

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月31日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22510019

研究課題名（和文） 都市、海洋、山岳大気中の小イオン濃度を与えるエアロゾル、ラドン、宇宙線の影響

研究課題名（英文） Effects of aerosols, radon, and cosmic ray on concentration of small ions in the urban, maritime, mountain atmosphere

研究代表者

三浦 和彦 (MIURA KAZUHIKO)

東京理科大学・理学部第一部・准教授

研究者番号：00138968

研究成果の概要（和文）：都市、海洋、山岳大気において、小イオン濃度と同時に、エアロゾル粒子の粒径分布、ラドン濃度、宇宙線強度を測定し、その変動要因を調べた。小イオン濃度と既存粒子への付着速度との間に負の相関が見られ、小イオンがエアロゾルに付着して減少することが示された。また、海上の小イオン濃度と風速との間に正の相関が見られ、小イオンは海水の泡がはじける時に生成されることがわかった。

研究成果の概要（英文）：We have observed small ions, aerosol size distributions, radon concentrations, and intensity of cosmic rays in the urban, maritime, and mountain atmosphere. There is a negative relation between ion concentration and coagulation sink at all measured places. This suggests that concentration of small ions decreases by ion-aerosol attachment. There is a positive relation between ion concentration and wind speed over the ocean. This suggests that small ions are generated by bubble bursts of seawater.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：イオン、エアロゾル、ラドン、宇宙線、核生成

## 1. 研究開始当初の背景

エアロゾル粒子は雲凝結核として作用し雲の放射特性に影響を与えるが、いまだ科学的理解の水準は低い (IPCC2007, 2007)。雲水量を一定とすると、雲凝結核が多い方が雲粒の大きさが小さいので、雲凝結核が少ない時よりも雲の散乱特性が強くなり、また雨になりにくいため雲の寿命も長く、雲の冷却効果が強くなる。また一般にエアロゾル数が多いほど、雲凝結核数も多くなる。しかし、どのよ

うな条件の時に新粒子生成が起こるか、いまだ明らかとなっていない。

粒子生成には海塩粒子や土壌粒子のような一次粒子の生成と、気体からの二次粒子生成があるが、個数濃度に寄与するのは気体からの粒子化である。そのプロセスには2種類ある。一つは無核粒子生成で、例としてH<sub>2</sub>O-SO<sub>2</sub>-NH<sub>3</sub>系が挙げられる。都市大気のようにこれらの気体の濃度が高い環境で生成が行われる。しかし、既存粒子が多い場合

はそれらに凝結する（有核粒子生成）ため、新粒子生成は起こりにくい。もう一つはイオン誘発核生成である。イオンが核になると平衡蒸気圧が低くなり、粒子化が起こりやすくなるが、やはり既存粒子が多い場合はイオン誘発核生成も起こりにくい。小イオン濃度とエアロゾル濃度との兼ね合いが重要となる。

小イオンは宇宙線、地殻からの放射線、大気中ラドン及びその娘核種から放射される放射線による電離で生成される（日本大気電気学会編、2003）。正負の小イオン（分子クラスター）は再結合する事により消滅する。またエアロゾルに付着し電荷を受け渡し大イオンとなる。電荷を失ったクラスターはバラバラの分子となり消滅する（小イオンの消滅）。

$$dn/dt = q \cdot n^2 \cdot \beta nN$$

ここで  $n$ : 小イオン濃度、 $N$ : エアロゾル濃度、 $q$ : イオン対生成率（電離量）、 $\alpha$ : 再結合係数、 $\beta$ : 付着係数である。都市では  $N \gg n$  なので、 $dn/dt \sim q - \beta nN$  となる。平衡状態では  $q = \beta nN$  となり、 $q$  が一定であれば、 $n$  は  $N$  と反比例する。しかし、海洋や山岳では粒子濃度が低いし、かつ山岳では宇宙線強度が強いため電離量が多い。

