

富士山頂に流入する大気中粒子状物質のオンライン分析 2019

竹内政樹¹, 前田夏穂¹, 和田莉緒菜¹, 田中 遥¹, 田中秀治¹, 戸田 敬², 大河内博³

1.徳島大学, 2.熊本大学, 3.早稲田大学

1. はじめに

経済発展の著しい東アジア地域では大気汚染が深刻化しており、その影響は周辺国のみならず地球規模へと広がっている。日本国内に越境輸送された汚染物質は、自然環境を破壊するだけでなく、呼吸器系や循環器系などの疾患リスクを上昇させる¹⁾。従って、我が国に流入する越境汚染物質を継続的にモニタリングして越境大気汚染の実態を解明することは、我々が安全・安心な生活を送る上で極めて重要である。これまでに我々は、水溶性ガスの連続捕集器を自作し²⁾、富士山頂の水溶性ガス成分を高時間分解観測することで、自由対流圏高度における酸性ガスの挙動を明らかにしてきた³⁾。一方、本研究では、社会的関心の高い粒子状物質にも着目し、新規に粒子状物質の連続捕集器を開発することで、自由対流圏高度の粒子状物質に含まれるイオン成分を高時間分解能観測できるシステムの構築を目指した。続いて、本システムを自由対流圏高度に位置する富士山頂で稼働させ、観測データを詳細に解析することで、日本国内に流入する越境大気汚染物質の動態について検討した。

2. 粒子状物質捕集器の開発と徳島市における観測

Fig. 1 に、本研究で開発した粒子状物質捕集器の概略図を示す。大気サンプルは捕集器の上方より吸引され、エアノズルを通過してチャンバー内に運ばれる。一方、捕集液はエアノズルの真下に送液され、大気と衝突することによりミストが生成される。チャンバー内の粒子状物質は2枚の親水性フィルターで捕集・溶解抽出される。その後、粒子状物質はミストにより溶解抽出され、気液分離後、イオンクロマトグラフで測定される仕組みとなっている。新規粒子状物質捕集器を組み込んだ自動分析システムを地表面(徳島市)で稼働させ(2019年春季, 37日間), その捕集効率を測定したところ、いずれの成分(Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-})でも>98.4%と良好な結果を得た。また、連続観測後に捕集器の状態を確認したところ、フィルターの破損等もなく捕集器の耐久性についても問題ないことが明らかとなった。Fig. 2 に、徳島市における観測期間中(37日間)の主要陰イオン成分濃度を測定時刻毎に平均化したときの日内変動を気温、相対湿度のデータとともに示す。いずれのイオン成分も朝方に濃度の増加がみられるが、これは通勤ラッシュや始業による汚染物質の排出量が増加したためと思われる。3成分のうち、 NO_3^- で昼過ぎの明確な濃度減少がみられた。これは揮発性の高い NO_3^- が気温上昇により HNO_3 へと気

化したためであろう。3成分とも夕方に濃度が増加している。これは、帰宅ラッシュによる排出量の増加に加え、気温の低下によるガス成分の粒子化が促進したためと思われる。この後、夜間から朝方にかけて濃度が減少しているが、こ

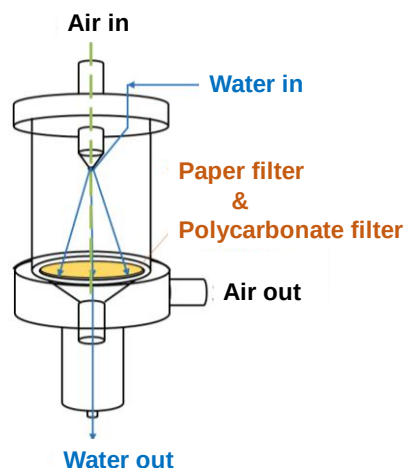


Fig. 1 Particle collector.

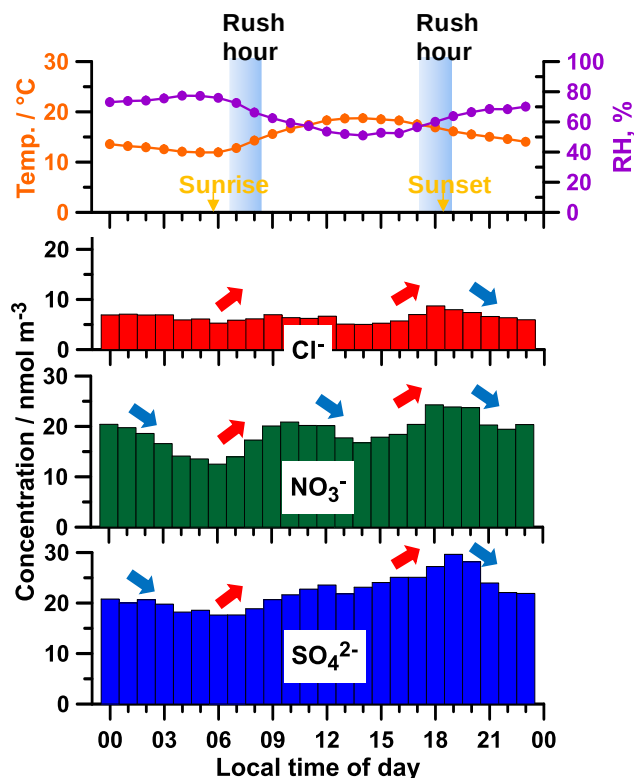


Fig. 2 Circadian variations of average particulate Cl^- , NO_3^- , and SO_4^{2-} concentrations and meteorological data during spring in 2019 at Tokushima, Japan.

