

# 富士山頂で観測したエアロゾル粒子の雲凝結核への成長

木村駿(B4), 五十嵐博己, 森樹大, 三浦和彦  
東京理科大学

## 1. はじめに

大気中に浮遊するエアロゾル粒子は、直接及び間接的に地球の熱放射収支に影響を及ぼす。しかしその推定値には、大きな不確かさがあり、エアロゾルの発生から雲粒成長までの一連の過程の理解が必要である。エアロゾル粒子には直接排出される一次粒子と前駆ガスの化学反応などにより生成される二次粒子がある。この二次粒子の生成過程を新粒子生成(NPF : New Particle Formation)という。発生したこれらのエアロゾル粒子は凝集及び凝結によって成長し一部が雲凝結核(CCN : Cloud Condensation Nuclei)として活性化。これらの一連の過程は観測的な理解が乏しく、地球の放射強制力の推定値の不確かさの原因となっている。そこで、本研究では 2014~2019 年の夏季富士山頂(3776m a.s.l.)における山岳大気のエアロゾル粒径分布の観測から NPF によって発生した粒子と CCN 数濃度の関係を明らかにする。富士山頂は、人間活動の影響を受けづらく、自由対流圏のバックグラウンド大気を観測できる利点がある。

## 2. 方法

2014年から2019年までの夏季(7, 8月)に、富士山特別気象観測所(35.361N, 138.727E, 3776 m a.s.l.)においてエアロゾル個数粒径分布測定装置(① SMPS3034, ②DMA3081+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①10.4~469.8nm②14.9~626.4nm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 CCN 数濃度の寄与を定量的に調べるために、NPF イベントと CCN 数濃度を表す  $N_{80}$  を以下のように定義した。まず、NPF イベントは、核生成モード(粒径 25nm 以下)の粒子が NPF により発生したものと仮定して、核生成モードにおいて高濃度(核生成モードの数濃度のその年の平均値の二倍)が一時間以上続いたものと定義した。また、mode 径が 25nm 以上まで成長したイベントとそうでないイベントを分けて、それぞれ Class I イベント、Class II イベント(apple or burst)と分類した。イベント中に mode 径が測定範囲の下限にあり続けたものは欠測とした。こういったイベントは測定範囲外で NPF が起きていると考えられる。CCN 数濃度を表す  $N_{80}$  は個数粒径分布の内 80nm より大きい粒子の総数濃度の三十分平均値とし、イベント開始時  $N_{80init}$  とイベント中の最大値  $N_{80max}$  用い、CCN 数濃度変化を以下の 2 つの式で評価した。

$$\text{増加数濃度} = N_{80max} - N_{80init} \text{ cm}^{-3}$$

$$\text{増加率} = \left( \frac{N_{80max}}{N_{80init}} \right) \times 100 \%$$

基礎的な理論では、雲粒の活性化直径の下限は自然条件での過飽和度において 50~150nm である<sup>1,2)</sup>。  $N_{80}$  は、潜在的な雲凝結核数濃度を表す。この間接的な方法は、CCN チャンバーを用いた観測<sup>3)</sup>による実際の CCN 数濃度の代わりに、潜在的な CCN 数濃度を推定するものであり、イベント中に大気に現れる新しい粒子と既存の粒子の合計を大まかに見積もるものである。

解析する NPF イベントは次のように選んだ。第一に、Class I の NPF イベントのみ、すなわち粒子の成長がはっきりとわかるものについて行った。第二に次のようなイベントは除外した。すなわち、成長途中に欠測のあったイベント、NPF 後 mode 径の成長が見られるが  $N_{80max}$  が  $N_{80init}$  を超えなかったイベント、また、一日に複数回イベントが起きたイベントでは  $N_{80init}$  を一つのイベントの開始時の  $N_{80}$  とし、 $N_{80max}$  を最後のイベント中の最大の  $N_{80}$  とした。

また、観測したエアマスの輸送経路を調べるために、後方流跡線解析(NOAA Hysplit Model; <https://ready.arl.noaa.gov/>)を行った。出発地点を富士山頂の高度とし、三日間さかのぼって計算した。さらに、測定した粒径分布を必要に応じて対数正規分布の重ね合わせで表し、その粒径分布から mode 径を計算した。

## 3. 結果と考察

表1は、イベントの分類をまとめたものである。分類に加えて、 $N_{80}$  の増加を次の方法でも評価した。イベント開始時刻を境にそれ以前の 2 時間とそれ以降の 2 時間の  $N_{80}$  の平均値をそれぞれ計算し、その値が増加したイベントを数えた。

表1 2014-2019 年における観測日数およびイベント数とイベント分類、 $N_{80}$  増加例

year	Sample days	Total event	Class I	Class II	$N_{80}$ 増加	欠測
2014	25	11	6	5	6	0
2015	32	20	7	10	9	3
2016	36	19	4	4	6	11
2017	36	26	17	7	16	2
2018	39	15	6	6	12	3
2019	41	22	11	10	11	1
計	209	113	51	42	60	20

CCN 数濃度の NPF イベント前後の変化は、第一四分位数と第三四分位数の幅で表すと、47-234  $\text{cm}^{-3}$  増加し、その増加率は 123-302 % だった。この結果と先行研究<sup>4,5)</sup>による NPF 前後での CCN 数濃度  $N_{80}$  変化を図 1 にまとめた。

