、KS-16-9次航海では北緯20度、東経144度の北太平洋亜熱帯域で

採水された表面海水である(図2)。上述のようにこの海域は貧栄養海域で特徴づけられ、この海域で得られた海水は無機的な窒素固定が貧栄養海域における栄養塩の供給源となるか検証するために適しているといえる。

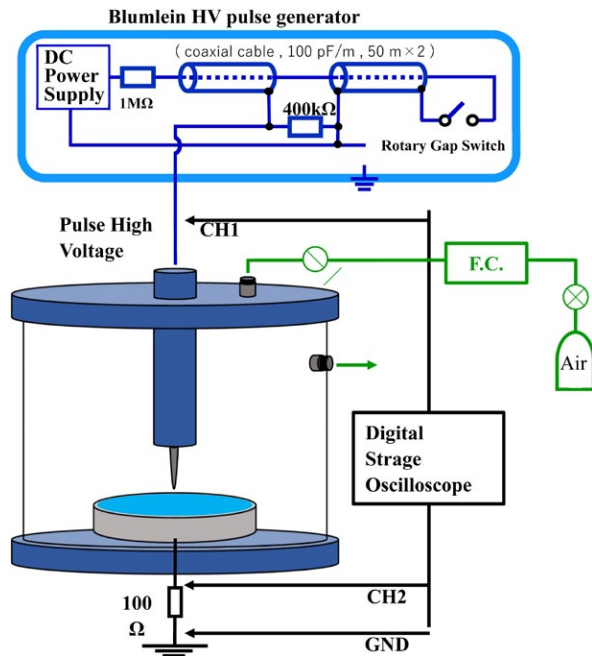


図1 プラズマ放電実験システムの概念図

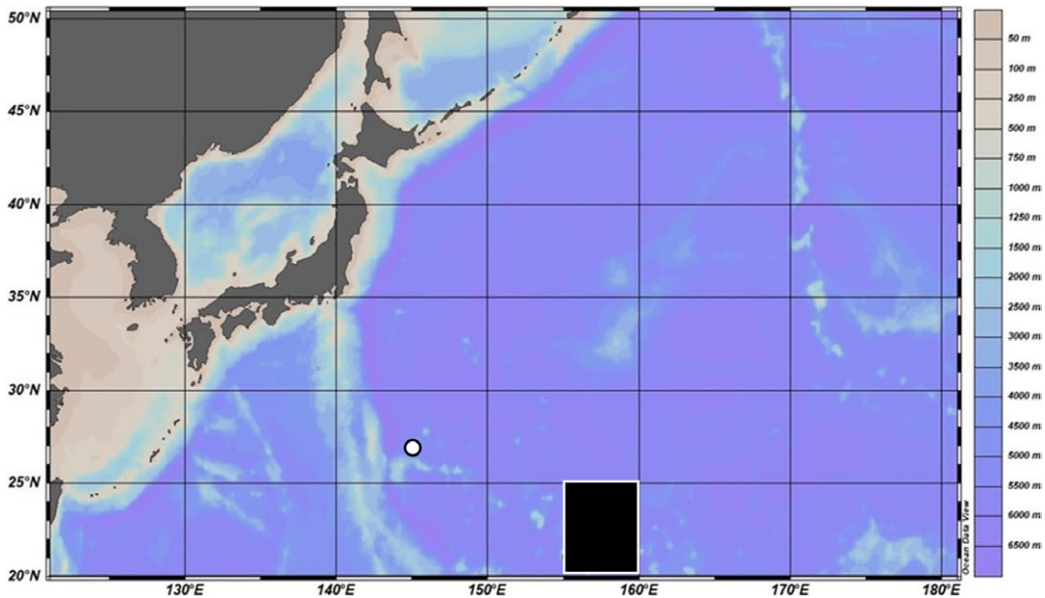


図2 放電実験に使用した海水の採水域

(KH-13-7次航海、北緯20°-25°、東経155°-160°(白抜き丸))

(KS-16-9次航海、北緯20°、東経144°(黒抜き四角))

