

## 東京都区部における粒径 3nm からの大気中ナノ粒子の実態把握と新粒子生成イベントに関する研究

鶴丸 央

\*\*\*\*\*

【要約】PM<sub>2.5</sub>の中でも微小な粒径範囲に分布する大気中ナノ粒子の環境動態を把握するため、2021年4月から3~108nmの粒径範囲の粒子個数濃度観測を東京都環境科学研究所屋上で実施するとともに、ガス状前駆体が粒子を形成する初期過程である新粒子生成イベントについて解析を実施した。新粒子生成イベント後にPM<sub>2.5</sub>質量濃度の上昇が見られた事例では、2022年8月では硫酸が、2022年11月では有機物が粒子形成に中心的な役割を果たしたことが示唆された。

\*\*\*\*\*

### 【目的】

超微小粒子（ナノ粒子）は、粒径の減少に伴って単位体積あたりの個数濃度が増加することから雲粒の形成に大きく影響を与えるほか、呼吸器系のより深いところまで入り込むことから人体への影響も懸念され、その環境動態に関心が寄せられている。欧州では、自動車排出ガスについて、ナノ粒子を対象に粒子個数規制を既に開始している。低揮発性のガスがナノ粒子にとりこまれることで粒径が増大し、PM<sub>2.5</sub>の質量濃度を増大させるため、ナノ粒子の生成過程や成長過程について明らかにすることはPM<sub>2.5</sub>の環境基準を安定して達成する上で重要である。本研究では、ガス状前駆体がナノ粒子を形成する新粒子生成イベントについて解析を実施し、ナノ粒子がPM<sub>2.5</sub>質量濃度に与える影響について検討を行った。

### 【方法】

ナノ粒子は、TSI社製SMPS3938NL89（SMPS）を用いて東京都環境科学研究所屋上（6F相当）で測定を実施した。微分型移動度分級器により分級した粒子を凝結粒子カウンタで計測することで3~108nmの範囲を199の粒径区画に分け粒子個数濃度を測定した。新粒子生成イベントについて、粒子生成速度（Formation Rate; FR [particles cm<sup>-3</sup> s<sup>-1</sup>])、粒子成長速度（Grows Rate; GR [nm h<sup>-1</sup>])の解析を行うとともに<sup>1)</sup>、ナノ粒子の前駆体として硫酸と有機物に注目した解析を実施した。硫酸の前駆体であるSO<sub>2</sub>の濃度をThermo Model 48iにより測定し、日射量や相対湿度などから硫酸濃度の指標となる[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]proxy<sup>2)</sup>の値を算出した。有機物の指標として植物起源の揮発性有機化合物（Volatile Organic Compounds; VOC）であるモノテルペンとその酸化生成物の濃度をPTR-TOF（汀線科学研究所）により測定し、その比をとることで粒子化の指標とした。

### 【結果の概要】

- (1) 2022年度の観測において、新粒子生成イベントの直後にPM<sub>2.5</sub>質量濃度の増大が見られた3事例について図1に示す。いずれの事例においても正午付近に10nm未満の粒子数濃度が上昇しその後時間経過とともに最大濃度を示す粒径が大きくなっていることが分かる。新粒子生成イベントの開始からやや遅れてPM<sub>2.5</sub>質量濃度の上昇が見られた。二次生成粒子（人為起源粒子）の指標となるPM<sub>1.0</sub>質量濃度も同様に上昇していることから、新粒子生成により成長した二次生成粒子による質量増加であることが示唆される。
- (2) 図1に示した各新粒子生成イベントについて、SMPSのデータからFR、GRを算出した。また新粒子生成イベント期間の[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]proxy及びモノテルペン濃度とその酸化生成物濃度の比について平均値をとったものを表1に示す。8月6日と25日は[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]proxyの平均値が高く、また新粒子生成イベント発生時に[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]proxyの高いピークが見られたことから、硫酸が核形成に中心的な役割を果たした事例であることが示唆される。一方で11月27日の事例では[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]proxyの値は低いFRは8月6日の事例よりも高い値を示した。モノテルペンとその酸化生成物の比をとると新粒子生成イベント期間では0.81となっており、酸化を受けたVOCが核形成に中心的な役割を果たした事例であることが示唆される。

