

# 富士山体を利用した自由対流圏高度におけるエアロゾル-雲-降水相互作用

大河内博・名古屋俊士<sup>1</sup>、三浦和彦・永野勝裕<sup>2</sup>、皆已幸也<sup>3</sup>、小林拓<sup>4</sup>、片山葉子<sup>5</sup>  
1. 早稲田大学、2. 東京理科大学、3. 石川県立大学、4. 山梨大学、5. 東京農工大学

## 1. はじめに

雲はエアロゾルを凝結核として生成し、その成長過程で水溶性ガスを吸収する。雲粒径が臨界直径より小さければ、雲粒は消失して気相にエアロゾルを放出するが、この過程を通じてエアロゾル径を増加させるとともに、水溶性成分を増加させる。雲粒径が臨界直径より大きければ、雲粒はさらに液滴成長して併合衝突により雨滴となって地上に落下する。このエアロゾル-雲-降水相互作用(図 1)は、地球温暖化とその環境影響の将来予測の観点から注目されている。

本研究では、自由対流圏高度に位置する富士山頂で雨水、雲水、水溶性ガス・エアロゾルの連続観測を行い、日本上空のバックグランド大気濃度の解明を行うとともに、エアロゾル-雲-降水相互作用について検討した。とくに、雲粒液滴分布に影響を及ぼすと考えられる大気中フミン様物質の動態、雲粒生成に関わる諸特性、バイオエアロゾルの実態解明などを目的に、早稲田大学、東京理科大学、東京農工大学、山梨大学、石川県立大学の共同観測として行った。

## 2. 観測期間・観測地点・観測項目

観測期間は 2009 年 7 月 17 日～8 月 25 日であり、7 月 17 日～30 日までは泊まり込みでの集中観測を行った。観測地点は、富士山頂(富士山測候所、3776 m)、富士山南東麓(太郎坊、1300 m)、富士山北西麓(名大太陽研、1000 m)である。観測項目は、エアロゾル物理特性(粒径分布、光学特性、吸湿特性)、エアロゾル化学特性(水溶性主要無機成分、水溶性有機物(WSOC)、HULIS、PAHs)、エアロゾル生物特性(細菌株の同定と細菌数)、ガス状物質(VOCs、酸性ガス、アンモニア)、雲水・雨水・露水中化学成分(主要無機成分、溶存有機炭素(DOC)、HULIS、VOCs)である。

## 3. 観測結果

### 1) 早稲田大学と山梨大学の共同観測

2009 年 7 月は梅雨明けが遅く、天候不順であったことから、富士山頂では観測期間中に 54 試料の雲水が得られた。図 2 には、得られた観測結果の一例として、雲水中フミン様物質(HULIS)濃度の経時変化を示すが、HULIS 濃度は日中に高く、夜間低いという明瞭な日変動を示している。これは 2008 年に富士山南東麓で得られた大気エアロゾル中 HULIS 濃度の経時変化と類似している。富士山頂の雲水では、富士山南東麓で同時期に得られた雲水、雨水、大気エアロゾル中 HULIS に比べてフミン酸の割合が高い傾向にあるが、日中にはフルボ酸の割合が増加した。

