

富士山頂における日中と夜間に発生する新粒子生成イベントの長期観測

五十嵐博己¹, 森樹大¹, 三浦和彦¹, 矢吹正教², 岩本洋子³, 和田龍一⁴,
加藤俊吾⁵, 大河内博⁶, 鴨川仁⁷, 永野勝裕⁸

1.理科大理, 2.京都大, 3.広島大, 4.帝京科学大, 5.首都大, 6.早稲田大, 7.静岡県立大, 8.理科大理工

1. はじめに

大気中では、前駆ガスが化学反応することにより核生成を起こし、それに引き続き凝結成長することで微小粒子(粒径:数十 nm 以下)が生成される。その過程を新粒子生成(New Particle Formation; NPF)という。大気中の核生成が始まる粒径は1.5 nm(±0.4 nm)と推定¹⁾されており、25 nmまでの範囲に主に影響を与える。そのため、太陽光を強く散乱し、気候に影響を及ぼす(直接効果)。さらに、生成された粒子の一部が雲凝結核としての能力を持ち、雲粒の大きさや雲粒数を変化させ、雲の放射特性をも変化させる(間接効果)。以上のことから、NPFは地球の放射収支を推算する上で、重要なプロセスである。

これまでの先行研究では、NPFは日中で多く観測され、NPFの生成メカニズムは光化学反応によるものが多いと考えられてきた。しかし実際には、夜間にも発生している例も報告されている²⁾。そこで、観測例が少ない夜間イベントのメカニズムを明らかにすることは重要である。

日中・夜間共に蒸気圧の低い硫酸(H₂SO₄)がNPFの一般的な核種であると考えられている³⁾。しかし、日中は光化学反応によりOHラジカルが生成されるが、夜間は日射がないため、揮発性有機化合物(VOCs)のオゾン(O₃)酸化反応などで二次的に生成されるOHラジカル⁴⁾などが粒子化に影響を与えることも報告されている。しかし、このように新粒子生成や成長のメカニズムはローカルな影響が強く、複雑で十分に理解されていないのが現状である。

富士山頂では、世界でも数少ない自由対流圏の大気を定点観測出来る他、東アジア域からの前駆ガスとなりうる越境大気を観測出来ることや谷風による大気境界層の空気塊による影響を捉えることも出来るといった利点をもつ。

そこで本研究ではこの利点を活かし、2006年から2019年にわたる長期的な観測を行った。その結果から、自由対流圏内におけるエアロゾル数濃度の変化やNPFの経年及び日変化を調べると共に、日中と夜間に発生するNPFイベントの発生要因について、統計的な解析を基に考察を行った。

2. 方法

2006年から2019年までの夏季(7~8月, 2007年のみ7~9月)に、富士山特別地域気象観測所(35.360°N, 138.727°E, 3776 m a.s.l.)においてエアロゾル個数粒径分布測定装置(①DMA3085+CPC3022, ②SMPS 3034, ③DMA3081+CPC3775; TSI)を用い、大気観測を行った。解析には、拡散ドライヤーにより相対湿度30%以下に乾燥させた粒径①4.70~148.6 nm, ②10.4~469.8 nm, ③14.9~626.4 nmのエアロゾル個数粒径分布を連続測定したデータを用いた。

本研究では、NPFによる影響を定量的に調べるため、粒径25 nm以下(核生成モード)の粒子数濃度が1時間以上増加し成長を伴う現象をNPFイベント(以下、イベント)と定義した(図1)。

また、NPFにより発生した粒子の成長のしやすさを調べるために成長速度(Growth Rate; GR)を算出した。GRはイベント時の10~25 nm内にあるモード径に対し回帰直線を引くことで算出し、決定係数が0.6以上のものを有効な値として用いた。富士山頂に到達した気塊の由来を調べるために、NOAA HYSPLIT 4 model (<https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>)を用いて、後方流跡線解析を行った。

