

# 緩和渦集積法を用いた PM<sub>2.5</sub> フラックス観測による森林における 硫酸塩および硝酸塩の沈着速度

15536014 本庄 孝明

(指導教員: 松田 和秀)

## 【はじめに】

大気中に存在する微小粒子状物質 (PM<sub>2.5</sub>) については、健康への影響が懸念されており、その環境基準値達成率は大都市部や西日本において低い状況にある。PM<sub>2.5</sub> の発生源特定などの対策に有効な化学輸送モデルのシミュレーションにおいて、硝酸成分の大気中濃度に関してモデルによる過大評価が報告されており、予測精度向上のための課題となっている。PM<sub>2.5</sub> 中の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 濃度は、大気から地表面への沈着・除去過程を表す沈着速度に依存することから、モデルにおいて硝酸成分の沈着速度を過小評価している可能性がある。

一方、森林における観測により、PM<sub>2.5</sub> 中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> に比べて NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の方が、沈着速度が大きい可能性が指摘されており、測定上の不確実性や化学的性質の違いによる沈着メカニズムの差異が要因として考えられてきた。しかしながら、これまでの先行研究は、鉛直方向の濃度勾配から両成分の差異を考察したものであり、高度ごとの粒子の生成や消失の影響を受ける不確実性の大きい手法によるものであった。緩和渦集積 (REA: Relaxed Eddy Accumulation) 法は、1 高度の観測でフラックスを求めため、粒子の生成や消失の影響を受けにくく、より高精度に PM<sub>2.5</sub> の乾性沈着フラックスを測定可能な手法である。そこで本研究では、PM<sub>2.5</sub> の予測精度向上に資するため、REA 法により PM<sub>2.5</sub> 中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> および NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の乾性沈着フラックスを測定し、森林における PM<sub>2.5</sub> 成分、特に硝酸成分の沈着速度を明らかにし、その乾性沈着メカニズムを解明することを目的とした。

## 【方法】

東京農工大学農学部の附属施設であるフィールドミュージアム多摩丘陵 (FM 多摩丘陵) にて観測を行った。FM 多摩丘陵に設置した観測鉄塔の最上部 (高度 30 m) において PM<sub>2.5</sub> 中の無機イオン成分の乾性沈着フラックスを測定した。2014 年 9 月から 2016 年 2 月にかけて計 5 回の集中観測を行い、昼夜間別に 1 日 2 回のサンプリングを 1 週間連続して行った。春季から秋季を着葉期、冬季を落葉期とした。REA 法は乱流により生じる上下鉛直風を上向き時と下向き時に分けて物質を捕集・集積し、その濃度差から正味の輸送量である鉛直方向フラックスを測定する。フラックスは以下の式より求めた。

$$F = \beta \cdot \sigma_w \cdot (C^+ - C^-)$$

$F$  はフラックス、 $\beta$  は実験係数、 $\sigma_w$  は鉛直風速の標準偏差、 $C^+$  および  $C^-$  は鉛直風速が上向き (+) および下向き (-) 時の平均大気中濃度である。また、REA 法によるフラックス観測に同期して、鉄塔の 30 m および 23 m にて PM<sub>2.5</sub> 中の無機エアロゾルの大気中濃度を測定し、下方向への濃度の減衰率を測定した。また櫻井ら (2015) により計算された化学輸送モデル CMAQ (Community Multiscale Air Quality) の 2010 年 1 月から 12 月の間のシミュレーション結果をもとに、FM 多摩丘陵近傍の PM<sub>2.5</sub> 中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> と NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の沈着速度の予測値を求めた。

## 【結果と考察】

捕集した PM<sub>2.5</sub> 中の無機イオン成分を分析したところ、当量濃度の比は NO<sub>3</sub><sup>-</sup> と SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> の和と NH<sub>4</sub><sup>+</sup> がおおむね 1:1 に近い値を示しており、これらの成分が全イオン中の 96% を占めていたことから、PM<sub>2.5</sub> 中の主な無機エアロゾル

