

首都圏における硝酸及び硝酸塩エアロゾルの生成, 消失, 輸送過程

Seasonal variation of formation, loss, and transport of HNO₃ and particulate nitrate over the Tokyo Metropolitan Area

森野 悠 [1]; 近藤 豊 [2]; 大原 利真 [3]; 菅田 誠治 [4]; 竹川 暢之 [5]; 福田 真人 [6]

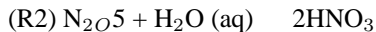
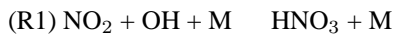
Yu Morino[1]; Yutaka Kondo[2]; Toshimasa Ohara[3]; Seiji Sugata[4]; Nobuyuki Takegawa[5]; Masato Fukuda[6]

[1] 東大・先端研; [2] 東大先端研; [3] 国環研; [4] 国立環境研; [5] 東大・先端研; [6] 東大・理・地球惑星

[1] RCAST, Univ. Tokyo; [2] RCAST, Univ. of Tokyo; [3] NIES; [4] NIES; [5] RCAST, Univ of Tokyo; [6] Earth and Planetary Sci., Univ. of Tokyo

硝酸塩エアロゾル(NO₃⁻)は都市における主要なエアロゾル成分の1つであるため、大気環境問題における重要性を持つ。NO₃⁻の生成・消失過程には大きな不確実性があるために、3次元化学輸送モデルによってNO₃⁻の観測値を再現することは困難である。本研究では3次元化学輸送モデルを用いて、TNO₃(=HNO₃+NO₃⁻)濃度の支配要因(生成, 輸送, 消失過程)を調べた。HNO₃とNO₃⁻を含む大気微量成分の集中観測が2004年の1-2月と7-8月に東京都目黒区, および埼玉県騎西町で行われた。この観測期間に合わせて、気象モデル(RAMS)と化学輸送モデル(CMAQ)の計算を行った。

TNO₃の生成反応は、日中にはR1の気相反応が、夜間にはR2の不均一反応が支配的であることが知られている。



R2の速度係数の計算に含まれる実験パラメタ(取り込み係数, $g_{\text{N}_2\text{O}_5}$)には0.002-0.05と大きな不確実性が報告されている[e.g., Mentel et al., 1999]。CMAQを用いた感度実験の結果, $g_{\text{N}_2\text{O}_5}$ の不確実性によって, TNO₃濃度には冬に70%と大きな不確実性があると計算された。また, 標準事例では東京でのTNO₃濃度に対する不均一反応(R2)の寄与は夏に6%, 冬に23%であり, 気相反応(R1)が主要な生成過程であると計算された。

HNO₃とNO₃⁻は化学的に安定であるために, 境界層内においては乾性沈着が主要な消失過程であり, この消失過程は全窒素酸化物(NO_y)の除去速度も支配する。そこで, TNO₃の消失速度を評価するためにNO_y{y}の一次排出後の残存率(R(NO_y))を用いた解析を行った。ここでは, 観測された $d\text{NO}_y/d\text{CO}$ 比をNO_x/CO比で標準化することで観測的にR(NO_y)を導出している。標準事例の計算では, 観測より導出したR(NO_y)の値を夏季に大きく過大評価しているのに対して, TNO₃の乾性沈着速度を5倍にした計算ではよく再現していた。この結果は, TNO₃濃度の数値計算を行う際に, 現在使用されているTNO₃の除去過程の計算スキームを改善する必要があることを示唆している。