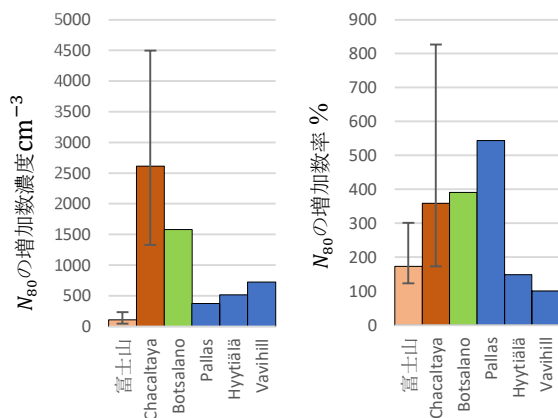


図 1 いくつかの観測点での NPF による N<sub>80</sub> の a) 増加数濃度及び b) 増加率の中央値。エラーバーの下限と上限はそれぞれ第一四分位数と第三四分位数を表す。

富士山では、増加数濃度は他地点に比べて低いが増加率は比較的高くなっている。これは、エアロゾルの総数濃度が低いことが原因であり、同じく総数濃度の低い Pallas でも似た結果が得られている。富士山以外の地点を比べるとエアロゾル数濃度が高い低緯度地域(Chacaltaya, Botsalano)では増加数と増加率共に高く、逆に高緯度地域(Hyytiälä, Vavihill)では、増加数と増加率は低くなる。日射量や生物の活動の量が多いほど、NPF による CCN 数濃度の増加は多くなると考えられる。また、Pallas における増加率は他地点と比べて高い。Pallas の特徴は極付近の清浄なエアマスの影響を受けやすいことがあげられ、そのエアマスの化学組成、または日照時間などが原因として考えられる。NPF による CCN 数濃度の増加は地域ごとに特徴が違い、ローカルな影響を受けやすいとわかった。

Mode 径が NPF 発生から 80nm まで増加したイベントは観測日数 209 日のうち 7 例あった。後方流跡線解析をすると、7 例の内 2 例は明らかなエアマスの変化があった。その二つはそれぞれ成長時間が 12 時間と 16 時間と長く、エアマス変化による mode 径の変化である可能性がある。これらを除く 5 例は、NPF 開始から 3~14 時間かけて 80nm まで成長した。図 2 は、上述の 5 例の内最も早く成長したイベントの粒径分布のカラープロットである。このイベントは直前に別の NPF が起きていて、既存粒子への凝集効果が高まり早く成長したと考えられる。また、この二つのイベントの間で、粒径分布から計算される粒子の総体積濃度は単調に増加していた。このことから、凝集のほか凝結も起きていることが分かった。ここで、核生成によって発生したエアロゾル粒子のブラウン運動による凝集を仮定して、凝集方程式を数値的に解いて mode 径の変化を計算した<sup>6)</sup>。図 2 の○マーカーは観測した mode 径、破線は数値計算で得た mode 径を表す。計算した mode 径は成長が遅く、凝結による成長と核生成の持続時間を同時に計算する必要があるとわかった。NPF の CCN 数濃度寄与を計算するにはエアロゾルの化学組成と過飽和度などの気象条件の決定が必要となる<sup>7)</sup>。

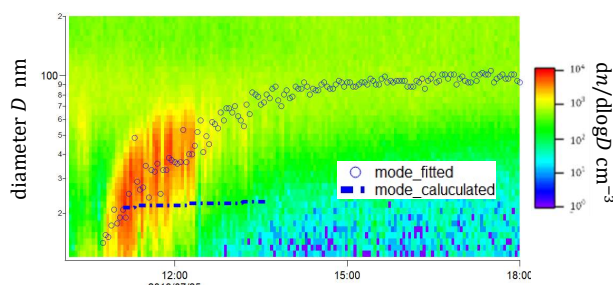


図 2 粒径分布カラープロットと凝集方程式を解いた結果

#### 4. まとめ

富士山頂におけるエアロゾル粒子個数粒径分布の観測により、NPF の CCN 数濃度への寄与を調べた。NPF 前後で N<sub>80</sub> は富士山では 47-234 cm<sup>-3</sup> 増加し、その増加率は 123-302 % だった。この結果は、他の観測点と比較するとエアロゾル数濃度の低い地域に特徴的なものとわかった。また、イベント前後の N<sub>80</sub> の二時間平均値で CCN 数濃度変化をみると 113 イベント中 60 イベントで N<sub>80</sub> は増加した。

一日に複数回 NPF が起きた日は凝集の効果による Mode 径の速い成長が確認できた。このとき、粒径分布の総体積濃度が単調に増加していることから凝結も起きていることが分かった。また凝集方程式をとり mode 径の変化を予測した結果、計算値は成長が遅く凝結核生成も計算する必要があるとわかった。従って、NPF の CCN 数濃度寄与を計算するにはエアロゾルの化学組成と過飽和度などの気象条件の決定が必要となる。

#### 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) Asmi, E. et al., Atmos. Chem. Phys., 11, 12959–12972, 2011.
- (2) Komppula, M. et al., J. Geophys. Res.-Atmos., 110, D06204, 2005.
- (3) Roberts, G. C. and Nenes, A., Aerosol Sci. Technol., 39, 206–221, 2005.
- (4) Kerminen, V.-M., et al., Atmos. Chem. Phys., 12, 12037–12059, 2012.
- (5) Rose, C. et al., Atmos. Chem. Phys., 17(2), 1529–1541, 2017
- (6) 三浦和彦, 藤田慎一, 大河内博, 速水洋, 松田和秀, 櫻井達也: 越境大気汚染の物理と化学, 2014
- (7) Jacobson, M. Z., J. Geophys. Res., 107, 4366, <https://doi.org/10.1029/2001JD002044>, 2002.