3. 室内プラズマ放電実験結果

3-1. 雷放電を発生させた後の NO_2^- と NO_3^-

図3に雷放電を発生させた後の海水試料に含まれる $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ の濃度を表した。また図4は雷放電を発生させた後の海水試料に含まれる NO_2^- と NO_3^- の濃度を別々にプロットしたものである。放電の結果、(1) 放電時間(0-15分)に比例して、硝酸・亜硝酸が増加していたこと、(2) 数分間放電した際の硝酸・亜硝酸の量を比較すると、亜硝酸の方が多く発生したことが分かった。例えば2019年9月の実験では硝酸に比べて2.54倍-2.75倍の亜硝酸が検出された。しかし、2020年10月時の実験ではこのような傾向がみられず、放電針が劣化による放電針表面の活性点が増加したことで、 NO_x が酸化されやすい状況だったことが示唆された。

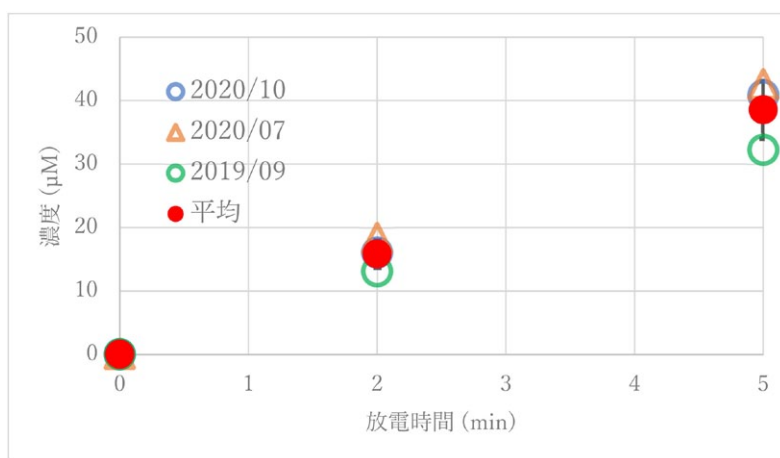


図3 雷放電を発生させた際に生成された $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$
(N_2/O_2 雰囲気下・ギャップ長4 mm)
※ ここでのエラーバーは各実験回における $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ の標準偏差を意味している。

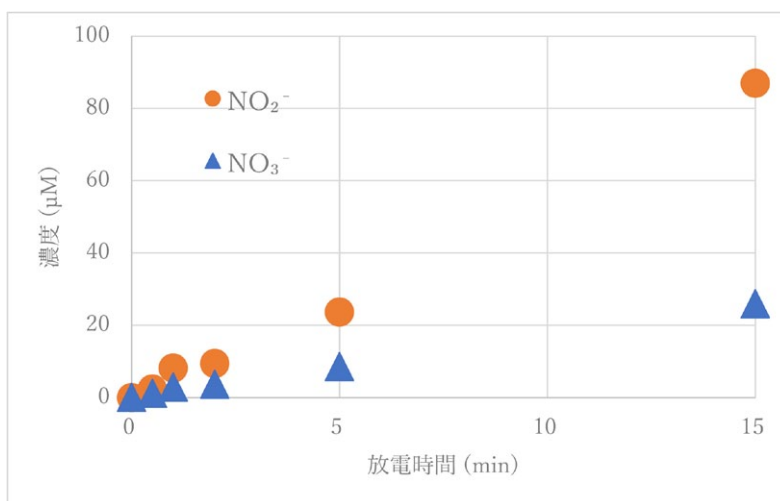


図4 雷放電を発生させた際に生成された NO_2^- 、 NO_3^- @2019年9月
(N_2/O_2 雰囲気下・ギャップ長4 mm)

3-2. プラズマ放電によって生成する窒素酸化物の湿度依存性

プラズマ放電により生成されたNO_x（以下プラズマ放電NO_x）の生成量もしくは動態が湿度によってどのように変化するのか検証するために、加湿ユニットを用いて、リアクター内を加湿しながら放電を発生させた。この時、液相中に含まれるNO₂⁻、NO₃⁻のみではなく、気相中に含まれるNO_x濃度も測定した。

