

苫小牧森林大気における有機エアロゾルフラックス観測

持田 陸宏 [北海道大学低温科学研究所/助手]

背景・目的

地球温暖化を支配する太陽放射収支には、温室効果気体だけでなく、大気中の微粒子(エアロゾル)が光散乱/吸収や雲凝結核としての働きにより強く影響している。有機物はエアロゾル粒子の主要な成分の一つであるが、その生成源には森林から放出される揮発性有機化合物の大気酸化反応に伴う粒子化過程があり、ブルーヘイズ現象(森林で見られる青いもや)で知られるようにエアロゾル生成への寄与は大きい。本研究では、苫小牧フラックスリサーチサイトの観測タワーにおいて森林起源2次有機エアロゾルおよびその前駆体のフラックス測定を行い、生成量、大気中への放出量を明らかにし、更にその規定要因の解明を目指す。

内容・方法

本研究は、2003年夏季および秋季に、国立環境研究所の苫小牧フラックスリサーチサイトに設置されたフラックスタワー(高さ41m)で行った。この観測サイトは気象パラメータ取得のための設備が整っており、森林起源有機物の放出量の測定に十分な面積を持っていることから、本研究に最適であると判断した。エアロゾルの前駆体である森林起源の揮発性有機化合物(VOC; モノテルペン、イソプレン等)は、キャニスターサンプリング/GC-MS分析により樹高より上の2高度(22m、38m)で濃度を測定した。一方、エアロゾル粒子を構成する有機化合物であるカルボニル化合物などの半揮発性有機化合物(SVOC)は、アニューラーデニューダー装置でガスと粒子を分離捕集し(2高度)、GC-FIDを用いて定量した。VOCは一日6回、SVOCは一日5回の捕集を行い、得られた濃度の鉛直勾配から、フラックスの向きおよび大きさを見積もった。

結果・成果

VOC(イソプレン、 α -ピネン)、SVOC(グリコールアルデヒド、ヒドロキシアセトン、*n*-ノナナール、*n*-デカナール)濃度はいずれも日射と気温に対して正の相関を持つ日変動を示し、観測期間中は日中に濃度が上昇し、夜間に減少する傾向が見られた。SVOCのうちイソプレンの酸化過程で生成するグリコールアルデヒドやヒドロキシアセトンは、イソプレンの濃度変動と高い正の相関関係を示した。グリコールアルデヒドやヒドロキシアセトンは人為起源の放出生成も知られているが、イソプレン濃度との正相関は、今回の観測で測定されたものの多くは森林周辺の人為的な発生源から輸送されたものではなく、自然(森林)起源で

ある事を示唆している。また、SVOCの鉛直濃度分布について、*t*-検定を行ったところ、*n*-ノナナールと*n*-デカナールは高度が低いほど系統的に高い濃度を示す一方、グリコールアルデヒドやヒドロキシアセトンは高度による系統的な濃度の傾向は見られないことが判った。このことから、*n*-ノナナール、*n*-デカナールは主に樹木から直接放出され、下方に発生源があることから上方ほど希釈あるいは分解により濃度が低下していると考えられる。一方、グリコールアルデヒドやヒドロキシアセトンは、VOCであるイソプレンの光酸化過程で生成するものの寄与が大きく、既に上方に輸送された前駆体から生成するために、系統的な鉛直勾配が現れなかったと考えられる。このように、SVOCが、樹木等から直接放出しているのか、あるいは大気中の光酸化反応で二次的に生成するのかといった放出・生成過程の違いが、濃度の鉛直プロファイルの違いに反映されていることが今回の森林観測により初めて明らかになった。

更に、2高度のVOC濃度差の情報を基に、VOC、SVOCの鉛直フラックスを計算した。今回のサイトの樹種であるカラマツ林でのVOCフラックスの報告は数例しかないが、今回のフラックスの値は他の報告値と比較すると平均的なものであった。また、このフラックス値の妥当性を検証するため、日射と気温からそのフラックスの変動を推定したところ、日付、時間帯により実測値とのずれが認められた。このような食い違いが生じる原因としては、日によっては乱流拡散よりも局所的な自然対流の方がフラックスに寄与している可能性も考えられる。さらに本研究では、これまでほとんど報告例の無いSVOCフラックスも算出した。得られた値は大気中に放出されるSVOC量を見積もる上で、重要な情報であると考えられる。

以上、本研究では、VOCとSVOCの濃度変動の測定や、VOC、SVOCフラックスの見積もりから、森林大気における揮発性有機化合物の放出、酸化過程、その粒子化の機構、特徴の解明に向けて、有用な知見を得る事が出来た。

今後の展望

今回の観測研究では、今後の有機エアロゾルフラックス測定のためのプラットフォームを整備する事ができた。次回の観測では Relaxed Eddy Accumulation System(REA)装置を導入し、テルペン類、イソプレン等のVOCフラックスの1高度測定を行う事で、より定量的議論が可能なフラックス値が得られると期待される。また、今回の観測では、キャニスター、デニューダ捕集に加えて、Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor(MOUDI)を用いたエアロゾルの粒径別採取も行っている。現在冷凍保存されているMOUDI試料の組成分析を行い、粒子の生成、成長に対する有機成分の寄与について、分子レベルの解析を進める予定である。