

富士山頂における小イオン濃度の測定

長岡 信頼、三浦 和彦、上田 紗也子、長谷川 朋子、府川 明彦、
玉木 麻子、山口 真司、永野 勝裕

Measurements of Atmospheric Small Ion Concentration at the Summit
of Mt. Fuji, Japan

Nobuyori Nagaoka, Kazuhiko Miura, Sayako Ueda, Tomoko Hasegawa, Akihiko Fukawa, Asako Tamaki,
Shinji Yamaguchi, and Katuhiro Nagano

Tokyo University of Science, 1-3 Kagurazaka, Shinjuku-ku, Tokyo, 162-8601, Japan

Abstract. In order to observe atmospheric ions in the free troposphere, measurements of atmospheric positive ions in the critical mobility range 5.0 and 0.63 cm²/Vs were conducted at the summit of Mt. Fuji (35.36N, 138.73E, 3776 m a.s.l.) from Aug. 8 to 23, 2011. Positive atmospheric ions were found to have a clear diurnal variation, with minimum concentrations during nighttime and with maximum daytime, which is possibly linked to ions transportation by valley breeze. This variation is clearer when the observation station is out of clouds in planetary boundary layer. A strong anti-correlation was found between air ion concentrations and coagulation sink. Enhanced ion concentrations were found when air mass had been transported over the sea and coagulation sink value is low.

Key words: small ion, diurnal variation, Mt. Fuji, free troposphere, aerosol, coagulation sink

1. はじめに

大気中に存在するイオンは、小イオン (粒径: < 1.6 nm)、中イオン (粒径: 1.6-7.4 nm)、大イオン (粒径: 7.4-79 nm) に分けられる (Hörrak *et al.*, 2003)。これまでに大気中のイオン (帯電した分子クラスターや粒子) は森林や山岳、海洋、都市などの様々な地域で観測されている (Mochizuki and Tanji, 1981; Tanji *et al.*, 1993; Hörrak *et al.*, 2003; Kulmala and Tammet, 2007; Venzac *et al.*, 2008; Kalivitis *et al.*, 2012)。

主なイオンの発生源は土壌からのラドンの崩壊や宇宙線の電離が挙げられ (Israël, 1970)、地上付近ではラドンが主となる。イオン濃度を減少させる主要な要因としては、イオン同士の再結合や、大気中の既存粒子への付着が挙げられる。イオンの付着しやすさは、イオンやエアロゾルのサイズと濃度に強く依存する。エアロゾル濃度が高い場所では大気イオンは減少しやすく、山岳のような清浄な空気よりも霧や汚染された大気のほうがイオン濃度は低い傾向がみられる (Reiter, 1986)。また、小イオンに対して雲が強い除去作用を持つことが知られている (Boulon *et al.*, 2010)。以上のように、複数のイオン濃度変化の要因があげられるが、大気中でのイオン濃度がどのように支配されているか、明確に示した研究は少ない。

エアロゾル粒子はイオンの消失源である一方で、小イオンからエアロゾル粒子が生成されるケースもある。これはイオン誘発核生成と呼ばれるプロセスであり、電荷を帯びたクラスターを核としてエアロゾルが形成される過程を指す。エアロゾルは光散乱吸収や雲凝結核として、地球の放射収支に重要な役割を担っている。ユングフラウヨッホにおいてイオン誘発核生成が核生成に

与える寄与は22.3%とされるなど (Lee *et al.*, 2003)、イオン誘発核生成も大気中のエアロゾル数濃度を定める重要なプロセスの一つといえる。特に、上部対流圏においては、宇宙線などによるイオン生成が新粒子生成に結びつく可能性が理論、観測研究によって示唆されている (Eichkom *et al.*, 2002; Lee *et al.*, 2003; Venzac *et al.*, 2008)。Venzac *et al.* (2008) はヒマラヤでイオン濃度とエアロゾル濃度の観測を行い、イオン誘発核生成と見られるイベントを頻繁に観測した。この結果は、イオン誘発核生成が自由対流圏のエアロゾル濃度を強くコントロールしていることを示唆している。このような点で、自由対流圏でのイオン濃度の変動要因および、エアロゾルとの関係を明瞭にする必要がある。

