

## 富士山頂におけるナノ粒子の粒子径分布計測

村本慎仁<sup>1</sup>, チャンドラ インドラ<sup>1</sup>, 東秀憲<sup>1</sup>, 猪股弥生<sup>1</sup>, イクワンユル<sup>1</sup>,  
瀬戸章文<sup>1</sup>, 大谷吉生<sup>1</sup>, 岩本洋子<sup>2</sup>, 森樹大<sup>2</sup>, 三浦和彦<sup>2</sup>, 加藤俊吾<sup>3</sup>

1. 金沢大学, 2. 東京理科大学, 3. 首都大学東京

### 1. はじめに

富士山は標高 3,776 m の孤立峰であるため地表付近(あるいは境界層)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. 大気エアロゾルは太陽光の散乱・吸収, さらに雲凝結核として作用するため, 地球の気候変動に重要な影響を及ぼすと考えられている.

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, 本発表では, 静電分級器(DMA: TSI Inc., Model3085)と凝縮核計数器(CPC: TSI Inc., Model3776)を組み合わせた走査式移動度計測装置(Nano-SMPS)を用いて粒子個数濃度を計測した結果について報告する.

### 2. 富士山頂におけるフィールド計測

観測期間は 2016 年 7 月 14 日から 8 月 23 日および 2017 年 7 月 15 日から 8 月 24 日で, 富士山特別地域気象観測所(N: 35.21 度, E: 138.43 度)でおこなった. 本研究室では 2016 年より, この夏期集中観測に参加し, 静電分級器(DMA: TSI Inc., Model3085)と凝縮核計数器(CPC: TSI Inc., Model3776)を組み合わせた走査式移動度計測装置(Nano-SMPS)を用いて, 粒子径 2.09 nm~63.8 nm までの粒子を計測した.

### 3. 測定結果ならびに考察

#### 3.1 粒子径分布

2016 年および 2017 年に Nano-SMPS で測定したナノ粒子の粒子径分布の時間変動の一例を図1に示す. 縦軸に粒子径, 横軸に日にち, 粒子濃度を色分けで示している. 雷等による機材トラブルで計測ができずデータが欠落している日を除くと合計 25 日間および 37 日間の観測で, 粒子が高濃度になるイベントは 2016 年には 15 回, 2017 年には 21 回観測できた. 2016 年に観測されたイベントは, 午後から始まり, 夜にかけて終わるものも多く, 粒子は 10 nm 付近から発生し, その後緩やかに 20~30 nm まで成長した. 一方, 2017 年に観測されたイベントは, 午前中に始まり 4 nm 付近から 20 nm 付近まで成長し, 短時間で終わるものも多く見られた.

#### 3.2 イベントの分類

次に 2016 年と 2017 年に起こった粒子生成イベントを発生した時間と空気塊の由来に基づいて分類した結果を示す. ま

ず, イベントが発生した時間帯について分類し, 5:00 から 12:00 を午前, 12:00 から 18:00 を午後そして 18:00 から 5:00 ままでを夜間とした. さらに, NOAA の HYSPLIT による後方流跡線解析を行い, イベントが観測された際の空気塊が富士山頂に到達する 48 時間前の後方流跡線を計算することで, その地点の位置から大陸由来および海洋由来のものと分類し, それ以外のものを不明として分類した.

既往の研究では, 富士山頂における新粒子生成イベントは夜間に比較的多く発生していた. 一方, 本研究での測定結果では, 2016 年は粒子生成イベントの半数以上が午後か夜から始まるものであり, また 2017 年は, 観測されたほとんどのイベントが午前中に始まり, 空気塊は大陸由来のものだった.

