

富士山麓太郎坊に輸送された二次粒子の生成及び成長過程に関する研究

大藪良祐¹, 五十嵐博己¹, 森樹大¹, 三浦和彦¹, 大河内博², 皆巳幸也³

1.東京理科大学, 2.早稲田大学, 3.石川県立大学

1. はじめに

エアロゾル粒子の生成過程の中でも、二酸化硫黄(SO₂), 窒素酸化物(NO_x), 揮発性有機化合物(VOC)などの前駆気体が化学反応によって粒子化する現象を新粒子生成(New particle formation; NPF)という. NPF のメカニズムは関与する化学種の多さや段階的に進む反応のために非常に複雑で予測することが困難である. そのため, 多地点での観測や理論との比較などが重要となっている.

本研究では富士山麓太郎坊(35.332° N, 138.804° E, 1290 m a.s.l.)で観測を行った. 太郎坊は山岳森林地域であり, その地形の特性から山風・谷風が発生することで近隣地域からの空気塊の輸送を観測することができる. エアロゾル個数粒径分布の他に大気成分及び気象要素などを用いて考察を行い, 山岳森林地域の NPF メカニズムの解明を目的とした. また, 過去の文献との比較を行った.

2. 方法

太郎坊における観測は2019/7/24~8/22の30日間行われた. 測定要素はエアロゾル個数粒径分布, 気象データ, 前駆気体濃度(O₃, SO₂, NO_x, O_x)である. 詳細は以下に記述する.

エアロゾル個数粒径分布については吸引した空気を拡散ドライヤーに渡し相対湿度 30%未満に乾燥させた後, SMPS(粒子を分級するDMAと粒子数をカウントするCPCからなる)で測定した. 測定可能粒径範囲は14.9~626.4 nm である. 相対湿度は温湿度計測器により測定及び記録した.

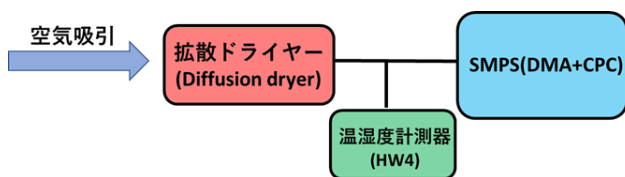


図1 エアロゾル個数粒径分布の観測システム

気象データについては平均風向(°), 平均風速(m/s), 気温(°C), 湿度(%), 気圧(hPa), 降雨強度(mm/h)を測定した. 前駆気体濃度についてはオゾン濃度(ppb)を測定した. また, 太郎坊周辺の地域の前駆気体濃度を環境省の大気汚染物質広域監視システム そらまめ君を基に参照した. 今回は, 二酸化硫黄(SO₂), 窒素酸化物(NO_x), 光化学オキシダント(O_x)の濃度を解析に用いた.

その他のパラメータとして, 成長時のモード径に対して線形近似で算出する粒子成長率(Growth Rate; GR)を用いた. NPF

により生成される粒子が1nmであると仮定した場合に, GRで成長を遡ることでNPF発生時刻を推定することができる. また, 前駆気体の気体分子の除去率を表すCS (Condensation Sink)も考慮した. CSは粒径と粒子数濃度に依存する値である(Kulmala et al., 2001).

さらに, NOAAによるREADY HYSPLITを用いて後方流跡線を見ることで, 太郎坊で成長している粒子を含む気塊の由来を調べた.

3. 結果・考察

今回, 25 nm 以下での成長がほとんど見られなかったため, NPF イベントだけでなく, 粒子成長イベントについても注目することにした. その結果, 観測期間内に成長イベントは合計6日間で7回観測された.

表1 太郎坊で観測された成長イベント

NPF発生予想時刻	太郎坊での成長開始時刻	GR(nm/h)	予想成長時間	分類	CS × 10 ⁻³ (1/s) 直前30分間平均	O ₃ 濃度(ppb)
2019/7/26 8:30	9:30	28.4 ± 1.1	2h	BS型	0.06	17.6
2019/7/26 9:30	11:30	13.5 ± 0.5	3h	BS型	0.56	16.8
2019/8/3 10:30	14:00	11.5 ± 1.4	4.5h	BC型	1.81	32.7
2019/8/5 8:00	9:30	19.3 ± 0.6	3.5h	BS型	1.25	16.4
2019/8/10 9:00	11:00	11.4 ± 0.3	4h	BC型	1.75	26.8
2019/8/12 10:30	13:00	11.2 ± 0.5	4.5h	BC型	0.26	8.8
2019/8/13 9:00	9:30	28.2 ± 2.1	2h	BS型	0.36	6.4

NPF発生時刻は全て午前中と推定された. 太郎坊では, 山風から谷風に切り替わる際(おおよそ6-9時頃)に発生する傾向がある. 谷風がNPFにより生成された新粒子と共に, 成長に必要な周辺地域の前駆気体を太郎坊へ輸送している可能性が示唆された.

前駆気体との関連は7/26に顕著に見られた.