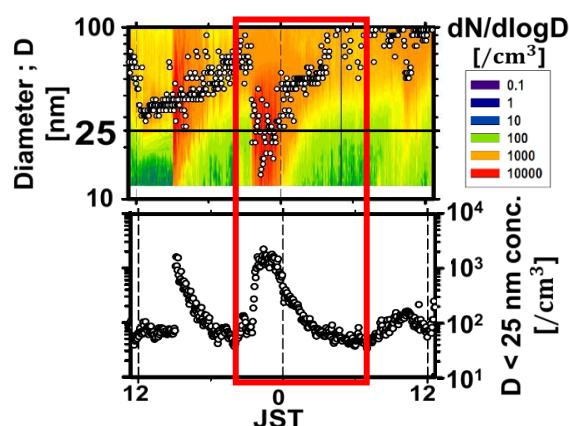


図1 個数粒径分布とNPFイベント(四角で囲った範囲)
上図○はモード径(同時刻における最大数濃度の粒径)を示す。

3. 結果と考察

2006 年から 2019 年までのエアロゾル数濃度変化を図 2 に示す。ここでは、装置による器差および流量補正を行った同粒径範囲 (14.9～148.6 nm) での数濃度を示す。図 2 の結果より、2006 年から 2019 年まで富士山頂で観測されるエアロゾル数濃度が年々減少していることが分かった。2006 年から 2019 年で 27.9%減少した。これは、国内の二酸化硫黄 (SO₂) や VOCs などの大気ガス及び浮遊粒子状物質 (SPM) や微小粒子状物質 (PM_{2.5}) といった粒子まで環境基準による排出規制が行われてきたことが要因の一つに考えられる⁵⁾。また、富士山頂では東アジア域からの越境大気が観測されることもあり、特にエアロゾルの排出量の多い中国においても SO₂ や PM_{2.5} などの排出量が減ってきていることも影響しているのではないかと考えられる^{6), 7)}。

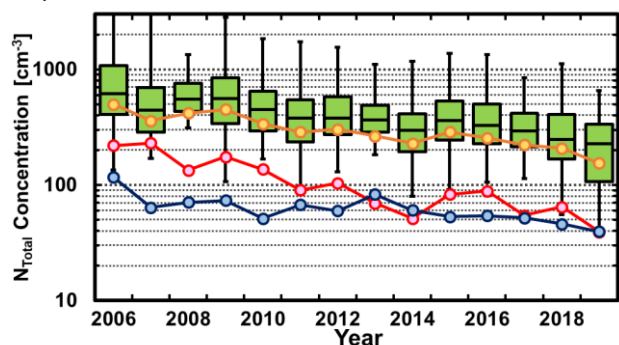


図 2 2006～2019 年の総粒子数濃度の経年変化(箱ひげ)及びモード(核生成, エイトケン, 蓄積)平均値の経年変化
粒径範囲は総粒子 (14.9～148.6 nm), 核生成モード (14.9～24.6 nm), エイトケンモード (26.4～96.5 nm), 蓄積モード (103.7～148.6 nm)とした。

また、富士山頂の粒子数濃度分布には 3 つのモードが確認できる。粒径 25 nm 以下の核生成モード、25～100 nm のエイトケンモード、100 nm 以上の蓄積モードの三つである⁸⁾。この三つのモードの中で核生成モードの減少率が最も大きく、2006 年から 2019 年にかけて 17.8%の粒子数濃度が減少した (図 2)。このモードは、NPF による影響が大きいので、NPF の発生頻度の減少または、NPF により生成される粒子数濃度の減少による影響を受けた可能性がある。そこで、各観測年における NPF イベントの発生頻度及び特徴に関して考察を行った。

表 1 2006～2019 年におけるイベント観測頻度

日中:5～19 時, 夜間:19～翌 5 時

赤字は各観測年における高い割合のイベントを示す。

Year	Sample days	Total events	Daytime events		Nighttime events	
		Times	Times	Fraction [%]	Times	Fraction [%]
2006	45	11	8	72.7	3	27.3
2007	39	20	5	25.0	15	75.0
2008	38	12	3	25.0	9	75.0
2009	40	28	8	28.6	20	71.4
2010	39	23	9	39.1	14	60.9
2011	41	28	14	50.0	14	50.0
2012	35	25	7	28.0	18	72.0
2013	35	22	6	27.3	16	72.7
2014	34	8	4	50.0	4	50.0
2015	32	21	8	38.1	13	61.9
2016	39	27	21	77.8	6	22.2
2017	40	20	19	95.0	1	5.0
2018	41	25	22	88.0	3	12.0
2019	43	21	11	52.4	10	47.6
Total	541	291	145	49.8	146	50.2

