

デニューダー・フィルターパック法による微小粒子の 二次生成ならびにガス/粒子平衡に関する研究 坂本和彦（理工学研究科・教授）

1 研究目的

大気中微小粒子 ($PM_{2.5}$) は欧米において人への健康影響が明らかになり、既に環境基準が設定されている。わが国においても、長期にわたる曝露評価・疫学・毒性学研究成果として、 $PM_{2.5}$ の呼吸器系や肺がん発症への悪影響が報告され、都市部・都市近郊における濃度レベルから健康影響が懸念されており、国民の健康保護のため、2009年9月に環境基準が設定された。

本研究の目的は、大気中微小粒子の主要成分となっている二次生成の有機極性粒子について、正確な捕集法の確立、ガス/粒子分布に係る環境動態の解明、行うことである。

2 研究方法

図1に示すアニューラデニューダーフィルターパック法(AD-FP)によるカルボニル化合物のガス/粒子分布の測定方法を検討した。フィールド測定は2009/11/23～12/8の2週間に行った。エアロゾルマススペクトロメーター (AMS) 観測は埼玉大学キャンパス内総合研究棟10階にて行った。

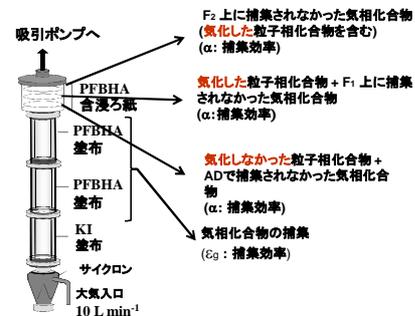


図1 ジカルボニル類捕集のためのAD-FPシステム

3 研究成果

3.1 サブミクロン粒子中の各成分の経時変化

埼玉大学地点におけるAMS観測によるサブミクロン粒子中の各成分の経時変化を図2に示す。図中の気象データは近隣の測定局(衛生研究所)で測定されたものである。風向は90°; 東、180°; 南、270°; 西、360°; 北を示している。観測期間を通して、冬季の支配的成分は炭化水素様有機物(HOA)と酸素化有機物(OOA)と硝酸塩であり、硫酸塩、塩化物は比較的低濃度であった。埼玉大学地点における揮発性微小粒子(NR- PM_{10})に対する各成分の割合は、有機物、硫酸塩、硝酸塩、塩化物、およびアンモニウム塩が、それぞれ39、8、22、8、23%であった。また、有機物に対するHOA、OOAの割合は、それぞれ28、30%であった。

成分毎の経時変化を比較すると、OOAと硝酸塩の挙動は類似していたが、夏季と異なりOOAとオゾンの濃度変化は異なっていた。また、冬季にも関わらず有機物中のOOAは約7割を占めており、有機物は比較的酸化が進行したの多いと推定された。しかし、夏季ではOOAとオゾンとの高い正の相関から、光化学反応によるOOAの二次生成が推定されたが、冬季におけるOOAは別途実施した微小粒子中のレボグルコサンの分析結果から、二次生成よりもバイオマス燃焼による含酸素有機粒子の排出の影響が考えられた。

3.2 AD-FPシステムによるジカルボニル化合物のガス/粒子分布

チャンバー実験ならびにフィールド測定により、AD-FPシステムによるジカルボニル化合物の捕集効率を調べたうえで、ジカルボニル化合物等について、冬季のガス/粒子分布の調査を行った。冬季におけるガス/粒子分布は夏季の測定からの予想に反して、夏季と同様な分布を示していた。ガスへの分布は夏季では

少なく、冬季ではむしろガスへの分布が粒子への分布より多くなっており、これまでのガス/粒子の平衡理論とは異なっていた。この結果は、冬季の日射強度は弱いため、光化学反応が低下し、酸性度の高い低分子量カルボン酸への酸化は抑制されるため、形成される微小粒子の酸性度は低くなり、さらにそれらの結果から粒子上での不均一酸化が抑制されることになり、これらの一連の反応過程の変化が、ガス状のジカルボニル化合物の比較的高い濃度での存在を導くこととなり、ここで実測されたガス/粒子分布と導いたものと推定された。