図5は加湿して放電を発生させた際のNO₂⁻+NO₃⁻の濃度であるが、相対湿度とNO₂⁻+NO₃⁻の濃度には顕著な相関性は見られなかったが、特に5分放電した実験の結果は緩やかな増加のトレンドを示している。図6は、加湿条件下で放電を発生させた際の気相中のNO_x濃度を示しているが、相対湿度とNO+NO₂の濃度には負の相関関係（R = -0.740）があった。相対湿度0%の時の濃度と比較して、相対湿度50%の時で約22.7%、相対湿度100%の時には、約17.6%の減少が確認された。しかし、相対湿度50%の際はNO_x濃度のばらつきが非常に大きかった。

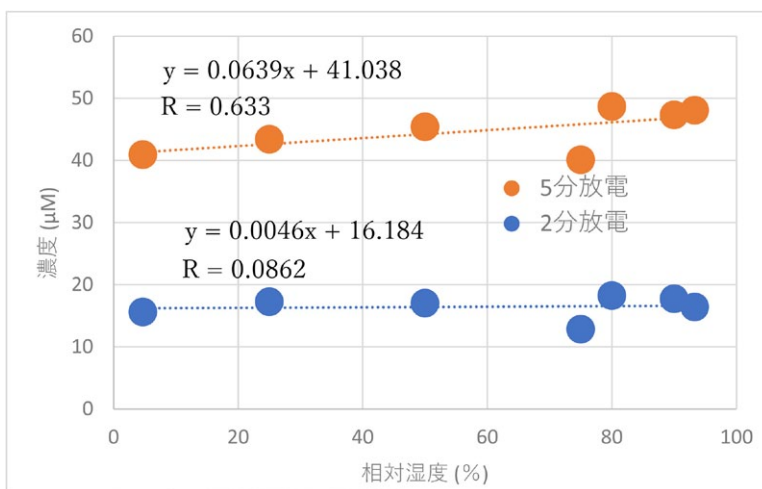


図5 加湿しながら放電を発生させた際のNO₂⁻+NO₃⁻ (N₂/O₂雰囲気下・ギャップ長4 mm)

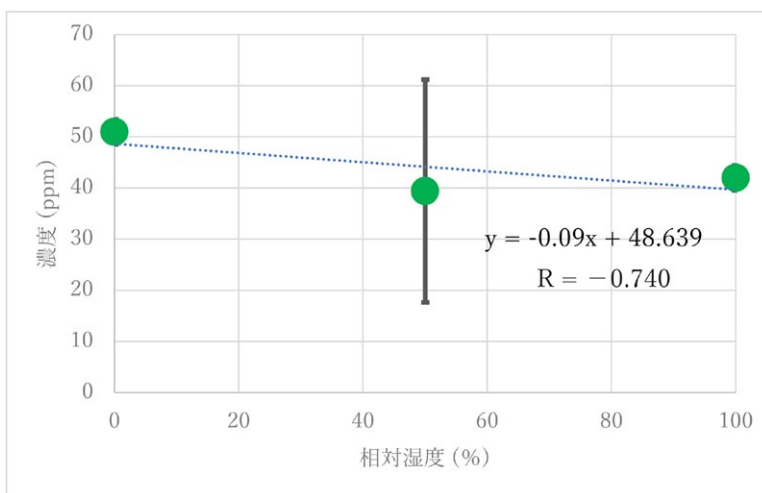


図6 加湿しながら放電を発生させた際の気相中で検出されたNO+NO₂ (N₂/O₂雰囲気下・ギャップ長4 mm)

放電を発生させた際に気相中で検出された NO_x の濃度が減少しており、液相中で検出された $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ が増加している傾向が普遍的なものであるとすると以下の現象の可能性が考えられる。

1. 加湿によってリアクター内に送り込まれた H_2O が放電によって OH ラジカルを発生し、その OH ラジカルが NO_x (gas) \rightarrow HNO_2 (gas)、 HNO_3 (gas) になる速度を高めている。
2. 加湿によってリアクター内に送り込まれた H_2O を元に O ラジカルが発生し、その O ラジカルが元になって、 NO_x の生成量自体が増えている。
3. 空気中に存在する H_2O が増えたことで、 H_2O の結合を分裂させるのに雷放電のエネルギーが使われて、 NO_x の生成量自体が減る。