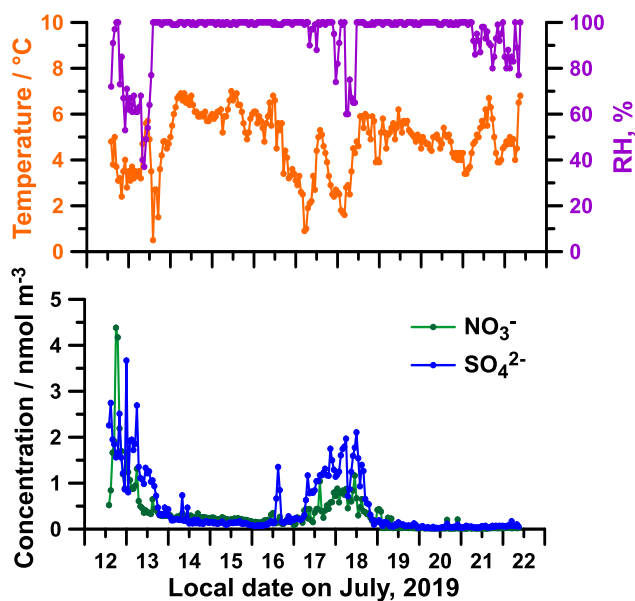


Fig. 3 Temporal variations of average particulate NO_3^- and SO_4^{2-} concentrations and meteorological data during summer in 2019 on the summit of Mt. Fuji, Japan.

これは気温の低下によるガス成分の粒子化よりも、工場等の終業による排出量の減少の影響が大きいと思われる。このように、主要陰イオンの日内変動は、それぞれの要因が複雑に影響しあい、濃度の増減を繰り返しているものと思われる。

3. 富士山頂における観測

Fig. 3 に、構築した大気粒子状物質の自動分析システムを富士山頂（標高 3,776 m）で稼働させ（2019 年夏季，10 日間），粒子状 NO_3^- と SO_4^{2-} を連続測定したときの結果を示す。 NO_3^- と SO_4^{2-} の濃度変化は類似しており，観測開始頃と中頃に高濃度となる傾向がみられた。両成分の平均濃度は， NO_3^- が 0.322 nmol/m^3 ， SO_4^{2-} が 0.481 nmol/m^3 となり，いずれの成分も先に徳島市で観測された値よりも 50 倍程度低濃度で存在していた。Fig. 4 には，観測期間中に富士山頂に流入した気塊を後方流跡線解析した結果を示している。総濃度をみると，気塊 A が高く，気塊 B と C で低くなった。気塊 B, C は海上を通過しており，大陸の汚染源を通過していないため，比較的清浄な気塊であると思われる。一方，気塊 A の総濃度は，気塊 B, C に比べて 3 倍ほど高く，アジア近隣諸国から排出された大気汚染物質が富士山頂に流入した結果を反映しているものと思われる。

4. おわりに

富士山頂に流入する粒子状物質を自動追跡するために，新たな粒子状物質捕集器を開発した。本捕集器は自作のウェットデニューダー^{2,3)}と組み合わせて使用することができ，粒子状物質の捕集効率は，98.4%以上と良好な結果を示

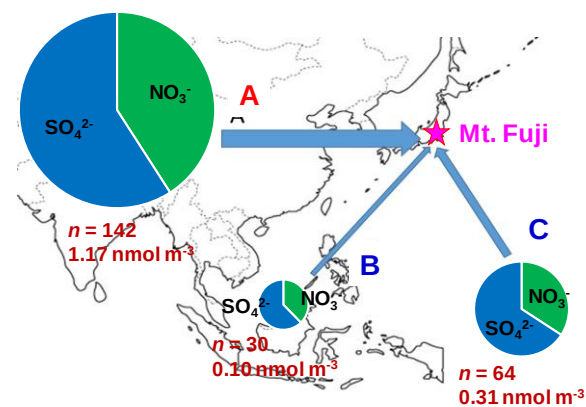


Fig. 4 Average particulate NO_3^- and SO_4^{2-} concentrations classified according to the pattern of air parcel trajectory. The line width of the arrows shows the relative frequency of total air parcel trajectory. The numerical values and concentrations below the circular graphs show the sample number and the sum of the concentrations of NO_3^- and SO_4^{2-} , respectively. The size of circular graphs is proportional to the numerical values.

した。また，地表面では 1 ヶ月以上，富士山頂においては少なくとも 10 日間は連続測定が可能であり，耐久性においても問題ないと言える。この捕集器を用いた大気粒子状物質のオンライン分析システムを構築し，富士山頂における粒子状物質の連続観測を行ったところ，海洋から流入した気塊は比較的清浄であり，アジア大陸を通過した気塊には高濃度の NO_3^- ， SO_4^{2-} が含まれていることが明らかとなった。

謝辞

本研究を進めるにあたって，公益財団法人 アサヒグループ学術振興財団より，研究補助をいただきました。厚く御礼申し上げます。また，富士山頂における大気観測では，認定 NPO 法人 富士山測候所を活用する会の皆様に大変お世話になりました。

参考文献

- 1) Jarvis, D. L., Leaderer, B. P., Chinn, S., Burney, P. G. (2005). Indoor nitrous acid and respiratory symptoms and lung function in adults. *Thorax*, **60**, 474-479.
- 2) Takeuchi, M., Tsunoda, H., Tanaka, H., Shiramizu, Y. (2011). Parallel-plate wet denuder coupled ion chromatograph for near-real-time detection of trace acidic gases in clean room air. *Anal. Sci.*, **27**, 805-810.
- 3) Takeuchi, M., Miyazaki, Y., Tanaka, H., Isobe, T., Okochi, H., Ogata, H. (2017). High time-resolution monitoring of free-tropospheric sulfur dioxide and nitric acid at the summit of Mt. Fuji, Japan. *Water Air Soil Pollut.*, **228**, Article: 325.