ところで、基礎生産性の高い海域から放出される生物起源気体は、海洋エアロゾル粒子の重要な起源である。粒子数が増加することにより、雲は大気の負の放射強制力を増し、温暖化を抑制するという仮説（Charlson *et al.*, 1987）が提唱されている。しかし、大気境界層には海塩粒子が存在するので新粒子生成は起こりにくく、海面付近でナノ粒子の増加を観測した例は少ない。そして、その例も自由対流圏で生成したものが高気圧下で沈降したものであると考えられている（Covert *et al.*, 1996）。そこで、三浦は、年間を通して自由対流圏内に位置することが多い富士山山頂において、2006 年から夏季だけではあるがナノ粒子の粒径分布の測定をしている。これまで、直径 10nm 以下の粒子が高濃度となるイベントは 2006 年～2009 年の夏季 75 日間の測定中、57 回観測された。このイベントは日中より夜間に多かった。そのほとんどが山麓の太郎坊（1300m）では観測されず、下層から輸送されたものではなく、自由対流圏を輸送されたものか、ローカルな発生と思われた。しかし、新粒子生成によるものかどうか、そのプロセスについてはまだ良くわかっていない（Miura *et al.*, 2008）。

## 2. 研究の目的

近年、宇宙線強度と雲量の間に関連があることが指摘されたが、その原因としてイオン誘発核による粒子生成が考えられる。イオン誘発核生成は、既存粒子が少なく、小イオン濃度が高い環境で起こると予想されるが、定

量的な報告は少ない。本研究では、都市大気、海洋大気、山岳大気と異なる環境において、小イオン濃度と同時に、エアロゾル粒子の数ナノメートルからの粒径分布、ラドン濃度、宇宙線強度を測定し、それらの影響について明らかにする。また、気象要素などと比較し、どのような状況で小イオン濃度が高濃度になるか明らかにする。

## 3. 研究の方法

### (1) 山岳大気

富士山測候所（標高 3776m）と山麓の太郎坊（標高 1300m）において、2010 年～2012 年夏季に観測を実施した。1 号庁舎 2 階の窓から外気を引き、拡散ドライヤーで 20% 以下に乾燥させ、走査型移動度分析器（SMPS）と光散乱式粒子計数器（OPC）を用いて 4.4～5000nm にわたる粒径分布を測定した。小イオン濃度はゲルディエン（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 2 つの臨界移動度（5.0, 0.63 cm<sup>2</sup>/Vs）で 2 分毎に測定した。臨界移動度 0.63 cm<sup>2</sup>/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 cm<sup>2</sup>/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。また、富士山頂では宇宙線（宇宙線計測器）も同時に測定した。

凝集速度（CoagS）の計算は Kulmala *et al.* (2001) の方法を用いて算出した。CoagS は以下の式で求まる。

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

ここで、 $K_{ij}$  は凝集係数、 $N_j$  は  $j$  番目の粒径の粒子数濃度である。

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。

また、測定したエアマスの発生源を推定するためのトレーサーとしてラドン、オゾン、一酸化炭素、NO<sub>x</sub> を測定した。ラドンは、フィルターに捕集したエアロゾルから放射する  $\alpha$  線を計数し、放射平衡を仮定して求めた。オゾン、一酸化炭素はそれぞれ、Thermo Environment Model 48C, 49C を用いて測定した。

また、鉛直構造を調べるため、太郎坊において 2011～2012 年に係留気球観測、ゾンデ

観測を行った。ゾンデ観測では3時間ごとにGPSゾンデにより気温・湿度・気圧(高度)と同時に風向・風速も測定した。2006年、2007年はほぼ良い天気であったが、2011年は悪天候だった。気象場のシミュレーションは気象モデル(WRF)を用いた。水平方向には3段階のネスティングを行い、富士山周辺域を解像度1kmで行った。鉛直方向は上空約17kmまでを50層に分割した。初期・境界条件にはNCEP-FNL全球再解析データ、気象庁メソ客観解析データを用いた。

(2) 海洋大気

白鳳丸のKH-11-10, KH-12-1 (EqPOS)航海(2011年12月1日~2012年3月6日)において、太平洋上で小イオン濃度、ラドン濃度、エアロゾル粒径分布を測定した。

4. 研究成果

(1) 山岳大気

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、正イオン濃度は粒径1.4nmに対する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の減少がみられ、雲が正イオンの除去作用を持つことを確認した。

