

# HOx ラジカルの動態に関する研究 —OH 反応性と大気微量成分計測

黎珈汝

キーワード：対流圏大気化学、OH 反応性、HOx ラジカル、HOx 収率

## 1. 緒論

OH ラジカル及びHO<sub>2</sub> ラジカルはまとめてHOx ラジカルと呼ばれ、対流圏化学に様々な影響を与え得る非常に重要な化学種である。特に、O<sub>3</sub>及び二次有機エアロゾル(SOA)の形成プロセスに大きく寄与することが知られている。また、OH ラジカルはその反応性の高さから、大気化学で最も重要な化学種の一つとして認識されており、有機化合物を含めたほとんどの化学種と反応する。しかし、実大気中におけるこれらのラジカル動態に関する研究はまだ十分に確立されておらず、多くの未知の部分が存在する。そこで本研究では、OH 反応性と大気微量成分の計測により大気中のOH ラジカル挙動を明らかにすることを目的として実験を行った。さらに、ラジカルの高感度検出のため、装置の改良を行った。

## 2. 実験方法

(1) **装置改良** Fluorescence assay by gas expansion in Lille University (UL-FAGE) 実験システムのキャリブレーションを行った。そのために、酸素の吸収断面積を様々な実験条件下で決定した。次に、laser-pump and laser induced fluorescence (LP-LIF) 実験システム改良のための実験を行った(京都大学)。OH ラジカルの消失速度に対する反応セルの影響を調査するため、反応セル内に細いアルミニウム管を設置した。

(2) **夏季観測** 環境観測キャンペーンは、2017年夏、つくば市で一週間以上行った。OH 反応性測定にはLP-LIF法を用いた。更に、種々の検出器を用いて、50種以上の微量成分を検出した。また、風向、速度、日照量、降雨量などの気象条件も観測した。

## 3. 結果と考察

(1) **装置改良** UL-FAGE: 測定したO<sub>2</sub>の吸収断面積は、十分に高いO<sub>2</sub>濃度条件では温度およびガス流量に依存しなかった。一方、ランプ電圧には依存していることを明らかにした。これらの値はUL-FAGEシステムにおいてラジカルの絶対濃度を決定する上で非常に重要となる。LP-LIF: 反応セルの内部に、細いアルミ管を設置することで、反応セルの内径を小さくした。その結果、OH ラジカル生成直後の速い熱拡散を抑えることに成功した。

(2) **夏季観測** 測定した各微量成分の濃度を使ってOH 反応性を解析した。平均の総OH 反応性は18.3 s<sup>-1</sup>、また、未知のOH 反応性は最大50.4%であった。無機化合物と芳香族化合物はOH 反応性に影響を与える主要物質として、其々25.1%と8.4%を占めた。また、重水素を使用したHOx 収率測定の可能性について検討した。

## 4. 結論

総OH 反応性は、時間とともに変化することが分かった。上記の変化は大気輸送によって引き起こされた可能性がある。また、未知のOH 反応性はオゾン生成に寄与することを明らかにした。更に、以前の観測と比較した結果、未知のOH 反応性が同じソースであることが示唆された。この研究は、未知のOH 反応性の原因が、OVOC及びBVOCのなかで未検出な成分である可能性が高い。したがって、今後は大気微量成分の検出技術を促進する必要がある。OH ラジカル動態を研究することで未知反応性を解明し、大気中のオキシダント生成プロセスの理解を進め大気汚染問題を解決することに貢献できると考えられる。