# 富士山頂における粒子濃度増加イベントの観測

# 井波真哉<sup>1</sup>, 東秀憲<sup>1</sup>, 猪股弥生<sup>1</sup>, 瀬戸章文<sup>1</sup>, 大谷吉生<sup>1</sup>, 森樹大<sup>2</sup>, 三浦和彦<sup>2</sup>, 加藤俊吾<sup>3</sup> <sup>1</sup>金沢大学, <sup>2</sup>東京理科大学, <sup>3</sup>首都大学東京

#### 1. はじめに

富士山は標高 3776 m の孤立峰であるため, 地表付近(あ るいは大気境界層)の影響が少なく, 自由対流圏における粒 子濃度や東アジアから輸送された越境大気汚染物質を測定 するのに適している. 大気中におけるナノ粒子の生成や成 長は新粒子生成と呼ばれており、大気中微小粒子濃度の増 加は太陽光の散乱強度を変えるため、地球の放射収支への 影響を与えるものと考えられている。

これまでに富士山頂で実施された観測では、新粒子生成 が頻繁に観測されているが<sup>1)</sup>、新粒子生成過程を明らかにす るためには、より小さい粒子径からの測定が必要である。そこ で、本研究室では、2016年より微分型静電分級器(DMA: Model 3085, TSI Co. Ltd.)と凝縮核計数器(CPC: Model 3776, TSI Co. Ltd.)を組み合わせた走査式移動度計測装置(Nano-SMPS:図1左)を用いて、粒子径2.09~63.8 nm までの粒子 個数濃度を計測している<sup>2)</sup>. また、今年度は、ナノサンプラー II (KANOMAX Model 3182:図1右)を用いて大気中の微粒 子を各粒子径範囲ごとにフィルター捕集し、イオンクロマトグ ラフィーにより微粒子の化学成分分析を行った.



図1 観測機器 (左:Nano-SMPS, 右:ナノサンプラー)

2. 方法

観測は2019年7月10日から8月21日まで,富士山特別 地域気象観測所(35.36°N, 138.72°N) で行った。大気試料 は 15 L/min で吸入し,ディフュージョンドライヤーにより乾 燥させた後, DMAで粒子を分級し, CPC で個数濃度を検出 した.ナノサンプラーについてはポンプ流量を40 L/min に設 定し,半日の短期サンプリングあるいは約2週間の長期サン プリングを行った.回収後のフィルターは超純水で超音波抽 出し,その溶液をろ過してイオンクロマトグラフィーにより水溶 性イオンの化学成分分析を行った.

#### 3. 測定結果ならびに考察

3.1 粒子径分布

図2に2019年のNano-SMPSで測定したナノ粒子の粒子 径分布の時間変動を示す.縦軸に粒子径,横軸に日にち, 粒子個数濃度を色分けで示している.白色で示されている部 分は雷等の機材トラブルにより観測できなかった期間である. 赤い筋状部分に粒子個数濃度が高くなるイベントが観測され ており,2019年は23回観測された.

## 3.2 粒子濃度増加イベントの分類

次に粒子濃度増加イベントを発生した時間と空気塊の由来 について分類した.まず、イベントの発生した時間帯を 6:00 ~18:00 を日中、18:00~6:00 を夜間と分類した.さらに、こ れらのイベントの空気塊の輸送経路を調べるために、NOAA のHYSPLITモデルを用いて 72 時間後方流跡線解析を行い、 空気塊を大陸由来、海洋由来に分類した.2019年は過去 3 年間と比較すると夜間に始まる粒子濃度増加イベントが多く 観測され、またアジア大陸上空由来よりも海洋由来が多かっ たという特徴がみられた.