本研究では夏季に、高高度に位置する富士山頂 (3776 m) の小イオン濃度を測定し、その変動についての解析を行った。富士山頂は年間を通じてほぼ自由対流圏に位置するため、ローカルな汚染が少なく、中国大陸からの汚染大気や海洋からの清浄な大気やバックグラウンド大気が測定できることが期待される。また、小イオン濃度の他にエアロゾル濃度、ラドン濃度など、イオンに影響を与えるとされているパラメーターも同時計測し、それらが小イオン濃度に与える寄与についても解析した。

2. 方法

2.1 測定

観測は2011年8月9日から8月23日の期間、富士山頂の富士山特別気象観測所 (旧富士山測候所: 3776 m, 35.36N, 138.73E) で行った (Fig. 1)。本研究ではゲルディエン (Gerdien) コンデンサーと呼ばれる二重同軸円筒を用いたイオンカウンター (COM-3400) により正の小イオン濃度を2つの臨界移動度 (5.0, 0.63 cm²/Vs) で2分毎に測定した。臨界移動度 5.0, 0.63 cm²/Vs を観測期間中の富士山頂の平均気圧 (645 hPa) と平均気温 (283 K) を用いて換算した場合、換算移動度はそれぞれ 3.1, 0.38 cm²/Vs となる。臨界移動度 0.63 cm²/Vs は大気中のほぼ全ての小イオン濃度を測定し、臨界移動度 5.0 cm²/Vs は小イオンのなかでも比較的小さい粒径の小イオン濃度を測定する。以後、臨界移動度 0.63 と臨界移動度 5.0 cm²/Vs の正イオン濃度はそれぞれ $N_{0.63}$, $N_{5.0}$ と表示する。正イオンと同時に、エアロゾル濃度を SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) で直径 11.5 - 365.2 nm を、光散乱式粒子測定器 (OPC: KR12A) で直径 0.3 μm 以上を 5 ch で 3 分ごとに測定した。また、正イオン濃度は南面の窓からアルミホイル製のジャバラを出して直接に外気を 50 L/分で引いて測定した。SMPS と OPC は導電性チューブから直接引いた外気をディフュージョン・ドライヤーに通して相対湿度 30% 以下の乾燥状態にして測定した。

今回の観測では山頂の他に山頂の麓にある旧気象庁太郎坊避難小屋前の空地 (海拔 1290 m (以下太郎坊)) で正イオン濃度を山頂と同じ方法で臨界移動度別に同時測定し、山頂と下層大気の子イオン濃度の比較を行った。また、測定器の器差を補正して解析した。

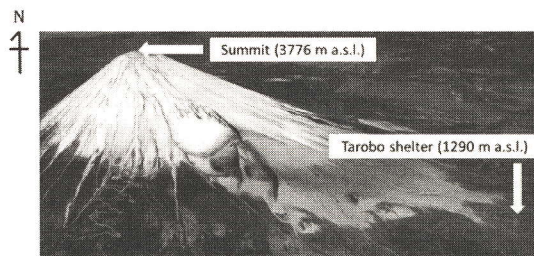


Fig. 1 Sites of measurements at Mt. Fuji.