この3つの現象の内、1の現象が優先的に発生している可能性が高いと考えた。その理由としては、2と3の現象であれば気相中で検出される NO_x と液相中で検出される NO_2^- 、 NO_3^- の両方が増加のみもしくは減少のみの傾向がみられるからである。もちろん1のみの現象ではなく、1、2、3の現象が同時に起こっている可能性は否定できない。

3-3. 液相中での $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ の生成の精査

リアクター内を N_2/O_2 雰囲気下と Ar 雰囲気下に分けて放電を発生させる実験を通して、窒素、酸素分子の存在しない Ar 雰囲気下でもプラズマ放電 NO_x の生成が確認された場合、液相中での生成が示唆される。実験の結果、Ar 雰囲気下においても窒素酸化物の生成が確認されたため(図7)、液相にてのプラズマ放電 NO_x 生成が示唆された。

上記のように、液相中で窒素酸化物が生成されることがわかった。しかし、液相中で窒素酸化物がどのように生成されるのかは未解明である。そこで、液相中で気相中から溶存した窒素、酸素を介した生成もしくは溶存態化合物(含酸素、含窒素)を介した生成の可能性を考えた。この2つのどちらから生成されているのか調べるために、海水試料を脱気してからプラズマ放電を発生させ、その後海水試料に含まれる窒素酸化物を測定した。海水試料を脱気した場合、溶存窒素、酸素は海水試料中に理想的には存在しない。したがって、脱気した海水試料と脱気していない海水試料に放電を

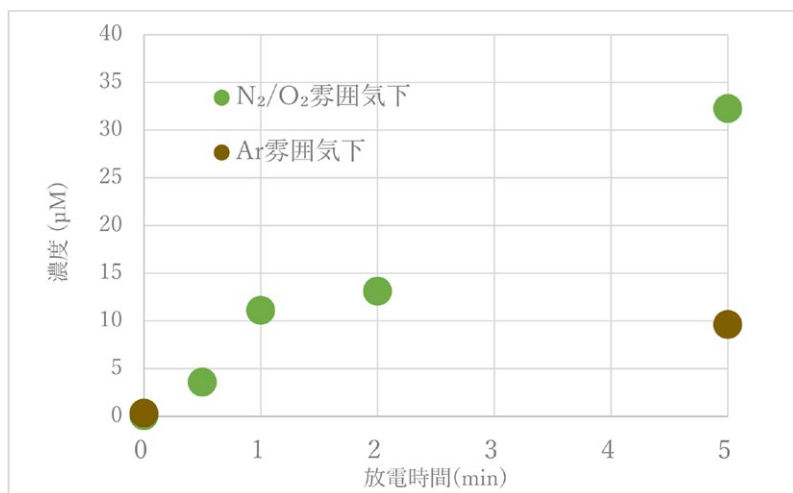


図7 N_2/O_2 雰囲気下と Ar 雰囲気下にて放電を発生させた際の $\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ (N_2/O_2 雰囲気下と Ar 雰囲気下・ギャップ長 4 mm)

照射した後の濃度に差異が見られなかった場合、液相中では溶存態化合物を介した生成の可能性がある。その結果、脱気した海水試料と脱気していない海水試料の間に濃度の違いはほとんど見られなかったため(図8)、液相中では溶存態化合物(含酸素、含窒素)を介した生成が示唆された。