は季節によらず  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  と  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  であったと考えられる。図 1 に、REA 法で測定した乾性沈着フラックスと大気中の平均濃度から算出した沈着速度の 25 から 75 パーセンタイル区間の値を示す。着葉期において  $\text{NO}_3^-$  と  $\text{SO}_4^{2-}$  の沈着速度の中央値はそれぞれ 1.4 cm/s ( $\text{NO}_3^-$ ) と 0.19 cm/s ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) であり、 $\text{SO}_4^{2-}$  に比べて  $\text{NO}_3^-$  の方が、沈着速度が有意に大きかった ( $p < 0.05$ )。また、2 高度間における下方向への濃度減衰率は、 $\text{SO}_4^{2-}$  に比べて  $\text{NO}_3^-$  の方が大きかった。よって、高度ごとの粒子の生成や消失の影響を受けにくい REA 法による 1 高度でのフラックス観測においても、両成分間の沈着速度に差が生じることが明らかとなった。沈着速度に成分間差が生じた一因として、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$  粒子の沈着面付近での揮発による影響が考えられた。着葉期において、日中に樹冠直上 (20 m) の気温が上昇する傾向があり (図 2)、気温の上昇とともに  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  粒子が揮発し、生成される  $\text{HNO}_3$  は粒子に比べて沈着しやすいため、効率よく沈着面に除去されたと考えられる。さらに、この除去過程によって沈着面付近では  $\text{HNO}_3$  濃度が極めて低くなり、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$  粒子の揮発がさらに加速されることが予想される。落葉期に関して、30 m から 20 m にかけて気温上昇が見られたが、沈着速度の有意な成分間差は得られなかった。要因として有効なサンプル数が少ないことが考えられた。

緩和渦集積法により得られた沈着速度の観測値と、化学輸送モデル CMAQ による沈着速度の予測値の比較を行った。比較には、観測における有効サンプルの平均値と、予測値の平均値を用いた。観測値の平均値はそれぞれ 0.25 cm/s ( $\text{SO}_4^{2-}$ )、2.61 cm/s ( $\text{NO}_3^-$ ) であった。一方、予測値の平均値はそれぞれ 0.11 cm/s ( $\text{SO}_4^{2-}$ )、0.13 cm/s ( $\text{NO}_3^-$ ) であった。両成分とも観測値に比べて予測値の方が沈着速度は小さく、その差は  $\text{NO}_3^-$  の方が大きかった。化学輸送モデル CMAQ において、上記の沈着面付近における  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  粒子の揮発の影響は考慮されておらず、 $\text{NO}_3^-$  の沈着速度に関して観測との大きな差が生じたと考えられた。一般的に化学輸送モデルにおいて、最下層の高さは数 10 m に設定されており、地表面付近の現象を再現できていないと考えられる。

### 【引用文献】

櫻井達也、佐竹晋輔、松田和秀、東京西部における  $\text{PM}_{2.5}$  無機イオン成分の測定とそれに基づく大気質モデルの予測性能評価、エアロゾル研究、30(2)、2015.

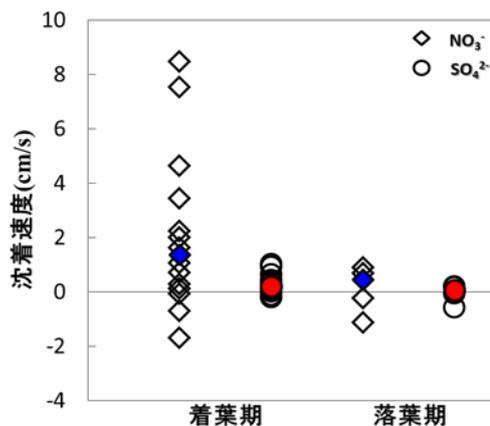


図 1 着葉期および落葉期の沈着速度の 25-75 パーセンタイル値 (塗りつぶしは中央値)

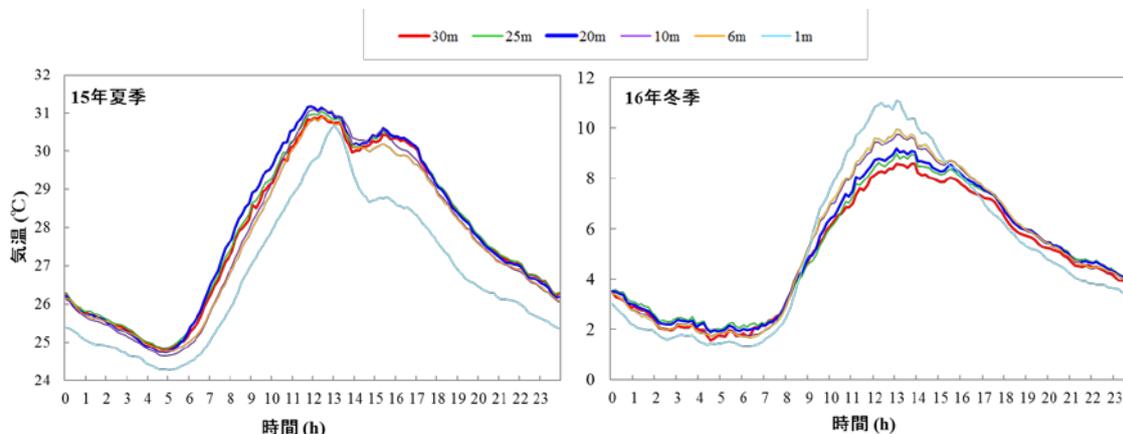


図 2 15 年夏季および 16 年冬季集中観測における各高度の気温のアンサンブル平均