2.2 凝集速度 (Coagulation sink) の算出

凝集速度 (CoagS) はある粒径の粒子が既存粒子へ凝集することによって除去される速さであ

る。凝集速度の計算は Kulmala *et al.* (2001) の方法を用いて算出し、小イオンの成長を妨げる目安とした。

CoagS は以下の式で求まる。

$$\text{CoagS} = \sum_j K_{ij} N_j$$

ここで、凝集係数 K_{12} は $R_{12} = R_1 + R_2$, $D_{12} = D_1 + D_2$ とすると、

$$K_{12} = \frac{K_C^B}{\frac{R_{12}}{R_{12} + \sigma_{12}} + \frac{4D_{12}}{\bar{c}_{12}R_{12}}}$$

$$K_C^B = 4\pi(R_1 + R_2)(D_1 + D_2)$$

$$D_i = \frac{kTC_c}{6\pi\mu R_i}$$

で表される。 N_j : j 番目の粒径の粒子数濃度、 R_i : 粒子の半径、 D_i : 粒子の拡散係数、 μ : ガスの動粘性係数、 k : ボルツマン定数である。また、カニンガム補正因子は

$C_c = 1 + K_n \left(\alpha_1 + \alpha_2 \exp\left(-\frac{\alpha_3}{K_n}\right) \right)$, $\alpha_1 = 1.142$, $\alpha_2 = 0.558$, $\alpha_3 = 0.999$ を用いた (Allen and

Raabe, 1985)。 K_n は クヌーセン数である。

$$\bar{c}_{12} = \sqrt{\bar{c}_1^2 + \bar{c}_2^2}, \quad \bar{c}_i = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m_i}}$$

また、 \bar{c}_{12} : 粒子間の平均相対熱運動速度、 \bar{c}_i : 質量 m_i の粒子の平均速度である。

$\sigma_{12} = \sqrt{\omega_1^2 + \omega_2^2}$ は二つのフラックスが一致した距離で、

$$\omega_i = \frac{(R_{12} + \gamma_i)^3 - (R_{12}^2 + \gamma_i^2)^{3/2}}{3R_{12}\gamma_i} - R_{12}, \gamma_i = \frac{8D_i}{\pi\bar{c}_i}$$

を示す。

本研究では、エアロゾルのサイズと濃度に依存する CoagS を SMPS と OPC の粒径別個数濃度を用いて、粒径 1.4 nm のイオンに対して算出した。

2.3 流跡線の分類

エアマスの輸送経路および輸送高度が小イオン濃度に与える影響を調べるために、NOAA の HYSPLIT モデル (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>) を用いて、3 日前までの後方流跡線を一時間ごとに計算した。それによりエアマスを大陸由来、日本由来、海洋から陸由来、海洋由来の 4 つの由来別に分けた。さらに、富士山頂が明らかに自由対流圏に位置したときとそれ以外を分類するために、海拔 2000 m 以上を通過してきたエアマスを自由対流圏由来 (FT 由来)、2000 m 以下を通過してきたエアマスをそれ以外の由来と定義した (Fig. 2)。