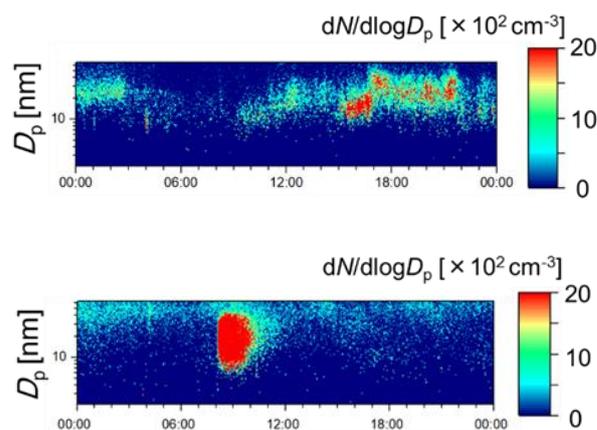


図1 粒子個数濃度のカウンタープロット  
(上:2016/8/20, 下:2017/7/29)

#### 3.3 イベント時の種々パラメータの日変化

図2に 2016 年および 2017 年の粒子生成イベントが発生した日に限定し, 3 nm から 25 nm の粒子の個数濃度, CO, O<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub> の各ガス濃度および水蒸気混合比の平均値を求め, 日変化を表したグラフを示す. 横軸に時間, 縦軸に各パラメータの値を示している.

2016 年のデータでは, 粒子個数濃度が上昇し始める時間帯に水蒸気混合比が上昇しており, 谷風の影響を受けていると考えられる. また, CO および O<sub>3</sub> 濃度は時間変化が小さいため越境汚染の影響は小さかったと考えられる. 一方で新粒子生成の前駆気体でもある SO<sub>2</sub> 濃度に濃度変化はあるものの値は非常に低く, ほぼ検出限界であった. 2017 年の観測では, 粒子個数濃度が上昇する時間帯における水蒸気混合比に 2016 年ほどの変化は見られず, CO, O<sub>3</sub> 濃度に関しては

下降していた。これは粒子個数濃度が上昇する時間帯に、谷風および長距離輸送された汚染大気の影響が比較的少なかったためと考えられる。つまり、2017年度に多く観測されたイベントは2016年と比べて清浄な空気の中で観測されたと考えられる。しかしながら、新粒子生成の前駆気体であるSO<sub>2</sub>濃度はいずれの年も検出限界濃度に近くかなり低いために、新粒子生成は山頂とは異なる場所で起こっている可能性がある。さらに、両年共に、ガス濃度および水蒸気混合比などの個別の因子と粒子個数濃度や粒子径との顕著な相関は見られなかった。

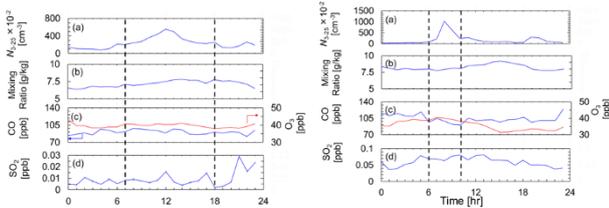


図2 種々パラメータの日変化(a)3~25 nmの粒子個数濃度、(b)水蒸気混合比、(c)CO、O<sub>3</sub>濃度、(d)SO<sub>2</sub>濃度 (左:2016年, 右:2017年)

### 3.4 多変量解析

2016年および2017年において、各ガス濃度や水蒸気混合比、温度との複合的な影響を考察するためにEq.1による多変量解析を行った。図3に多変量解析による初期粒子径の相関結果を示す。

$$D_{p, \text{predicted}} = \sum_i a_i \cdot x_i^{b_i} \quad (1)$$

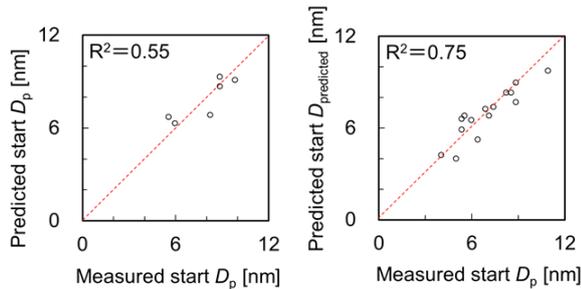


図3 初期粒子径の相関結果(左:2016年, 右:2017年)