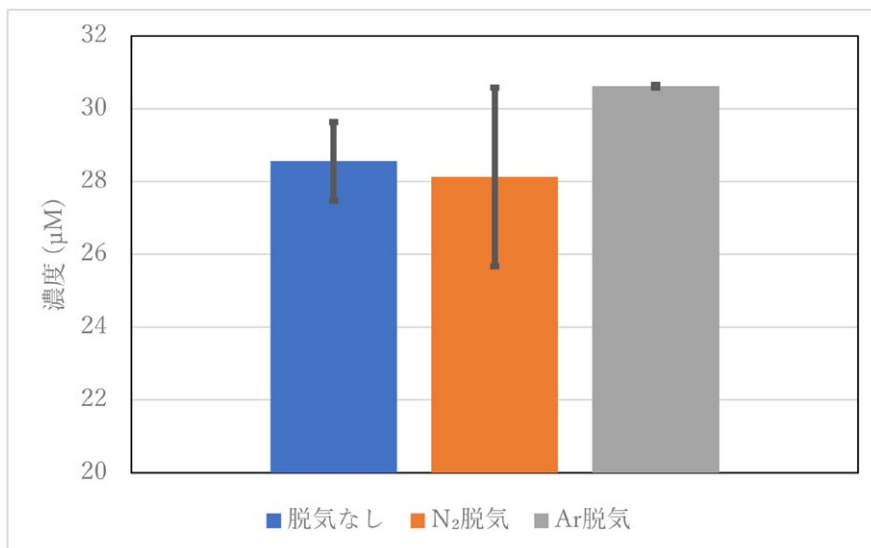


図8 脱気した海水試料と脱気していない海水試料に対して5分間放電を照射した際のNO₂⁻+NO₃⁻の比較 (Ar雰囲気下・ギャップ長4 mm)

4. 室内放電実験結果を基にした自然界の雷 NO_x 動態の考察

4-1. 室内放電実験結果を基にした雷 NO_x の生成量の見積もり

雷は雲内雷と落雷に分けられるが、ここでは落雷を想定している。自然界の地上0 m-6000 mにおいて発生した雷 NO_x を先行研究 Price et al. (1997) と Wang et al. (1998) を参考にして見積もった。詳細な計算過程は省略するが見積りの結果、大気-海洋間で発生した雷1回あたりに生成された雷 NO_x の生成量は $2.67 \times 10^1 - 8.39 \times 10^2$ mol と算出された。また大気、海洋中での生成量はそれぞれ $2.65 \times 10^1 - 8.31 \times 10^2$ mol, $2.47 \times 10^1 - 8.32$ mol と算出された。

4-2. 貧栄養海域の生物生産に対する雷放電の影響度

貧栄養海域の表層水において、生物の栄養塩となる NO₂⁻、NO₃⁻ を供給するものとしては、雷放電の他に生物による窒素固定とその後の硝化反応、海洋中深層からの拡散、混合が挙げられる。しかし、貧栄養海域は気温が高く成層化しているため、海洋中深層からの拡散、混合による供給は非常に少ないと考えられる。そこで本研究では現時点での貧栄養海域における雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度を比較することで、生物生産に対する影響度の違いについて定性的、定量的に評価した。

雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度のスケールは大きく異なる。例えば、同じ場所において雷放電は年間に断続的に発生して窒素固定を行うが (Christian et al., 2003)、窒素固定生物は年中持続的に窒素固定を行っている (Chen et al., 2019; Tang et al., 2019; Vitousek et al., 2013)。

したがって、両者を比較するには空間軸と時間軸を合わせる必要性がある。そこで、空間軸は雷放電の衛星観測時の格子の面積によく使用される1 km²とした (Lee, 2016; Thornton et al., 2017)。そして時間軸は、雷放電により生成された窒素酸化物が大気から海洋へ完全に沈着するのに最短で10分、最長で1週間かかると仮定して (秋元ら 2002; 釜堀ら 2018)、10分、1週間とした。また3-3から雷放電によって液相中で即座に栄養塩供給が行われていることが示唆されたため、1秒という時間も考慮した。上記の範囲での雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度を表1に示した。