2.4 雲の有無

雲の有無は 5 分ごとのライブカメラを用いて識別した。日没後は雲の有無を確認ができないため、日の出から日没の時間帯で正イオン濃度と雲の有無について比較を行った。

3. 結果と考察

3.1 時系列の変化

Figure 3 は、後方流跡線の分類結果 (a)、雲の有無 (b)、臨界移動度ごとの正イオン濃度 (c) ラ

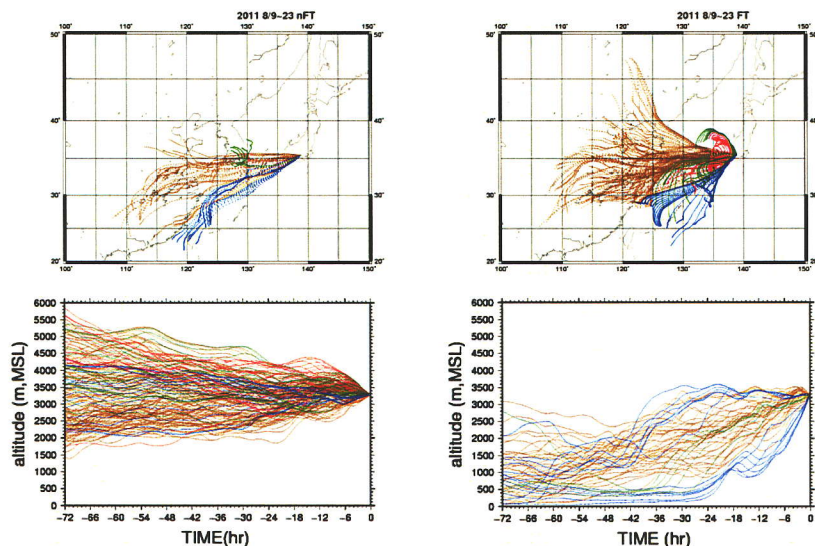


Fig. 2 (a) Horizontal(top) and vertical (bottom) backward trajectories for three days in the free troposphere and (b) the non-free troposphere.

We defined air masses that had been in higher altitude 2000m above sea level as the free troposphere (FT) (left), the other air masses were defined as the non-free troposphere (nFT) (right). The different colors represent the different types of air masses, Continental (brown), Maritime (blue), Japan (red), and Sea to land (green). These trajectories are drawn every hour.

ドン濃度 (d)、SMPS から得られたエアロゾル濃度 (e)、粒径 1.4 nm に対する CoagS (f) の時間変化を示す。なお、8 月 19 日の 14 時から 20 日の 17 時までの正イオン濃度は停電のために欠測となっている。

観測期間中、天候が晴天時の正イオン濃度は日中に増加し、深夜に減少する日変動を示すことが多かった。一方で、雨天時は正イオン濃度の日変動は見られず、 N_{063} は晴天時と比べて比較的高い状態であった。また、14 日深夜から 15 日の早朝にかけて N_{063} が上昇する普段と異なる変動が見られた。この時、小イオンからエアロゾルが生成されるイオン誘発核生成が起こった可能性があるが、新粒子生成について本論文では議論しない。

3.2 正イオン濃度の日変動

Figure 4 は富士山頂と太郎坊の N_{063} を各時刻で平均した日変動を示す。観測期間中で山頂の N_{063} は日中に増加し、深夜に減少する日変動がみられた。一般に大気中の小イオンの生成源は宇宙線やラドンなどの放射性核種が挙げられる。ラドンは平常時に日変動をすることが知られていて (Kojima, 1996)、ラドンが小イオンの日変動に影響を与えることが予想されたが、山頂のラドンには規則正しい日変動は見られないことが多かった (Fig. 3d)。小イオンとラドンとの対応は次節で述べる。次に、宇宙線について考えた場合、宇宙線フラックスの日変動は通常はほぼ観測されず、一日より長いタイムスケールで変動すると考えられる。つまり、正イオン濃度の日変動はラドンや宇宙線フラックスではなく、他のイオン源が影響して引き起こされると考えられる。