図3は横軸に初期粒子径の測定結果、縦軸に式による相関結果をとったグラフで、対角線上にプロットが位置していることから、いずれの年も良好な相関結果が得られた。また、各因子の係数より、2017年のイベントは、SO<sub>2</sub>濃度と温度が支配的な因子となっており、SO<sub>2</sub>濃度と正の相関、温度と負の相関を示すことがわかった。つまり、前駆気体であるSO<sub>2</sub>濃度が高いほど初期粒子径は大きくなり、温度が高いほど揮発性物質のガス化により初期粒子径は小さくなる傾向になると考えられる。一方、2016年のイベントは、SO<sub>2</sub>濃度の影響は小さく、O<sub>3</sub>濃度と温度が初期粒子径の支配因子となっていることが確認

された。つまり、2016年のイベントは、新粒子生成によるもの以外に、汚染大気の輸送の影響によると考えられる。

### 3.5 核生成時の位置

前節で述べた通り、粒子生成の前駆気体であるSO<sub>2</sub>濃度は非常に低いいため新粒子生成は富士山頂とは別の場所で起こっている可能性が高い。そこで、Eq.2<sup>2)</sup>により定義した成長速度と後方流跡線解析の結果より、粒子の核生成が始まる粒子径1 nmの時の位置を推定した。

$$GR = \frac{\Delta D_p}{\Delta t} \quad (2)$$

図4に推定した結果を示す。2016年は一部富士山頂の近くで核生成したと思われる粒子もあるが、主に富士山頂よりはなれたところで核生成が起きていると考えられ、海上で核生成したと思われる粒子もあった。これらの粒子は富士山頂で計測されたときには、成長速度も遅く、イベント開始時の粒子径も大きいため、ある程度成長した後の粒子が輸送されていると考えられる。これに対し、2017年はほぼすべてのイベントが富士山周辺で核生成しており、輸送距離が短いことから成長途中で富士山頂で観測され、そのため成長速度も速かったものと考えられる。

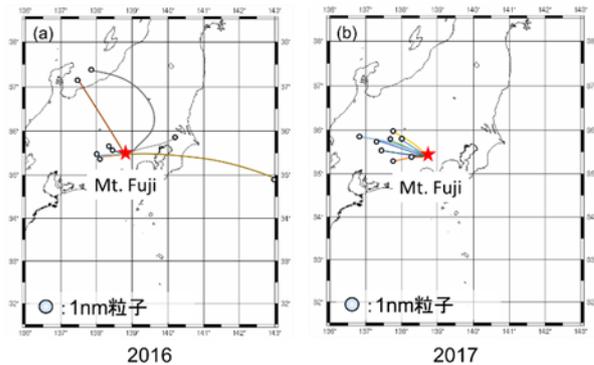


図4 核発生時の位置と富士山頂までの後方流跡線

## 5. おわりに

2016年のイベントは、主に午後から夜間にかけて発生し、2017年のイベントは、ほとんどが午前中に発生し、大陸由来のものであった。粒子高濃度イベント発生時に、単一のパラメータとの顕著な相関は見られなかったが、多変量解析により初期粒子径がSO<sub>2</sub>濃度およびO<sub>3</sub>濃度と正の相関、温度と負の相関があった。粒子成長速度と後方流跡線解析の結果より、新粒子生成は富士山以外の場所で起こっており、そのほとんどは日本国内で、核生成が起こった後に自由対流圏および大気境界層を経由して輸送されていることが示唆された。

### 参考文献

- 1) 片岡ら, 第10回成果報告会要旨集 P-06 (2010)
- 2) Kulmala *et al.*, *J. Aerosol Sci.*, 35, 143-176 (2004)