表 1 に 2006 年から 2019 年までの観測日数とイベント数を示す。富士山頂における日の出・日の入時刻より日中イベント (5～19 時) と夜間イベント (19～翌 5 時) に分け、日中・夜間別の回数・割合も示す。この結果より、2011・2014・2019 年を除いた 2007 年から 2015 年では夜間イベントが 60%以上みられ、2006・2016～2018 年では日中イベントが 70%以上あることが分かった。ここから、年々日中イベントの割合が高くなっていることが確認された。

次に、年毎に違いが現れる日中・夜間イベントに着目し考察する。日中と夜間のイベントの特徴を見るために、イベント観測開始時刻の頻度を図 3 に示す。図 3 から、日中イベントは 8 時、12～13 時と 2 つ、夜間イベントは 20 時に 1 つのピークを持つことがわかった。このことから、NPF イベントに 3 つの主要なプロセスがあると考え、以下で考察する。

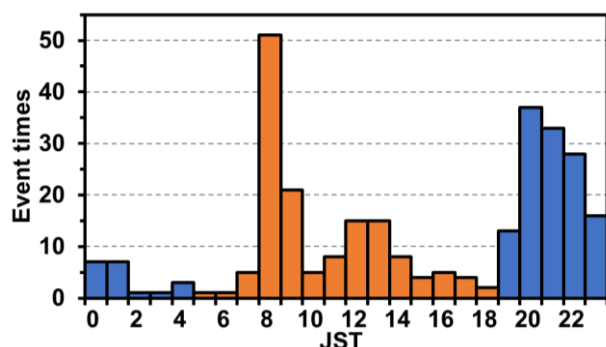


図 3 2006～2019 年に観測されたイベントの観測開始時刻

日中・夜間問わず成長時間が 2 時間以上のイベントが 8 割を占めていた。この結果から、NPF が発生した場所が広域かつ継続的に起きていることが示唆された。また、NPF

によって生成された粒子が輸送過程中に雲凝結核(80 nm)まで成長する様子も観測され、富士山頂付近における雲の放射特性も変える可能性があることもわかった。

イベント時の粒子の成長速度(GR)を算出することでNPFによって生成された微粒子の成長度合いを調べた。GRを算出した結果、40回のイベントで有効な値が得られた。GRは1.7~9.9 nm/hとなり、夜間(3.9±1.2 nm/h)よりも日中(5.9±2.3 nm/h)の方が約1.5倍大きいことがわかった。この結果より、日中に発生した粒子の方が成長しやすいことが確認された。これは、日射があることで成長に必要な前駆ガスの発生や光化学反応の際の反応速度を上昇させるなどの成長しやすい環境が出来ていたことが示唆された。また、日中・夜間別にGRの頻度分布を見ると、日中には2つ、夜間には1つのピークが確認できた。このことから、日中には2つ、夜間には1つの主な成長過程があることが示唆された。

以下に、日中・夜間イベントの発生要因を詳しく調べた結果を記述する。日中イベントは主に光化学反応によりNPFが発生すると考えられるため、SO₂がOHラジカルと反応することで発生するH₂SO₄とイベントの関係を調べた。SO₂及び全天日射量を観測した2018年7月27日~8月22日の日中の硫酸濃度の推定を行った⁹⁾。その結果、イベントの発生前に高濃度の硫酸濃度が観測された。このことから、硫酸濃度が高いときにNPFが発生することが示唆された。また、硫酸濃度が上昇する要因の一つに浅間山(2017年7月20日)などの活火山からの噴煙の輸送が考えられる。