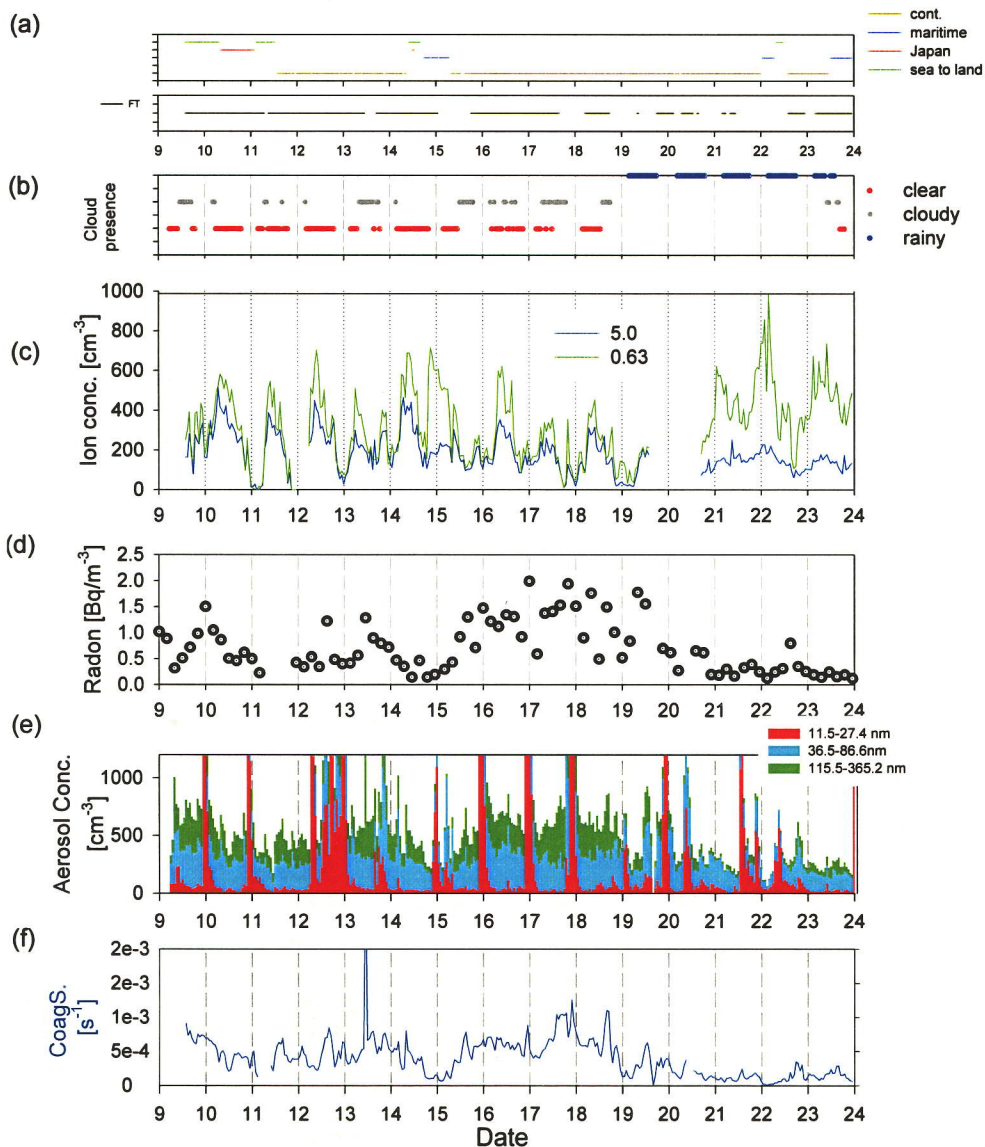


Fig. 3 Temporal variations of (a) backward trajectory route (b) cloud presence (c) atmospheric positive ion concentration in the critical mobility range 5.0, 0.63 cm^2/Vs (d) radon concentration (e) aerosol concentration (f) CoagS for atmospheric positive ion in the size range below 1.4 nm.

一方で、高高度における山岳の小イオン濃度は日中に下層の気塊が鉛直輸送されることで上昇することが知られている (Boulon *et al.*, 2010)。富士山頂においても山の斜面が加熱されることにより起こる谷風による大気鉛直輸送が報告されている (Fujishiro *et al.*, 2009)。2005年7月に測定した黒色炭素濃度の日変動には、大気境界層内起源のエアロゾル粒子の山頂への輸送が影響した (Kaneyasu *et al.*, 2007)。山頂と太郎坊の正イオン濃度を比較すると、夜間の太郎坊の N_{063} が山

頂の日中の $N_{0.63}$ と近い値を示している (Fig. 4)。また、山頂の正イオン濃度と日照時間との間に強い正の相関が見られた。以上のことから、晴天日の日中に下層大気が山頂に鉛直輸送され、それによって小イオンも山頂に輸送された可能性がある。