自由対流圏高度における雲水中 HULIS の濃度変動、フミン酸とフルボ酸の割合は世界的にも本研究により初めて明らかになった。

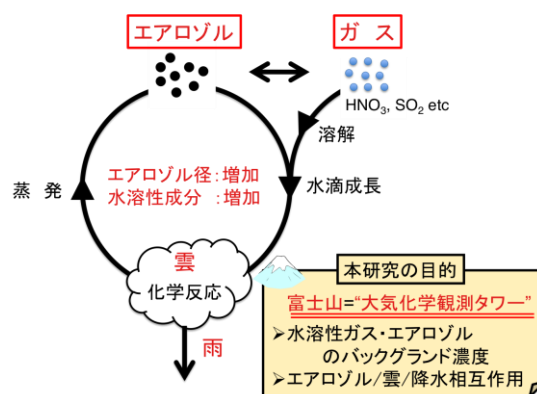


図1 エアロゾル-雲-降水相互作用と本研究の目的

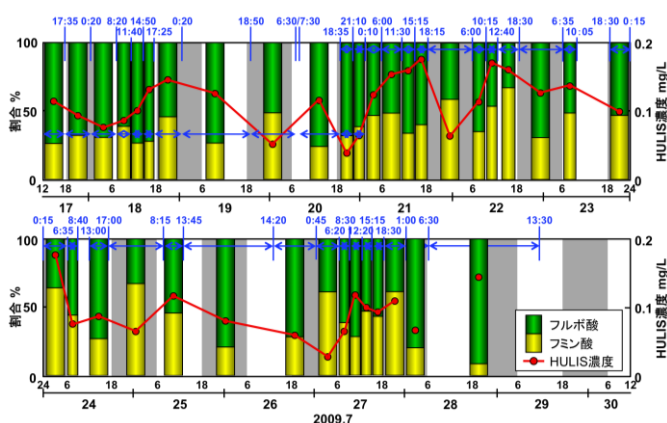


図2 富士山山頂における雲水中 HULIS 濃度の経時変化  
(背景色が白:日中、背景色が灰色:夜間)

## 2) 東京理科大学理学部の観測

### 2-1) はじめに

基礎生産性の高い海域から放出される生物起源気体は、海洋エアロゾル粒子の重要な起源である。粒子数が増加することにより、雲は大気中の放射強制力を増し、温暖化を抑制するという仮説が提唱されている。しかし、大気境界層には海塩粒子が存在するので新粒子生成は起こりにくく、海面付近でナノ粒子の増加を観測した例は少ない。そして、それらも自由対流圏で生成したものが高気圧下で沈降したものであろうと考えられている。富士山山頂は年間を通して自由対流圏内に位置することが多い。そこで、新粒子生成のメカニズムを調べるために、2006年から夏季だけではなく、山頂においてサブミクロン粒子の粒径分布を測定した。また、大気境界層内エアロゾルの山頂への影響を調べるために山麓において、同時に測定した。また、同時に個々の粒子の形態観察、元素分析を行った。(三浦) また、エアマスのトレーサーとして、ラドン濃度を測定した。(永野)

### 2-2) 方法

富士山山頂(3776m)と太郎坊(1300m)において2009年7月17日～8月25日に連続観測を行った。外気を拡散ドライヤーで20%以下に乾燥させ、走査型移動度分析器(SMPS)と光散乱式粒子計数器(OPC KR12、小林)を用いて4.4～5000nmにわたる粒径分布を測定した。低圧カスケードインパクターにより電子顕微鏡用メッシュ上に粒子を捕集した。透過型電子顕微鏡により形態観察を行い、エネルギー分散型X線分析器により個別粒子の元素分析を行った。

### 2-3) 結果と考察

山頂で2009年にSMPSで測定した粒径分布を図3に示す。ほぼ毎日直径10nm以下の粒子が高濃度となるイベントが観測された。3時間以上継続するイベントは日中4回、夜間9回の計13回観測された。2006年からだと、夏期108日間の測定中、65回観測されたことになる。また、このイベントは日中より夜間に多かった。そのほとんどが太郎坊では観測されなかったことから、下層から輸送されたものではないと思われる。

イオンバーストが同時に発生した可能性(松木)は13イベント中、1回しか観測されなかった。また、その時は雨が降っていた。化学天気予報図の硫酸塩の飛来予測、天気図、地上風向をもとにエアマスの起源を推定すると、大陸起源が7回、海洋起源が6回と推定された。イベント前の粒子数濃度は、大陸起源が200～1500、海洋起源が200～900個/cm<sup>3</sup>と海洋起源の方が低かった。新粒子生成に特徴的なバナナシェイプは、半日以上続いたイベントが2回、6時間以上続いたイベントは3回あった。これらのイベントは海洋起源の時に4回観測された。

以上より、海洋生物起源の新粒子生成の明らかな証拠はみられなかったが、海洋起源のときに、イベント前の粒子数濃度が低く、継続時間も長いことから、その可能性が示された。