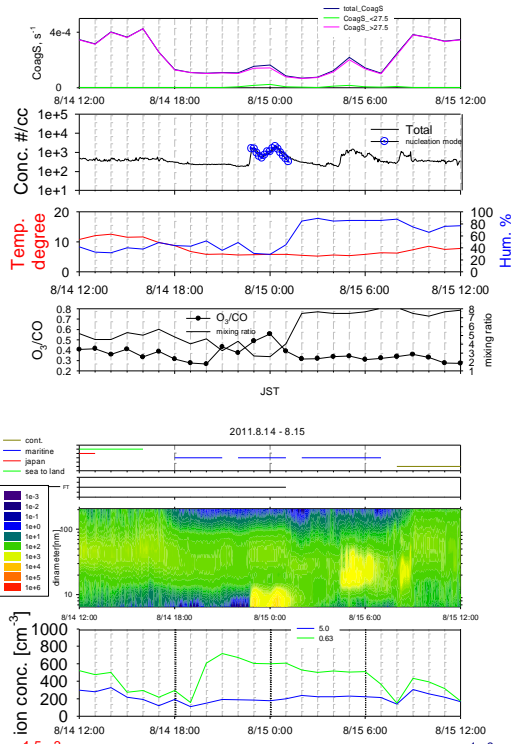


図1 イオン誘発核生成時の粒径分布、小イオン濃度、凝集速度、気温、相対湿度、O<sub>3</sub>/CO、水蒸気混合比の時間変化

3年間の測定中、イオン誘発核生成と思われるイベントは2011年8月14日の夜から15日の朝にかけ1例測定された(図1)。この時、既存粒子への凝集速度が小さかったため、小イオン濃度が高かった。また、O<sub>3</sub>/COの値が低く、水蒸気混合比が低かったことから、上空の空気が下降してきた可能性があることが暗示された。

(2) 海洋大気

小イオン濃度と風速との間に正の相関が観測された。このことは、白波の泡が破裂する時にイオンが発生することを暗示している。この関係は正負イオンとも見られた。

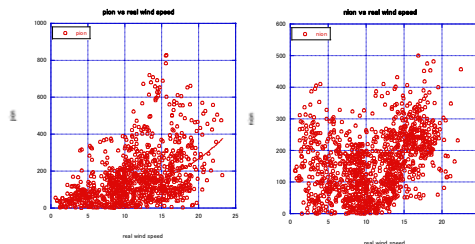


図2 小イオン濃度と風速の関係

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計28件)

1. Kobayashi, H., Hayashi, M., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Nishizawa, T., Sugimoto, N., and Kaneyasu, N. (2012). Development of polarization optical particle counter to detect particle shape information, *Proc. SPIE 8526, Lidar Remote Sensing for Environmental Monitoring XIII*, 852609 (November 19, 2012); doi:10.1117/12.979634 査読有
2. Keiichi Akahane, Shunsuke Yonai, Shigekazu Fukuda, Nobuyuki Miyahara, Hiroshi Yasuda, Kazuki Iwaoka, Masaki Matsumoto, Akifumi Fukumura & Makoto Akashi : NIRS external dose estimation system for Fukushima residents after the Fukushima Dai-ichi NPP accident, *Scientific Reports 3* : 1670 | DOI: 10.1038/srep01670, 2012 査読有
3. 長谷川朋子・三浦和彦・飯沼和久・小林拓 : 富士山山頂における雲凝結核濃度の測定、エアロゾル研究、27, 189-196, 2012 査読有, [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/27/2/27\\_189/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jar/27/2/27_189/_pdf)
4. Iwamoto, Y., K. Yumimoto, M. Toratani, A. Tsuda, K. Miura, I. Uno and M. Uematsu : Biogeochemical implications of increased mineral particle concentrations in

surface waters of the northwestern North Pacific during an Asian dust event, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L01604, doi:10.1029/2010GL045906, 2011 査読有

5. Hiroshi Furutani, Jinyoung Jung, Kazuhiko Miura, Akinori Takami, Shungo Kato, Yoshizumi Kajii, and Mitsuo Uematsu : Single Particle Chemical Characterization and Source Apportionment of Iron-Containing Atmospheric Aerosols in Asian Outflow, *J. Geophys. Res.*, 116, D18204, doi:10.1029/2011JD015867, 2011 査読有