3.3 ラドン・エアロゾルとイオン濃度の関係

15日から19日はラドン濃度が高い値を示した。この時のエアマスの起源は中国大陸であった。その際、100 nm 以上の粒子濃度も高い傾向にあるが、 $N_{0.63}$ に明確な変化は見られなかった (Fig. 3)。

Hörrak *et al.* (2000) によると臨界移動度 $0.63 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ (換算移動度 $0.38 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) のイオンの粒径は約 1.4 nm である。また、 N_{500} と $N_{0.63}$ の差は比較的大きなサイズの正の小イオン濃度 (約 0.1-1.4 nm 程度) を示す。Fig. 5 に N_{500} と $N_{0.63}$ の差と粒径 1.4 nm に対する CoagS の頻度分布を示す。 N_{500} と $N_{0.63}$ の差が大きくなるときに CoagS が低くなる傾向がみられ、正イオン濃度と CoagS には負の相関がみられた。これは CoagS が低くなり、イオンの消失要因でもあるエアロゾルへの付着が減少することで、正イオン濃度が上昇し、イオンが成長したと考えられる (Fig. 5)。このような結果は Kalivitis *et al.* (2012) によっても報告されている。

3.4 雲による影響

富士山頂が一日中雲の外にある日は8月10日、12日、14日の計3回あった。この時、日中に正イオン濃度が高くなる明確な日変動が見られた。その一方で、富士山頂が雲に覆われているときは正イオン濃度が低くなり明確な日変動を示さなかった (Fig. 3b)。雨天時は日変動を示さなかったが正イオン濃度は高い状態であった。この原因として、降水により既存粒子が除去されることによって CoagS が減少し、正イオン濃度に影響したことが考えられる。

さらに、正イオン濃度に対する雲の影響を細かく見るために、晴天の時から雲の中に入った時の正イオン濃度の変化を見た。このような事例は観測期間中で4回見られた。雲出没時の正イオン濃度変化の例として、2011年8月11日の5:00 ~ 9:00を示す。5分ごとに記録したカメ

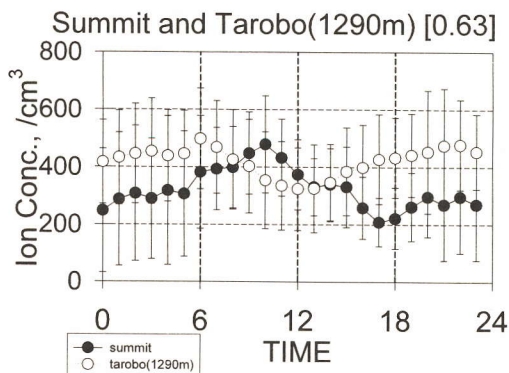


Fig. 4 Mean diurnal cycles (hourly averages), at summit and Tarobo in Mt. Fuji of atmospheric ion concentrations in the critical mobility range $0.63 \text{ cm}^2/\text{Vs}$.

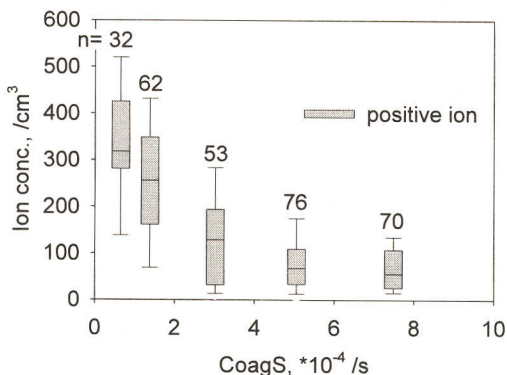


Fig.5 Variability of atmospheric cluster concentrations at the critical mobility range $5.0 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, - $0.63 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ depending on CoagS for atmospheric positive ion in the size range below 1.4 nm. The boundary of the box closest to zero indicates the 25th percentile, lines within the box represent the median. The boundary of the box located most distally from zero indicates the 75th percentile. Whisker above and below the box indicate 90th and 10th percentiles. Numbers (n =) represent the number of date used.