バックグラウンドの組成を知るために、低濃度時に捕集した6サンプルを中心に分析した。いずれも降水現象があり、雲にならなかった残留粒子を分析しているかもしれない。図4に結果を示す。6例とも、SとCaを主成分とする粒子が多かった。その他にNa,Kを比較的多く含むサンプルが1例あった。Na,S,Caの質量の割合をみるために、三角ダイヤグラムで表したところ、硫酸ナトリウムと硫酸カルシウムの内部混合粒子が多かった。また、これらの粒子の形態は対をなすリボン状を示し、結晶が成長したようにも見える。詳細については今後の課題である。

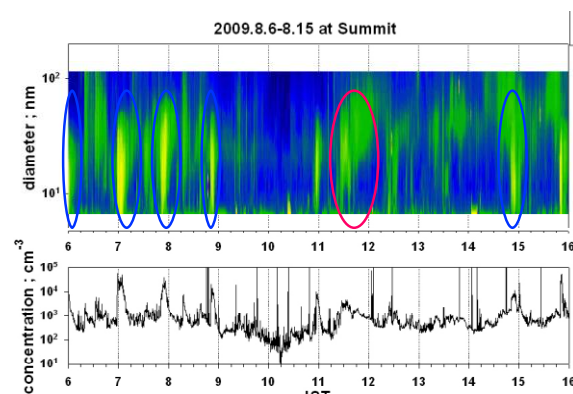


図3 山頂でSMPSにより測定した粒径分布

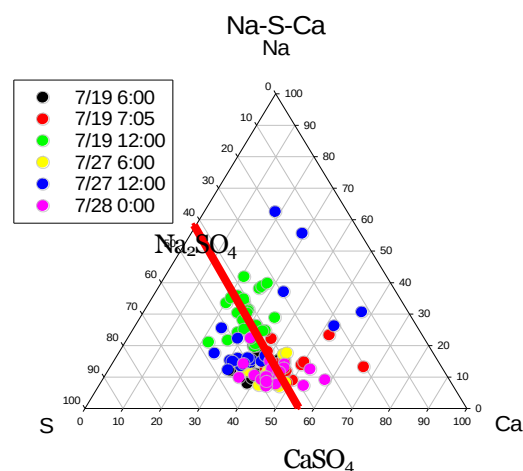


図4 個々の粒子を組成するNa,S,Caの質量の割合

### 3) 東京理科大学理工学部の観測

理科大で独自に作成した大気中のラドン( $^{222}\text{Rn}$ )輸送をシミュレートする簡易型の全球および領域ラドン輸送モデルの上層における有効性を検証するため、また、下層から上層へのラドンの鉛直輸送を検討するために、富士山頂および太郎坊においてラドン濃度の観測を行った。観測は、山頂では4時間毎、太郎坊では1時間毎に自動的にフィルターに大気を吸引して大気中のラドン壊変生成物を捕集し、その $\alpha$ 線を計数することにより行った。

山頂については2009年7月18日～8月25日、太郎坊については2009年7月16日～8月25日の期間の結果が得られ、異常値もあったが、図の細線で示すように、同期間の山頂(図上)および太郎坊(図下)におけるラドン濃度の特徴的な時間変化が観測できた。また、同図には、山頂および太郎坊におけるモデルによるシミュレーション結果(太線)も示している。山頂および太郎坊における観測された濃度変動には、2008年と同様に、濃度の極小値の変動に見られる数日にわたる変動とそれに加えて日変動が観測された。このうち数日にわたる観測された濃度の変動はラドンの長距離輸送のような総観規模現象による影響と考えられ、総観規模現象による輸送をシミュレートしているモデルにより計算された濃度の変動とよく一致している。このことから、モデルの上層における有効性が検証され、さらに、数日にわたる濃度の変動はラドンの長距離輸送のような総観規模現象による影響であることがわかる。また、濃度の日変動に関しては、2008年の観測では、その変動のパターンから山頂では山谷風(日中増加、夜間減少)、太郎坊では山谷風または大気安定度(日中減少、夜間増加)による影響があることがはっきりとわかったが、2009年の観測では、山頂、太郎坊ともに日変動へのそれらの影響がはっきりとは現れていなかった。