窒素固定生物の窒素固定速度は先行研究 (Tang et al., 2019) の各緯度における窒素固定速度の値を基にした。ここでは貧栄養海域の範囲を雷放電が最も発生する北緯30°-南緯30°と定義した。したがって表19に記載された算術的推定 (Arithmetic estimates)、幾何学的推定 (Geometric estimates) によって求められた北緯30°-南緯30°における窒素固定生物の窒素固定速度の値を平均すると (coastal ocean, open ocean 含めて)、算術的推定では $6.70 \times 10^1 \mu\text{mol Nm}^{-2} \text{d}^{-1}$ となり、幾何学推定は $1.70 \times 10^2 \mu\text{mol Nm}^{-2} \text{d}^{-1}$ となった。この値を基に1 km²における1秒間、10分間、1週間の範囲での窒素固定生物の窒素固定速度を算出し、表1に示した。雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度を比較した結果、1 km²、数日-1週間程度の範囲においては雷放電の方が窒素固定生物よりも高いことがわかった。したがって、雷放電は窒素固定生物よりも局所的に生物生産を活性化させることが示唆された。

表1 貧栄養海域1 km²における様々な時間軸での雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度の比較

	窒素固定量 (mol km ⁻²)		
	1秒(液相内での窒素固定)	10分 (沈着時間最短)	1週間(沈着時間最長)
雷放電 (1回)	$2.47 \times 10^{-1} - 8.32$	$2.67 \times 10^1 - 8.39 \times 10^2$	$2.67 \times 10^1 - 8.39 \times 10^2$
窒素固定生物 (Tang et al., 2019)	$(7.75 - 19.7) \times 10^{-4}$	$(6.69 - 17.0) \times 10^1$	$(4.69 - 11.9) \times 10^2$

続いて貧栄養海全域にて年間あたりの雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度を比較してみた。今回貧栄養海全域の範囲を雷放電が最も集中する北緯30°-南緯30°の海域としたが計算が複雑になるため、ペルー沖の貧栄養海域ではない地域を一部含んでいる。

雷放電による窒素固定速度の算出法について説明する。貧栄養海全域における年間の雷放電の窒素固定速度は、雷放電の貧栄養海全域における年間の発生頻度に乗で算出した雷NO_xの生成量を掛けて見積もることができる。雷放電は全球規模で1秒間に約44回発生しており、海洋域だけで見ると1秒間に約5回発生している。また北緯30°-南緯30°の範囲に発生する雷放電は全体の約78%に相当するとされている (Christian et al., 2003)。したがって、以上のことを踏まえて貧栄養海全域の範囲を北緯30°-南緯30°とすると、貧栄養海全域において雷放電は1秒間に3.9回発生していることになる (落雷と雲内雷を含む)。4-2-1から雷放電により生成した窒素酸化物は $2.67 \times 10^1 - 8.39 \times 10^2 \text{ mol}$ であるから (落雷と雲内雷の雷NO_xの生成量はここでは等しいと仮定した)、貧栄養海全域における雷放電による年間の窒素固定速度は以下ようになった。

$$\begin{aligned}
 & (2.67 \times 10^1 - 8.39 \times 10^2) \times 3.9 \times 60 \times 60 \times 24 \times 365 \times 14 / 1.0 \times 10^{12} \\
 & = 0.0460 - 1.44 \text{ Tg yr}^{-1}
 \end{aligned}$$

また先行研究の全球規模における雷放電による窒素固定速度が2-8 Tg N yr⁻¹とされており (Schumann and Huntrieser, 2007、Ott et al., 2010)、この値を基に貧栄養海全域における年間の窒素固定速度を上記の算出法と同様に計算すると、以下ようになった。

$$(2-8) \times (3.9/44) = 0.177-0.709 \text{ Tg yr}^{-1}$$

したがって、貧栄養海全域における雷放電の窒素固定速度は本研究では0.0460-1.44 Tg yr⁻¹、先行研究を基にした場合では0.177-0.709 Tg yr⁻¹となった。また、窒素固定生物の窒素固定速度を計算すると、算術的推定では5.28×10¹ Tg yr⁻¹となり、幾何学推定は1.57×10² Tg yr⁻¹となった。

表2は雷放電と窒素固定生物の貧栄養海全域における年間の窒素固定速度の比較であるが、窒素固定生物の方が雷放電に比べて非常に高いことがわかった。このように雷放電の頻度が高い貧栄養海域においても、貧栄養海全域 (北緯30° - 南緯30°)、1年という時空間スケールにおいては雷放電よりも窒素固定生物の方が圧倒的に生物生産を活性化させることが示唆された。