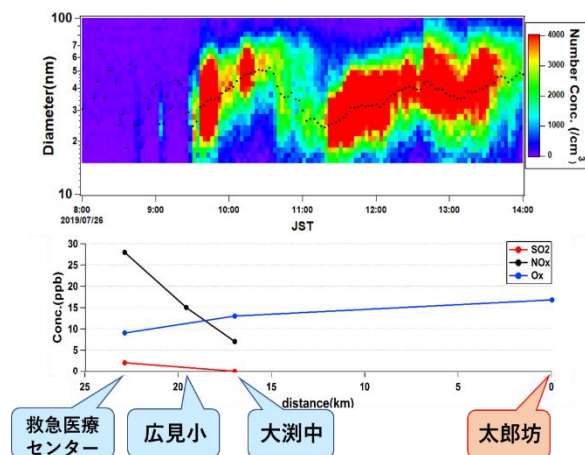


図2 気塊が通った付近の観測局の前駆気体濃度変化

連絡先: 大藪良祐(Ryosuke OYABU) 1216025@ed.tus.ac.jp

気塊が太郎坊に近づくにつれて SO_2 ・ NO_x 濃度の減少, O_3 濃度の増加が見られる. この間は粒子成長を仮定しているので, 上記の前駆気体濃度変化が粒子成長に寄与していると考えられる.

また, 別の日にはオゾン濃度の高さや減少量の違いによる GR の違いも見られた.

今回は GR と CS, オゾン濃度との間に相関は見られなかった. 今回, CS に注目して考察を行った. まず, 他の森林地域である YMD(長江デルタ)西部 (中国)と Hyytiälä(フィンランド)との比較をした.

YMD 西部の夏期(6~8 月)の平均値 $35 \pm 25 \times 10^{-3}(\text{s}^{-1})$ に対して太郎坊の夏期(7, 8 月)の平均値は 2019 年: $1.24 \times 10^{-3}(\text{s}^{-1})$, 2018 年: $6.42 \times 10^{-3}(\text{s}^{-1})$ となり, 太郎坊の CS の方が極端に低い結果となった. また, Hyytiälä との比較は以下になった.

表 2 太郎坊と Hyytiälä の CS 比較

地点	月	CS(event)	CS(non event)
太郎坊	7月2018年	6.3	6.4
	7月2019年	0.6	1.3
	8月2019年	1.8	1.3
Hyytiälä	7月	2.5	8.1
	8月	2.2	5.9

($\times 10^{-3}$)[1/s]

Hyytiälä で報告されている CS が低いときにイベントが起こりやすい傾向は, 太郎坊では一概には言えなかった.

このように, 太郎坊の CS は他の地域とは傾向が異なっていたので, 太郎坊内での全観測期間の CS の中央値(2019 年: $1.26 \times 10^{-3}(\text{s}^{-1})$, 2018 年: $6.42 \times 10^{-3}(\text{s}^{-1})$)と比較した. 結果, 9 例中 7 例が基準より低い CS の時に発生していた. 残り 2 例は CS が高かったが, オゾン濃度に注目すると, 全観測期間のオゾン濃度の平均値(2019 年:21.3 ppb, 2018 年:22.9 ppb)より高いものこの 2 例のみとなった.

表 3 CS, オゾン濃度の基準値との比較

NPF発生予想時刻	CS $\times 10^{-3}$ (1/s) 直前30分間平均	O ₃ 濃度(ppb)
2018/7/14 7:00	2.29	17.3
2018/7/20 7:30	3.23	18.6
2019/7/26 8:30	0.06	17.6
2019/7/26 9:30	0.56	16.8
2019/8/3 10:30	1.81	32.7
2019/8/5 8:00	1.25	16.4
2019/8/10 9:00	1.75	26.8
2019/8/12 10:30	0.26	8.8
2019/8/13 9:00	0.36	6.4

青 : 低い
赤 : 高い

これにより, 粒子成長には直前の低い CS 又は高いオゾン濃度が必要であるということが示唆された.

以上より, CS が低く, オゾン濃度が高い状態ならばよりイベントが発生しやすい状態であると考えられるが, そのような日は 2 日しかなく, いずれもイベントが観測されなかった. 内 1 日は降雨によって粒子が洗浄されたためと考えられるが, もう 1 日については原因不明である.

4. まとめ

太郎坊での成長イベントは全 30 日の観測期間中 7 回観測された. いずれも午前中に NPF が発生したことが推定され, 太郎坊まで輸送されたと考えられる. これは朝方の風向の変化に起因すると考えられる. また, SO_2 , NO_x , O_3 といった特定の前駆気体が成長に寄与している可能性が見られた.

GR と CS, オゾン濃度の間に相関は見られなかった. そこで CS に注目し, 他の森林地域と比較した結果, 太郎坊の CS の傾向は異なり, 平均値が低く, さらにイベント時に CS が低くなる傾向があまり見られなかった. 太郎坊内で比較した結果, 粒子成長には直前の低い CS か, CS が高い場合は高いオゾン濃度が必要であることが示唆された.

謝辞

本観測は認定 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た.

参考文献

- (1) M. Dal Maso et al., 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, 2005
- (2) X. M. Qi et al., Aerosol size distribution and new particle formation in the western Yangtze River Delta of China: 2 years of measurements at the SORPES station, Atmos. Chem. Phys., **15**, 12445-12464, 2015
- (3) Kulmala M., Dal maso M., Mäkelä. J. M., Pirjola L., Väkevä M., Aalto P., Miikkulainen P., Hämeri K., O'dowd C. D., On the formation, growth and composition of nucleation mode particle, Tellus (2001), 53B, 47