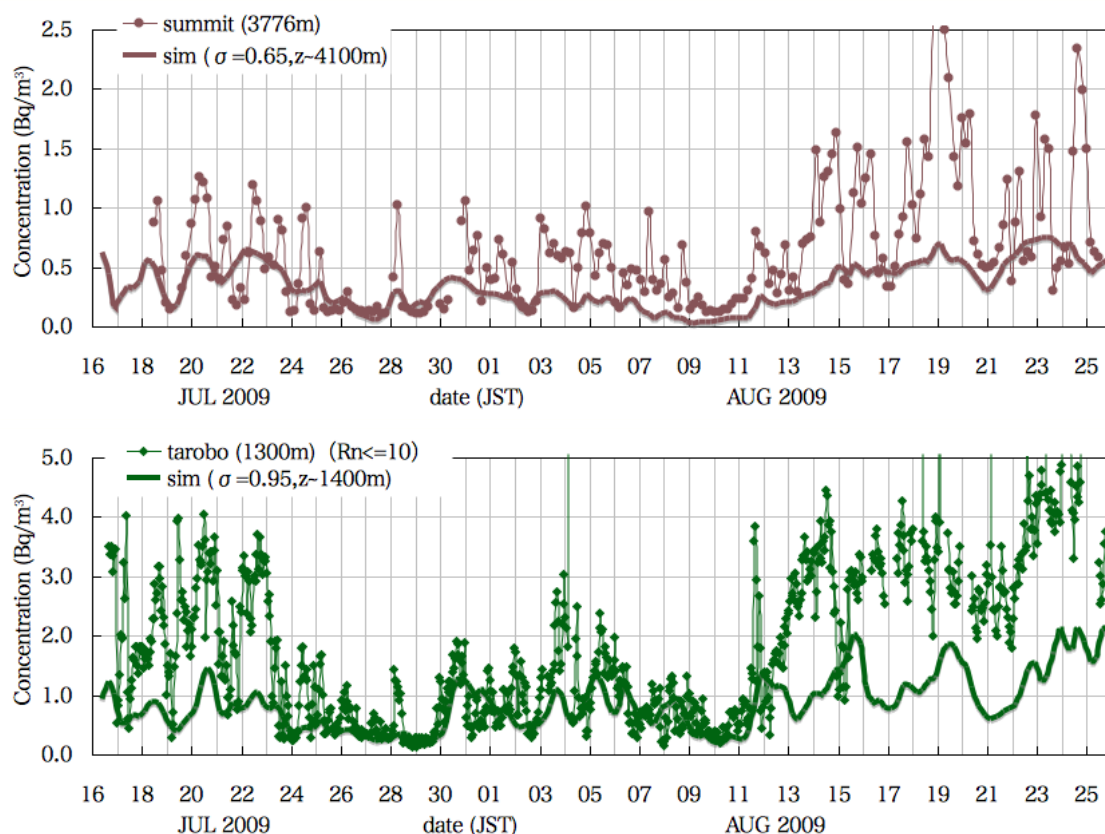


図5 山頂(上図)と太郎坊(下図)でのラドン濃度の観測結果(細線)と計算結果(太線)

#### 4) 石川県立大学の観測

2009年7～8月に富士山北西麓(名大太陽研富士観測所)で得られた降水試料は8個であった。この期間には他の地点と同様に降水量が多かったため、溶存成分の濃度としては昨年と比較して低いものが多かった(図6)。なお、 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比は、両年で大きな違いが見られなかった。

同地点で観測したエアロゾルの粒子数濃度は、降水が多く見られた8月中旬ごろまでは変動が激しかったが、それ以後は比較的安定した推移を示し、この両期間で明瞭な違いが現れた(図7)。後半の特徴としては、 $0.3\mu\text{m}$ 以上や $0.5\mu\text{m}$ 以上で数濃度が前半より高かったのに対し、 $5.0\mu\text{m}$ 以上では逆に前半より低くなったことが挙げられる。