#### 3.3 粒子濃度増加イベントと粒子起源

Nano-SMPS のデータより粒子成長速度を計算し,核生成位 置の推定を行い,気象パラメータ等粒子起源の検討を行った. 図3に夜間に観測された粒子濃度増加イベントの一例(2019 年8月18日)の各パラメータの変化を示す.粒子濃度増加イ ベントが起こる1時間程前に二酸化窒素を中心に窒素酸化物 のガス濃度の上昇がみられ,これらが粒子起源の可能性が ある.一方で空気塊の時間と標高の関係から,この空気塊は 山頂よりも下方の層を経由しており,夜間でも大気境界層の 影響を受けている可能性がある.



図3 粒子濃度増加イベント時と各パラメータ変化(上:富士山 麓のガス濃度,中:空気塊の標高,下:粒子濃度変化)

3.4 イオンクロマトグラフによる水溶性イオンの分析

表1,2に短期サンプリングにおけるナノサンプラーのポン プの稼働時間を示す.図4に粒子径範囲ごとの水溶性イオン の成分濃度の結果を示す.比較的大粒径側に硝酸イオン, 小粒径側に硫酸イオンがみられた.これは、硝酸イオンの蒸 気圧が硫酸イオンよりも高いため、粒子化が起こりにくく、硝 酸イオンが既存粒子に吸着したことや SO<sub>2</sub>ガスの硫酸塩粒子 の生成が支配的であったからであると考えられる.

表1 ナノサンプラーポンプ稼働時間(半日)

	Start	Stop	Pump operating time [ min ]
(a)	7/10 18:00	7/11 6:00	720
(b)	7/24 18:17	7/25 6:00	703
(c)	7/24 10:23	7/24 18:00	457

表2 ナノサンプラーポンプ稼働時間(長期)

	Start	Stop	Pump operating time [ min ]
(d)	7/11 6:30	7/24 10:00	18450
(e)	7/25 6:18	8/6 10:03	17505
(f)	8/6 10:27	8/21 9:45	21558

また,図 5 に粒子径範囲ごとのイオン当量濃度(nss-SO4<sup>2</sup>, NH4<sup>+</sup>, NO<sub>3</sub>)の存在比を示す.半日サンプリングにおいて粒

子径が0.5µmから1.0µmの捕集された粒子についてアンモ ニウムイオンと非海塩性硫酸イオンが1:2の割合で存在して おり、硫酸水素アンモニウム(NH4HSO4)の形態の粒子が捕 集されたと考えられる.また粒子径0.5µmから1.0µmの粒子 を除く0.1µm以上の粒子について1:1のライン上付近に分布 しており、硝酸アンモニウム(NH4NO3)の形態の粒子が捕集 されたと考えられる.また長期サンプリングにおいてほとんど の粒子径範囲の粒子でアンモニウムイオンと非海塩性硫酸イ オンが1:1のライン付近に存在しており、平均的に硫酸アンモ ニウム((NH4)2SO4)の粒子が多く存在していたと考えられる.



図4 粒子径範囲ごとの水溶性イオン成分濃度



図5 粒子径範囲ごとのイオン当量濃度存在比 (左,中:半日サンプリング,右:長期サンプリング)

### 4. おわりに

2019 年のイベントは日中夜間ともに観測され,海洋由来の ものが多かった.また2018年度同様,10nm前後の粒子径か ら始まるものが多く,富士山頂とは別の場所で核生成し,ある 程度成長した粒子が山頂にて観測できていたと考えられる. 核生成位置を推定し,核生成位置付近のガス濃度上昇との 相関が得られた.

ナノサンプラーにより捕集した微小粒子の水溶性イオンの 化学分析について、イオン当量濃度で分布を検討し、良好な 相関が得られた.特に粒子径 1.0 μm 以上の粒子では同様の 化学組成の形態で存在していることが示唆された.

#### 参考文献

- 1) 五十嵐ら,富士山頂における新粒子生成の経年変化.第 11回成果報告会公演予稿集,40-41 (2018)
- 村本ら,富士山頂におけるナノ粒子の粒子径分布計測.
  第11回成果報告会公演予稿集,34-35 (2018)