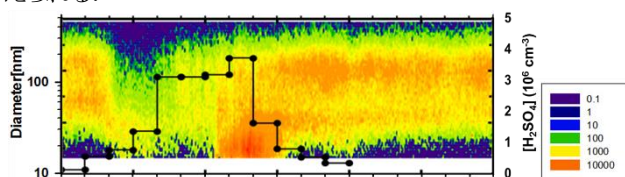


図4 日中イベント時(2018年8月2日)の粒径分布及び硫酸濃度変化

夜間イベント発生時にはSO₂濃度が低かったため、SO₂以外の要因でNPFが発生した可能性があることが示唆された。そこで、H₂SO₄が低濃度状態でもNPFが発生する条件の一つとして、大気中のVOCsが高濃度であることが考えられるため、イベント有無に分けて違いを調べた。その結果、夜間イベントが発生した時の方が、イベントが観測され

なかったときと比べて高濃度であることが分かった。このことから、富士山頂における夜間イベントは大気中のVOCs濃度が高い時に発生することが示唆された。また、後方流跡線を用いて高濃度のVOCsが観測された時の由来を確認したところ、多くが中部山岳域上空を通っていることが確認された。これより、日没前に中部山岳域で発生した谷風により富士山頂高度まで持ち上げられたVOCsを多く含む空気塊が富士山頂まで輸送される過程の中でNPFが発生したと考えられる。しかし、中部山岳域を通過しない空気塊でもイベントが観測されているため、発生要因の一つとして考えられることにとどまることに注意が必要である。

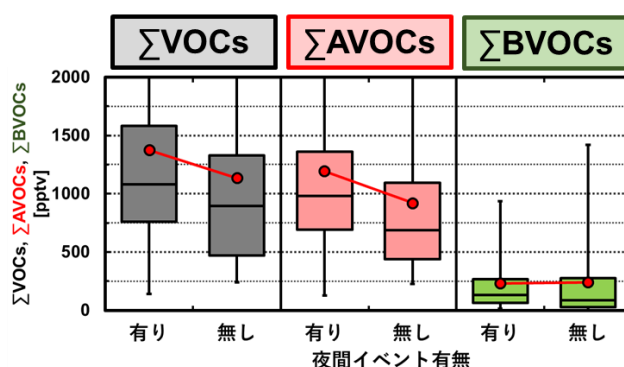


図5 夜間イベント有無別VOCs(=AVOCs+BVOCs)濃度

また、近年富士山頂での夜間イベントの観測割合が減少していることに関して、富士山頂において夜間観測されたイソプレン濃度の増加と夜間イベントの発生頻度の減少が似ていることが確認できた。このことから、近年夜間イベントの発生頻度が減少している要因の一つとして、大気中のイソプレン濃度の上昇が考えられる。イソプレンが増加する要因として、植生の変化や気温上昇などがあげられる。

その他の富士山頂でのNPFイベントの発生要因として、大気境界層及び自由対流圏の間にある混合層の上下動¹⁰⁾が考えられ、発生要因は複雑であることが報告されている。本研究では、日中での発生要因は高濃度の硫酸、夜間の発生要因は高濃度のVOCsであることがわかった。これまでの長期観測から、富士山頂におけるNPFイベントの発生要因が特定されつつあり、自由対流圏におけるエアロゾルの放射特性の理解に貢献できるかもしれない。

4. まとめ

2006~2019年の夏季に富士山頂において大気観測を行った。エアロゾル個数粒径分布の観測結果から、年々粒子数濃度が減少している傾向が見られた。その中でも、

核生成モード(粒径 25 nm 以下)の減少率が一番大きく、17.8%減少していた。そこから、富士山頂における NPF の発生頻度の減少や NPF により発生する粒子数濃度の減少が考えられた。その理由として、近年日本や東アジア圏で前駆ガスとなる人為起源ガスや微小粒子の排出量の規制が行われてきたことが要因の一つに挙げられる。

富士山頂で観測された NPF イベントは、全観測期間 541 日中 291 回観測された。その中でも日中イベントは 49.8% (145 回)、夜間イベントは 50.2% (146 回) だった。また、近年日中イベントが増加する傾向が見られた。イベントを発生時刻別に見ると、日中は 8 時・12~13 時、夜間は 20 時にイベント観測数のピークを持つことがわかり、主要な発生プロセスが 3 つあることが考えられる。成長時間別に見ると、2 時間以上成長しているイベントが 8 割以上確認できた。また、GR は 40 回のイベント中で算出でき、1.7~9.9 nm/h となった。また、夜間より日中の GR の値が約 1.5 倍大きいことがわかり、日射があることによって成長が早まり、雲凝結核になりやすいことが示唆された。