太郎坊で観測したオゾン濃度の推移は、大きく3つの期間に分けられた(図8)。すなわち、7月25日ごろまではやや高かったが、以後は8月中旬ごろまで非常に低くなった。その後の期間は、上記でエアロゾル数濃度が安定したのと同じ期間であり、全体として高めであったほか、更なる高濃度のピークが時々見られた。これらの推移は、加藤(首都大)が観測した富士山頂での傾向とも一致するものであった。

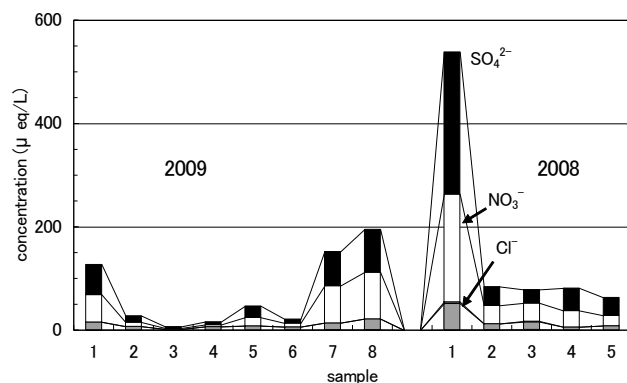


図6 名古屋大学太陽地球環境研究所における  
降水中の陰イオン成分濃度  
(左側の8試料が2009年、  
右側の5試料が2008年のもの)

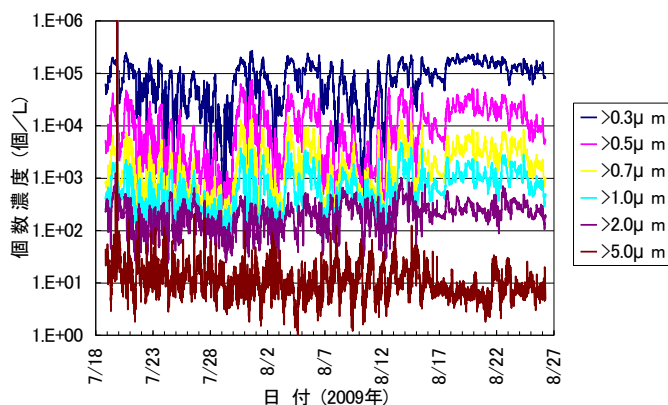


図7 名古屋大学太陽地球環境研究所における  
エアロゾルの粒径別数濃度の推移

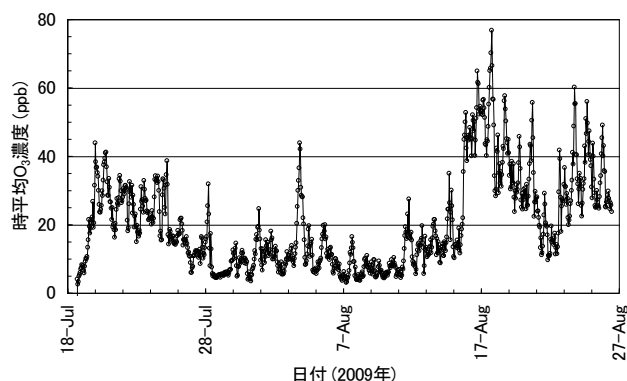


図8 太郎坊におけるオゾン濃度の  
1時間平均値の推移



## 5) 東京農工大学の観測: 富士山頂及び太郎坊のバイオエアロゾルの微生物

### 5-1) 研究の背景と目的

バイオエアロゾルは花粉、細菌、カビ、孢子などの生物由来の大気中の浮遊物を指す。これまでは公衆衛生の視点から病院や食品系工場などの室内環境を中心としてバイオエアロゾルの研究が行われてきた。一方、自然環境においては、大陸の黄砂が偏西風に乗りわが国へ到達するなど、大陸を超えた大規模な長距離輸送が明らかになるにつれ、より広い視野を対象とする研究が急がれている。

