<u>1.背景・目的</u>

経済発展の著しい東アジア地域において硫黄酸化物 などの大気汚染物質の排出量が増加傾向にある。それに 伴い、酸性沈着による生態系への影響が懸念されている。 これに関して近年、東アジア地域における乾性沈着 のフィールド観測の結果が報告されるようになり、 沈着速度に関する知見が蓄積されつつある(松田, 2007)。しかし、これらの研究において多く用いら れている濃度勾配法は大気を定常状態と仮定して 沈着フラックスを求める方法のため、長時間のサ ンプリングにおいては仮定の成立が難しい問題が ある。一方、比較的高濃度の物質に関しては渦相 関法等による直接測定が行われている。渦相関法 は、フラックスを求める上で仮定が少なく最も直 接的な観測方法とされている。しかし、10Hz 程度 の高時間分解能での大気中濃度測定が必要なため 温室効果ガスなど、適用可能な成分が限られてい る。そのためエアロゾル成分等の高時間分解能で の濃度測定が困難な微量成分において渦相関法に 準じる直接測定法として緩和渦集積(REA)法が提 唱されている。

そこで、本研究では東アジア地域におけるエア ロゾルの乾性沈着観測の精度向上を目的とし、 REA 法によるエアロゾルフラックス観測装置の開 発を行った。また、開発したエアロゾルフラック ス測定装置の試作機を実際の環境中に設置し、サ ンプリング精度の評価を行った。

<u>2.方法</u>

REA 法による沈着フラックスの測定方法は、超 音波風速計により三次元の風速を測定し、鉛直方 向(w)の風向きに合わせて捕集器を切換え、鉛直風 向別に大気中濃度を測定し、式(1)よりフラックス を算出する。

 $F = \beta_c \sigma_w (C^+ - C^-)$ (1) ここで F は沈着フラックス、 σ_w は鉛直風速の標 準偏差、 $C^+ \& C^-$ はそれぞれ鉛直風が上向き(w⁺) と下向き(w⁻)の時の目的成分濃度、 β_c は実験によ って求められる係数である。係数 β_c は、一般的に 渦相関法を用いて顕熱フラックスを求め、顕熱フ ラックスの β_h と目的成分の β_c が等しいと仮定し、 式(2)より β を算出し代用する。

 $w'T' = \beta_h \sigma_w (T^+ - T^-)$ (2) ここで、wT'は渦相関法によって求めた顕熱フラ ックス、 $T^+ \ge T^-$ はそれぞれ鉛直風が上向きと下向 10MB-002:三宅貴史

指導教員:松田和秀

きの時の気温である。

以上のような REA 法測定理論に基づき、試作機 の作製を行った。作製した試作機を用いてフィー ルド試験観測を行い、捕集精度の評価を行った。 観測場所は、明星大学 20 号館屋上、長野県北佐久 の電力中央研究所・森林試験サイト、東京農工大 学実習林・FM 多摩丘陵の3地点で行った。また、 捕集精度の検証のため、ローボリュウムエアーサ ンプラー(LV)を用いて"Reference"濃度の測定を 行い、試作機の各捕集ラインの合計による大気中 濃度と比較を行った。全ての試験観測において、 しきい値は±0.1m s⁻¹とした。なお、明星大学観測 及び北佐久観測は、試作機の流量問題や低濃度に より評価が出来なかったため、ここでは FM 多摩 丘陵観測について示す。

FM 多摩丘陵観測の観測期間は 2011 年 10 月 24 日~11 月 30 日、サンプリングは日中のみの 6~8 時間捕集で行った。"Reference"の測定にはインパ クター付き 2 段型フィルターホルダーを用い、試 作機と同様に粒径 2.5 μ m を境に分級捕集を行っ た。

また、北佐久観測における測定結果を用いて、 REA 法による沈着速度の推計を行った。北佐久観 測では観測鉄塔頭頂部に試作機を設置し、期間は 2011 年9月1日~9月7日、サンプリングは12時 間おきにフィルター交換を行い、日中と夜間の1 日2サンプルを得た。