表2 貧栄養海全域 (北緯30° - 南緯30°) における年間の窒素固定生物と雷放電の窒素固定速度の比較

	Tg yr ⁻¹
窒素固定生物 (Tang et al., 2019)	5.28 × 10 ¹ - 1.57 × 10 ²
雷放電 (本研究)	0.0460 - 1.44
雷放電 (先行研究)	0.177 - 0.709

5. 結論

本研究では、気相中、液相表面において、プラズマ放電を人工的に起こすことで、自然界における雷放電や海面への落雷を模擬し、窒素酸化物の生成、消費とその質の変化について定性的、定量的に評価した。

室内放電実験の結果では、以下の3つのことがわかった。1つ目は、放電を発生させた際に、海水試料から硝酸と亜硝酸が検出され、そのなかでも亜硝酸がより多く検出されたことである。2つ目は加湿した際にNO_xが気相中でHNO₂ (gas) またはHNO₃ (gas) になる速度が速まる現象が起きていることが示唆されたことである。これまで加湿した際の液相中で測定したNO₂⁻、NO₃⁻、気相中で測定したNOとNO₂のデータ数が非常に少なかった。したがって、今後プラズマ放電NO_xに対する相対湿度の影響を見積もることに焦点を当てて、放電実験を繰り返し、液相中でのNO₂⁻、NO₃⁻と気相中のNO_xを同時に測定していくことが重要である。3つ目は、液相中における溶存態化合物 (含酸素、含窒素) を元にしたプラズマ放電NO_xの生成が示唆されたことである。しかし、液相中でのNO_xの生成量の制限因子及び、液相中でどのような溶存態化合物を元に生成しているのかは未解明である。液相中でのNO_xの生成量の制限因子を解明するには、リアクター内に入れる海水試料の量を変えて放電の

発生を試みる予定である。そして液相中でどのような溶存態化合物が変化しているのかは、放電前と放電後の海水試料に含まれる溶存態有機物 (DOM) を調べることで解明が期待されると考える。

室内放電実験結果を基にした自然界の雷 NO_x 動態の考察において、雷放電と窒素固定生物の窒素固定速度を比較した結果、雷放電は窒素固定生物よりも局所的に生物生産を活性化させることが示唆された。本研究では海洋直上での議論しかできていない。しかし、本研究で算出した雷放電の窒素固定速度、先行研究により引用した窒素固定生物の窒素固定速度 (Tang et al., 2019) は共に不確実性が高い値となっている。また本研究では海洋直上での議論しかできていない。したがって、今後は陸域で生成された雷 NO_x の海域への流入や陸域からの他の起源の NO_x の流入等の水平方向からの影響も考える必要がある。