本研究では、大気中のバイオエアロゾルの微生物について研究をスタートするにあたり、農工大農場で採取した試料を用いて基礎的な実験条件の確認を行うと共に、富士山山頂と太郎坊において採取したバイオエアロゾルについて、顕微鏡観察による微生物の菌密度の測定と特定の遺伝子に着目して系統学上の解析を行う PCR-DGGE 法により微生物叢を調べることを目的とした。

### 5-2) 方法

バイオエアロゾルの採取は、農工大農場(高さ 4.8 m)、富士山山頂旧測候所及び太郎坊、さらに比較として立山室堂平(標高 2450 m)において行った。採取には滅菌済みメンブランフィルター(孔径 0.22  $\mu$ m)に、流量計とポンプを用い、操作は無菌条件下で行った。採取後のフィルターは下山までは氷冷し、その後は-20℃のフリーザーに保存した。

微生物の菌密度は DAPI による蛍光染色を行った後に、蛍光顕微鏡を用いて計数した。また、遺伝子解析のためにはフィルターから全 DNA を抽出し、その後細菌の特定の遺伝子を増幅するために 16S rRNA 遺伝子に特異的なプライマーを用いて PCR 反応を行なった。増幅された DNA は、変性剤濃度勾配下で電気泳動を行いことで塩基配列の差に基づき分離を行なった(PCR-DGGE 法)。得られたそれぞれの DNA バンドはゲルから切り出し、抽出を行なった後にその塩基配列を決定し、さらにデータベースとの比較により系統解析を行った。富士山では 2009 年 7 月 26 日～8 月 26 日、立山では 8 月 13 日、10 月 13～15 日にバイオエアロゾルの採取を実施した。

### 5-3) 結果

農工大農場で採取した試料の菌密度は  $10^6$  cells/m<sup>3</sup> のオーダーであったのに対し、富士山では  $10^4 \sim 10^5$  cells/m<sup>3</sup> であり、より低い菌密度を示した(図 9)。2008 年の山頂での測定では、太郎坊に比較して生物由来以外のダストとみられる微粒子が多数確認されている。本年度の試料においても昨年同様の微粒子が多数含まれており、これが計数値に含まれていた可能性が考えられる。立山のデータは高めの計数値が得られたが、これは大陸からの移送によるものかもしれないが、現時点でははっきりしたことは不明である。今後、ローカルと長距離の輸送の区別も含めた検討が必要である。遺伝子解析によるバイオエアロゾルの細菌については、農工大の試料についての解析が終了し、複数の DNA バンドが確認された。今後これらの系統解析を進めると共に他の試料についても PCR-DGGE を行う予定である。

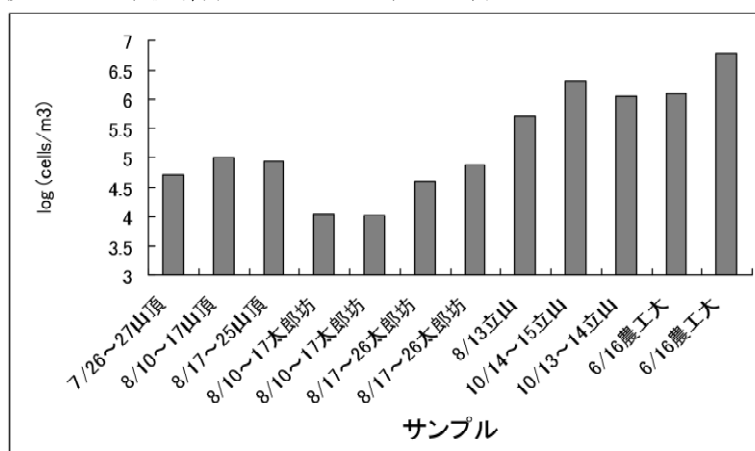


図9 バイオエアロゾル中の微生物の菌密度

謝辞 本研究の一部は郵便事業株式会社平成 21 年度年賀寄附金配分事業により行われた。

\*連絡先: 大河内博(Hiroshi OKOCHI)、[hokochi@waseda.jp](mailto:hokochi@waseda.jp)