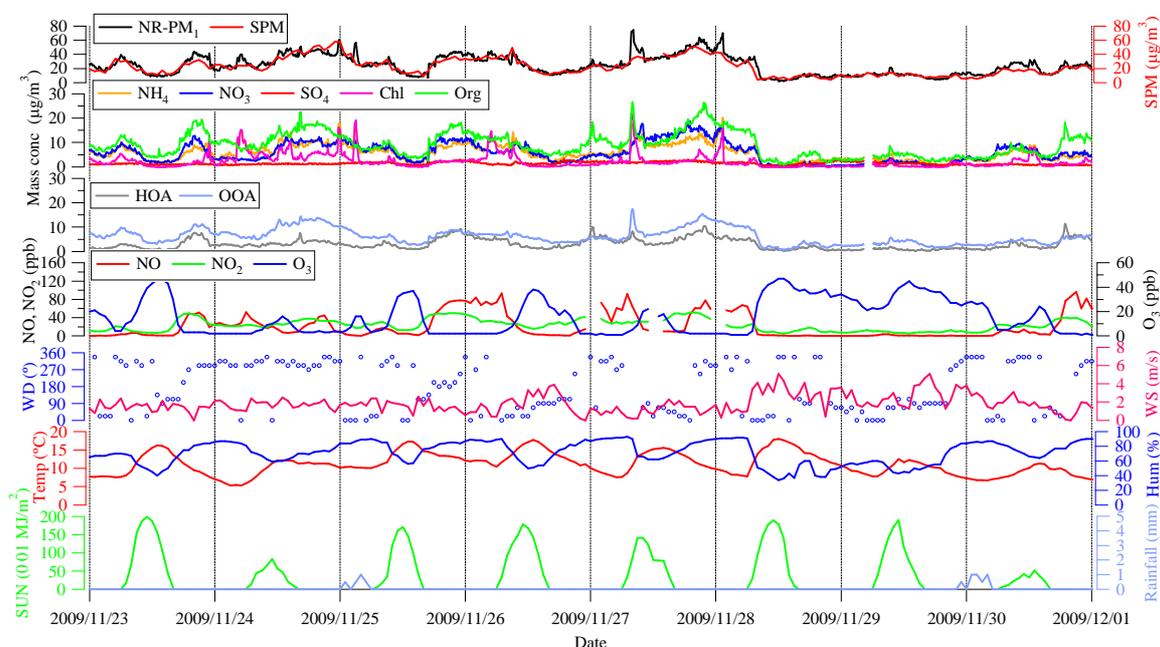


図2 冬季調査における NR-PM₁ (NH₄, NO₃, SO₄, Chl, Org (HOA+OOA)) と気象データ等 (SPM, NO, NO₂, O₃, Wind Direction, Wind Speed, Temperature, Relative Humidity, Solar radiation (SUN), Rainfall) の時間変化 (2009 年冬、埼玉大学)

研究発表

- 1) 熊谷貴美代, 飯島明宏, 田子 博, 小澤邦壽, 坂本和彦: 群馬県平野部および山岳部における微小状物質の季節特性, 大気環境学会誌, **45**, 10-20 (2010).
- 2) Kumagai K., Iijima A., Shimoda M., Saitoh Y., Kozawa K., Hagino H., Sakamoto K.: Determination of dicarboxylic acids and levoglucosan in fine particles in the Kanto plain, Japan, for source apportionment of organic aerosols. *Aerosol and Air Quality Research*, **10**, 282-291(2010).
- 3) Kumagai K., Iijima A., Tago H., Tomioka A., Kozawa K., Sakamoto K.: Characteristics of water-soluble organic carbon in atmospheric particles in the inland Kanto plain, Japan. *Atmospheric Environment*, **43**, 3345-3351 (2009).
- 4) Bao L., Sekiguchi K., Wang Q., Sakamoto K.: Comparison of water-soluble organic components in size-segregated particles between a roadside and a suburban site in Saitama, Japan, *Aerosol & Air Quality Research*, **9**, 412-420 (2009).
- 5) Bao L., Sakamoto K., Chemical Characterization of Water-Soluble Organic Acids in Size-Segregated Particles at a Suburban Site in Saitama, Japan. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, **3**, 42-51 (2009).
- 6) Ricardo O., Enya K., Sekiguchi K., Sakamoto K.: Experimental testing of an annular denuder and filter system to measure gas to particle distribution in phases of semivolatile bifunctional carbonyls in the atmosphere. *Atmospheric Environment*, **43**, 382-388 (2009).