ラ画像から 7:30 頃に雲に入り 8:15 頃に雲を出たと判断した (Fig. 6, 灰色帯)。この時間帯で N_{063} が減少していることがわかる。この時の雲入り前と雲入り後の N_{063} の比較から減少率を算出したところ 47% であった。残りの 3 回の事例に対しても同様の計算を行った結果、正イオン濃度の減少率は 36% - 47% であった。この値は、ユングフラウヨッホにおける小イオン濃度の減少率 44% - 66% (Boulon *et al.*, 2010) より少し小さい。また、先行研究で雲が小イオン濃度に対して強い除去作用を持つことが知られている (Lihavainen *et al.*, 2007)。

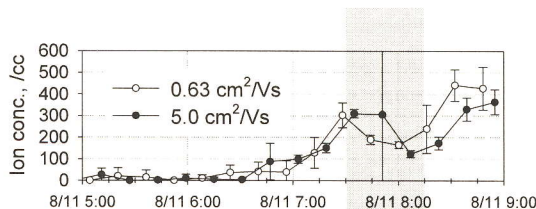


Fig. 6 Variation of positive ion concentration.

3.5 エアマス起源解析

観測期間中は中国大陸からのエアマスが卓越し、ほぼ自由対流圏に位置していたと考えられる。エアマスの由来が海洋からの場合に、CoagS が低い期間が多く、 N_{063} が高い状況であった。これは、小イオンがエアロゾルに除去されにくい状況になり、 N_{063} が高くなったと考えられる。好天時でかつエアマスが陸由来の際は CoagS が高い傾向が見られたが、 N_{063} には特徴的な傾向は見られなかった (Fig. 3a)。また、自由対流圏と大気境界層で正イオン濃度の比較を行ったが大きな差異は見られなかった。

4. 終わりに

2011 年夏季に富士山頂にて、正イオン濃度の連続測定を行った。大気中の正イオン濃度には晴天下で日中に最大、深夜に最小となる明確な日変動が見られた。これは日中に谷風により下層のイオンが山頂に輸送されたことが影響したと考えられる。また、大気中の正イオン濃度にエアロゾルが深く関係して、正イオン濃度は CoagS との間に強い負の相関が見られた。さらに、観測地点が雲の中に入ることによって正イオン濃度に減少がみられ、雲が正イオンの除去作用を持つことを確認した。

謝辞

富士山観測にあたり多くの研究者や学生にお世話になったことを深く感謝し、皆様に深く御礼申し上げます。また、観測については、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。NPO 法人「富士山測候所を活用する会」の関係者の皆様に、心から感謝する。なお、本研究の一部は東京理科大学特定研究助成金共同研究、科研費基盤研究 C (22510019)、東京理科大学総合研究機構山岳大気研究部門 2011 年度活動経費・活動補助費の助成により行われた。

References

- Allen, M. D. and Raabe, O. G.: Slip correction measurements of spherical solid aerosol particles in an improved Millikan apparatus. *Aerosol Sci. Technol.*, **4**, 269-286, 1985.
- Boulon, J., Sellegri, K., Venzac, H., Picard, D., Weingartner, E., Wehrle, G., Baltensperger, U., and Laj, P.: New particle formation and ultrafine charged aerosol climatology at a high altitude site in the Alps (Jungfraujoch, 3580 m a.s.l., Switzerland). *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **10**, 11361-11399, doi:10.5194/acpd-10-11361-2010, 2010b.