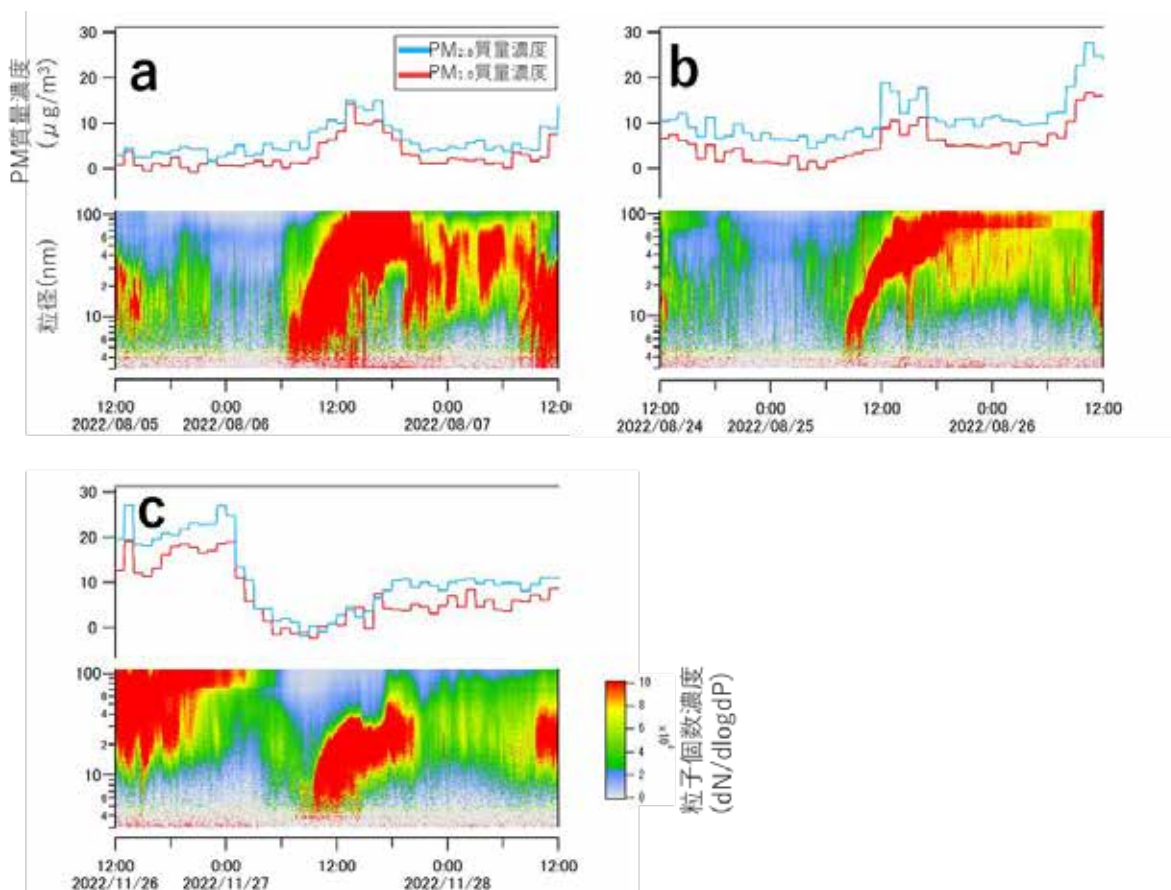


図1 2022年度に観測された新粒子生成イベントの中で、直後にPM2.5質量濃度の上昇が見られた事例。それぞれ a: 2022年8月6日、b: 2022年8月25日、c: 2022年11月27日に発生した新粒子生成イベント後に赤の折れ線グラフで示すPM1.0質量濃度と青の折れ線グラフで示すPM2.5質量濃度が上昇していることが分かる。

表1 図1に示した新粒子生成イベントにおける、粒子生成速度 (Formation Rate; FR [particles cm<sup>-3</sup> s<sup>-1</sup>])、粒子成長速度 (Grows Rate; GR [nm h<sup>-1</sup>])、[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]<sub>proxy</sub> の平均値、モノテルペンとその酸化生成物の比の平均値を示す。8月の2つの新粒子生成イベントは[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]<sub>proxy</sub>が高いことから硫酸による核形成が中心的な役割を果たしたことが示唆される。一方11月の新粒子生成イベントでは[H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]<sub>proxy</sub>の値が低い代わりにモノテルペンの酸化生成物の比が高く、有機物による核形成が中心的な役割を果たしたことが示唆される。

イベント日	FR [particles cm <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> ]	GR [nm h <sup>-1</sup> ]	[H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ] <sub>proxy</sub> [ppb]	<i>monoterpene oxide</i> <i>monoterpene</i>
2022/08/06	2.72	3.37	10.07	-
2022/08/25	1.20	7.05	4.45	-
2022/11/27	3.54	1.30	0.63	0.81

【参考文献】 1) Kulmala et al., Nature Protocols, 7(9), 1651–1667, 2012

2) Mikkonen et al., Atmospheric Chemistry and Physics, 11(21), 11319–11334, 2011