また、日中・夜間イベントの個別解析を行った結果、日中イベントは硫酸濃度、夜間イベントは VOCs 濃度が高濃度時にイベントが発生しやすくなることが示唆された。また、それらの増加要因として富士山及び中部山岳域で発生した谷風の影響が一つの要因であると考えられる。また、夜間の発生頻度が減った要因の一つに、VOCs を含む空気塊の中のイソプレン濃度が上昇したことによる影響が考えられる。

謝辞

本観測は NPO 法人「富士山測候所を活用する会」が富士山頂の測候所施設の一部を気象庁から借用管理運営している期間に行われました。本研究の一部は、科研費基盤研究 C (24340017) の助成により行われました。

参考文献

- 1) M. Kulmala, T. Petäjä, T. Nieminen, M. Sipilä, H. E. Manninen, K. Lehtipalo, M. D. Maso, P. P. Aalto, H. Junninen, P. Paasonen, I. Riipinen, K. E. J. Lehtinen, A. Laaksonen & V. M. Kerminen (2012). Measurement of the nucleation of atmospheric aerosol particles. *Nature Protocols*, **7**, 1651-1667.
- 2) Shan-Hu Lee, Li-Hao Young, David R. Benson, Tanja Suni, Markku Kulmala, Heikki Junninen, Teresa L. Campos, David C. Rogers, Jorgen Jensen (2008). Observations of nighttime new particle formation in the troposphere. *J. Geophys. Res.*, **113**, D10210.
- 3) R. Zhang, A. Khalizov, L. Wang, M. Hu, W. Xu (2012). Nucleation and Growth of Nanoparticles in the Atmosphere. *Chem. Rev.*, **112**(3), 1957-2011.
- 4) S. E. Paulson, A. D. Sen, P. Liu, J. D. Fenske, M. J. Fox (1997). Evidence for formation of OH radicals from the reaction of O₃ with alkenes in the gas phase. *Geophys. Res. Lett.*, **24**(24), 3193-3196.
- 5) Shinji Wakamatsu, Tazuko Morikawa, Akiyoshi Ito (2013). Air Pollution Trends in Japan between 1970 and 2012 and Impact of Urban Air Pollution Countermeasures. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, **7** (4), 177-190.
- 6) 鶴野伊津志, 王哲, 弓本桂也, 板橋秀一, 長田和雄, 入江仁士, 山本重一, 早崎将光, 菅田誠治 (2017a). PM_{2.5} 越境問題は終焉に向かっているのか? 大気環境学会誌, **52** (6), 177-184.
- 7) Can Li, Chris McLinden, Vitali Fioletov, Nickolay Krotkov, Simon Carn, Joanna Joiner, David Streets, Hao He, Xinrong Ren, Zhanqing Li & Russell R. Dickerson (2017). India Is Overtaking China as the World's Largest Emitter of Anthropogenic Sulfur Dioxide. *Scientific Reports*, **7**, 14304.
- 8) M. D. Maso, M. Kulmala, I. Riipinen, R. Wagner, T. Hussein, P. P. Aalto, K. E. J. Lehtinen (2005). Formation and growth of fresh atmospheric aerosols: eight years of aerosol size distribution data from SMEAR II, Hyytiälä, Finland. *Boreal Env. Res.*, **10**, 323-336.
- 9) S. Mikkonen, S. Romakkaniemi, J. N. Smith, H. Korhonen, T. Petäjä, C. Plass-Duelmer, M. Boy, P. H. McMurry, K. E. J. Lehtinen, J. Joutsensaari, A. Hamed, R. L. Mauldin III, W. Birmili, G. Spindler, F. Arnold, M. Kulmala, A. Laaksonen (2011). *Atmos. Chem. Phys.*, **11**, 11319-11334.
- 10) 片岡良太, 桃井裕広, 三浦和彦, 岩本洋子, 矢吹正教, 加藤俊吾, Indra Chandra, 瀬戸章文 (2017). 富士山頂における新粒子の生成と成長. 第 10 回成果報告会講演予稿集, 45-46.