- Eichkorn, S., Wilhelm, S., Aufmhoff, H., Wohlfrom, K., and Arnold, F.: Cosmic ray-induced aerosol formation: First evidence from aircraft-based ion mass spectrometer measurements, *Geophys. Res. Lett.*, **29** (14), doi:10.1029/2002GL015044, 2002.
- Fujishiro, S., Miura, K., Fujita, S. and Kobayashi, H.: Quantity of Aerosols Transported by a Valley Wind at Mt. Fuji, *Eurozoru Kenkyu*, **24**, 123-128, 2009. (in Japanese)
- Hörrak, U., Salm, J. and Tammet, H.: Statistical characterization of air ion mobility spectra at Tahkuse observatory: Classification of air ions. *J. Geophys. Res. Atmospheres*, **105**, 9291–9302, 2000.
- Hörrak, U., Salm, J., and Tammet, H.: Diurnal variation in the concentration of air ions of different mobility classes in a rural area, *J. Geophys. Res.*, **108**(D20), 4653, doi:10.1029/2002JD003240, 2003.
- IPCC, S. Solomon, D. Qin, M. Manning, M. Marquis, K. Averyt, M. M. B. Tignor, H. L. J. Miller and Z. Chen (eds.): Climate Change 2007 – The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, *Cambridge University Press*, Cambridge, 2007.
- Israël, H. *Atmospheric Electricity*, Vol. I, Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem, 1970.
- Kalivitis, N., Stavroulas, I., Bougiatioti, A., Kouvarakis, G., Gagné, S., Manninen, E. H., Kulmala, M., Mihalopoulos, N.: Night-time enhanced atmospheric ion concentrations in the marine boundary layer, *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 3627-3638, 2012.
- Kaneyasu, N. and Igarashi, Y.: Light Absorption Characteristics of Atmospheric Aerosols Observed at the Summit of Mt. Fuji in Early Summer, *Eurozoru kenkyu*, **22**, 318-321, 2007. (in Japanese)
- Kojima H.: The equilibrium factor between radon and its daughters in the lower atmosphere. *Environ Int.*, **22** [Suppl 1]: S187-S192, 1996.
- Kulmala, M., Dal Maso, M., Mäkelä, J. M., Pirjola, L., Väkevä, M., Aalto, P., Miikkulainen, P., Hämeri, K., and O'Dowd, C. D.: On the formation, growth and composition of nucleation mode particles, *Tellus B*, **53**, 479–490, 2001.
- Lee, S.-H., Reeves J. M., Wilson, J. C., Hunton, D. E., Viggiano, A. A., Miller, T. M., Ballenthin, J. O., and Lait, L. R.: Particle formation by ion nucleation in the upper troposphere and lower stratosphere, *Science*, **301**, 1886-1889, 2003.
- Lihavainen, H., Komppula, M., Kerminen, V.-M., Järvinen, H., Viisanen, Y., Lehtinen, K., Vana, M., and Kulmala, M.: Size distribution of atmospheric ions inside clouds and in cloud-free air at a remote continental site, *Bor. Environ. Res.*, **12**, 337–344, 2007.
- Mochizuki, S. and Tanji, T.: Radioactive aerosols in the atmosphere over the ocean of south Japan Islands III, *Res. Lett. Atmosph. Electr.*, **1**, 9-14, 1981. (in Japanese)
- Reiter, R.; *Fields, Currents and Aerosols in the Lower Troposphere*, Balkema, Rotterdam, 1986.
- Tanji, T., Okino, M., Mochizuki, S. and Sugioka, I.: Atmospheric Electrical Conductivity and Radon Daughters in the Atmosphere over the Pacific Ocean, *J. Atmos. Electr.*, **13**, 59-63, 1993.
- Venzac, H., Sellegri, K., Laj, P., Villani, P., Bonasoni, P., Marinoni, A., Cristofanelli, P., Calzolari, F., Fuzzi, S., Decesari, S., Facchini, M.-C., Vuillemoz, E., and Verza, G. P.: High frequency new particle formation in the Himalayas, *P. Natl. Acad. Sci. USA*, **105**, 15666–15671, 2008.

(Received December 1, 2012; revised June 3, 2013;
accepted June 20)