6. 参考文献

1. 秋元肇・河村公隆・中澤高清・鷺田伸明 (2002) 対流圏大気の化学と地球環境 1-153
2. Canfield, D. E., A.N. Glazer, P.G. Falkowski, (2010) The evolution and future of Earth's nitrogen cycle, *Science* 330 192-196 doi.org/10.1126/science.1186120
3. Christian, H. J., Blakeslee, R. J., Boccippio, D. J., (2003) Global frequency and distribution of lightning as observed from space by the Optical Transient Detector, *J. Geophys. Res.*, 108, 4005, doi:10.1029/2002JD002347
4. Chen, Mingming., Lu, Yangyang., Jiao, Nianzhi., Tian, Jiwei., Kao, Shuh-Ji., Zhang, Yao., (2019) Biogeographic drivers of diazotrophs in the western Pacific Ocean *Limnol. Oceanogr.* 64, 1403-1421
5. Deierling, W., Latham, J., Petersen, W. A., Ellis, S. M., and Christian Jr., H. J. (2005) On the relationship of thunderstorm ice hydrometeor characteristics and total lightning measurements, *Atmos. Res.*, 76, 114-126
6. Hansen, J., I. Fung, A. Lacis, D. Rind, S. Lebedeff, R. Ruedy, and G. Russell (1988) Global climate changes as forecast by Goddard Institute for Space Studies three-dimensional model, *J. Geophys. Res.*, 93:9341-9364, doi.org/10.1029/JD093iD08p09341
7. 釜堀弘隆、河村隆一 (2018) トコトン図解 気象学入門 第3章:35-50
8. Kuhlman, K. M., Ziegler, C. L., Mansell, E. R., MacGorman, D. R., and Straka, J. M. (2006) Numerically simulated electrification and lightning of the 29 June 2000 STEPS supercell storm, *Mon. Wea. Rev.*, 134, 2734-2757
9. Lee T. Murray, (2016) Lightning NO_x and Impacts on Air Quality *Curr Pollution Rep* 2:115-133 doi:10.1007/s40726-016-0031-7
10. Marshall, T. C., McCarthy, M. P., and Rust, W. (1995) Electric field magnitudes and lightning initiation in thunderstorms, *J. Geophys. Res.*, 100, 7097-7103
11. Ott, L. E., Pickering, K. E., Stenchikov, G. L., Allen, D. J., DeCaria, A. J., Ridley, B., Lin, R.-F., Lang, S., and Tao, W.-K., (2010) Production of lightning NO_x and its vertical distribution calculated from three-dimensional cloud-scale chemical transport model simulations, *J. Geophys. Res.*, 115, D04301, doi.org/10.1029/2009JD011880

12. Petersen, W. A., Christian, H. J., and Rutledge, S. A. (2005) TRMM observations of the global relationship between ice water content and lightning, *Geophys. Res. Lett.*, 32, 1–4, doi:10.1029/2005GL023236
13. Price, C., Penner, J., and Prather, M. (1997) Global distribution based on lightning physics, *J. Geophys. Res.*, 102:5929–5941. doi:10.1029/96JD03504
14. Roms, D. M., Seeley, J. T., Vollaro, D., and Molinari, J., (2014) Projected increase in lightning strikes in the United States due to global warming, *Science*, 346, 851–854
15. Saunders, C. P. R. (1993) A review of thunderstorm electrification processes, *J. Appl. Meteorol.*, 32, 642–655
16. Schumann, U. and Huntrieser, H. (2007) The global lightning-induced nitrogen oxides source. *Atmos Chem Phys*. 7(14):3823–3907. doi:10.5194/acp-7-3823-2007.
17. Sherwood, S. C., Phillips, V. T. J., and Wettlaufer, J. S. (2006) Small ice crystals and the climatology of lightning, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L05804, doi:10.1029/2005GL025242
18. Stolzenburg, M., Marshall, T. C., Rust, W. D., Bruning, E., MacGorman, D. R., and Hamlin, T. (2007) Electric field values observed near lightning flash initiations, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L04804, doi:10.1029/2006GL028777
19. Tang, Weiyi., Wang, Seaver., Fonseca-Batista, Debany., Dehairs, Frank., Gifford, Scott., Gonzalez, G. Aridane., Gallinari, Morgane., Planquette, Hélène., Sarthou, Géraldine., Cassar, Nicolas., (2019) Revisiting the distribution of oceanic N₂ fixation and estimating diazotrophic contribution to marine production *NATURE COMMUNICATIONS* 10:831 doi.org/10.1038/s41467-019-08640-0
20. Takahashi, T. (1984) Thunderstorm electrification – A numerical study, *J. Atmos. Sci.*, 41, 2541–2557
21. Thornton, J. A., K. S. Virts, R. H. Holzworth, P. Todd, T. P. Mitchell (2017) *Geophys. Res. Lett.*, 44, 9102
22. Vitousek PM., Menge DNL., Reed SC., Cleveland CC. (2013) Biological nitrogen fixation rates, patterns and ecological controls in terrestrial ecosystems. *Phil Trans R Soc B* 368: 20130119. <http://dx.doi.org/10.1098/rstb.2013.0119>
23. Wang Y, DeSilva AW, Goldenbaum GC, Dickerson RR. (1998) Nitric oxide production by simulated lightning: Dependence on current, energy, and pressure. *J Geophys Res*. 103(D15):149-159. doi:10.1029/98JD01356.