さらに、今後、より精度よくフラックスを得る ためには、鉛直風向別の濃度差を明確にする必要 である。その為、各捕集ラインの捕集割合を均等 にする事を目的に、"deadband"のしきい値の検討 を行った。検討には、タイ国サケラート(乾季,雨 季,暑季)、長野県北佐久(夏季,冬季)、明星大学、 FM 多摩丘陵の超音波風速計データを用いた。

3.結果及び考察

【試作機の設計】

REA 法による観測装置の開発にあたり、本研究 においては目的成分を粒径 2.5 µm 以下のエアロ ゾル成分とし、開発を行った。図1に開発装置の 概要図を示す。3次元超音波風速計のセンサー部 付近に大気の捕集口を設け、吸引したエアロゾル は PM2.5 サイクロン(VSCC,16.39L min⁻¹)を用いて 分級し、鉛直風向別に各捕集ラインに分配するよ うに設計した。ここで捕集ラインには鉛直上向風





("Up")、鉛直下向風("Down")の他に"Up"と"Down" の中間として、鉛直風速にしきい値を設け、風速 が弱まった時に捕集するラインである"deadband" を設けた(L.Myles, 2007)。通常、"up"をプラ ス、"down"をマイナスとした時、鉛直風速の平均 値はゼロになることが望ましく、"deadband"の範 囲は、ゼロを中心にしきい値を設定する。しかし 観測場所における緩傾斜等の土地条件によって平 均値がゼロとならない場合があることから、鉛直 風速の平均値を中心にしきい値を設定し、観測地 点の状況に連動するよう設定した。上記の設定に て超音波風速計の演算部と連動させた電磁弁を用 い、時間分解能 0.1 秒で捕集ラインの切り替えを 行った。



図1. REA 法フラックス測定装置の概要

【試作機の評価】

図 2 に FM 多摩丘陵観測における粒子状 SO₄²⁻、 NO₃、NH₄⁺の試作機と"Reference"の相関図を示す。 図 2 より、上記 3 成分において 0.98 以上の高い相 関を得ることが出来た。また、近似直線の傾きは 1 に近く、測定結果は概ね一致している結果が得 られた。しかし、SO₄²⁻においては傾きが 0.75 と、 測定結果に差が見られた。この要因として、REA 法が鉛直風速別に大気を 3 つに分けて捕集してい ることから、分析誤差が影響したと考えらえられ る。その他の無機イオン成分に関しては低濃度の ため、測定精度を評価することが出来なかった。 以上に結果から、比較的高濃度の成分に関しては、 十分な測定精度が得られたと考えられる。

以上の結果を踏まえ、北佐久観測における測定

結果を用い、沈着速度の推計を行った。沈着速度 は得られた沈着フラックスを大気中濃度で除する ことで算出した。大気中濃度には各捕集ラインの 合計から求めた。解析した沈着速度の測定精度を 担保するため、大気中濃度に検定基準を設けた。 その結果、データの多くが棄却されたが、粒子状 SO₄²⁻において 3.2cm s⁻¹の値が得られた。この値は 2009 年夏季に同地点で濃度勾配法を用いて推計し た沈着速度の最大値 2.9cm s⁻¹とほぼ同等であるこ とから、REA 法による沈着速度を直接測定する事 が出来た可能性が高い。

【改善のための検討】

検討した結果、 σ_w と"deadband"の捕集割合に相 関がみられた。また、既存研究において"deadband" のしきい値設定に σ_w を用いた方法が提唱されて いた事から、 σ_w によるしきい値の解析を行った。 図3にタイ,北佐久,FM多摩丘陵における各ライ ンの捕集割合を示す。図3より、しきい値を0.1m s⁻¹に設定した場合、"deadband"の捕集割合が他の ラインと比べ低く、バラつきも大きいのに対して、 σ_w の0.4倍では各ラインの捕集割合が均等になり、 バラつきも小さくなった。地点による差も小さく、 いずれの地点においても同様の傾向が見られた。 以上の事から、東アジアの森林においては 0.4 σ_w が最も適していると考えられる。





松田ら,大気環境学会誌 42,261-270 (2007) L.Myles et al, Environmental Research Letters 2, 034004(8pp) (2007)