6. Kazuaki Yajima and Hiroshi Yasuda: Measurement of cosmic-ray origin neutrons using a scintillation detector at the summit of Mt. Fuji. *Radiat. Meas.*, 2011, 46:1724-1727, <http://dx.doi.org/10.1016/j.radmeas.2011.07.017>, 2011 査読有

7. 小林 拓・三浦和彦・兼保直樹・五十嵐康人: 夏季富士山山頂で測定された不溶性粒子の粒径分布、*エアロゾル研究*, **25**(2)、167-176、2010 査読有, [https://www.jstae.go.jp/article/jar/25/2/25\\_2\\_167/pdf](https://www.jstae.go.jp/article/jar/25/2/25_2_167/pdf)

[学会発表] (計 71 件)

1. 府川明彦、永野勝裕、児島 紘、三浦和彦、上田紗也子、武田真憲: 富士山頂におけるラドン濃度の変動、日本大気電気学会第 88 回研究発表会、東京理科大学、2013. 1. 10

2. 長岡信頼、羽賀菜津美、三浦和彦、上田紗也子、小林 拓: 富士山頂における新粒子生成、日本大気電気学会第 88 回研究発表会、東京理科大学、2013. 1. 10

3. Hiroshi Furutani, Yoichi Inai, Shuji Aoki, Hideyuki Honda, Yuko Omori, Hiroshi Tanimoto, Toru Iwata, Sakyaka Ueda, Kazuhiko Miura, Mitsuo Uematsu : Biogeochemical linkage between atmosphere and ocean in the eastern equatorial Pacific Ocean: Results from the EqPOS research cruise, 2012 AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, Dec. 6, 2012 (Invited)

4. Kazuhiko Miura, Sakyaka Ueda, Nobuyori Nagaoka, Akihiko Fukawa, Katsuhiko Nagano, Hiroshi Kobayashi, Hiroshi Yasuda, Kazuaki Yajima, Hiroshi Furutani, Mitsuo Uematsu : Concentration of small ions measured at the center of Tokyo, at the summit of Mt. Fuji, and over the Pacific Ocean, 2012 AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, Dec. 4, 2012

6. 三浦和彦、府川明彦、菊地亮太、永野勝裕、佐竹晋輔、櫻井達也、小林 拓、高橋 宙、五十嵐康人、富士山周辺の自由空間の気温と山頂の気温の違い (2)、日本気象学会 2012

年度秋季大会、北海道大学、2012. 10. 5

7. 府川明彦、三浦和彦、上田紗也子、永野勝裕、佐竹晋輔、櫻井達也: 富士山頂における谷風の影響、日本気象学会 2012 年度秋季大会、北海道大学、2012. 10. 5

8. 長岡信頼、三浦和彦、上田紗也子: 富士山における小イオンの測定、日本気象学会 2012 年度秋季大会、北海道大学、2012. 10. 3

9. 三浦和彦・上田紗也子・府川明彦・桐山悠祐、永野勝裕、小林 拓、速水 洋、佐竹晋輔、櫻井達也: 富士山大気の鉛直構造、日本大気電気学会第 87 回研究発表会、大阪大学、2012. 9. 13

11. Kazuhiko-Miura, Nobuyori Nagaoka, Asami Suzuki, Akihiko Fukawa, Katsuhiko Nagano, Asako Tamaki, Shinji Yamaguchi, Ueda, Sayako, Hiroshi Kobayashi, Hiroshi Yasuda : Concentration of small ions measured at the center of Tokyo and at the summit of Mt. Fuji, Japan Geoscience Union Meeting 2012, Makuhari, Chiba, May 22, 2012

12. 府川明彦、永野勝裕、児島 紘、三浦和彦、上田紗也子、武田真憲: 富士山頂におけるラドン濃度の変動、日本大気電気学会第 86 回研究発表会、電気通信大学、2012. 1. 6

13. 長岡信頼、三浦和彦、上田紗也子、鈴木麻未、玉木麻子、府川明彦、永野勝裕、保田浩志、小林 拓: 富士山における小イオンの測定、日本大気電気学会第 86 回研究発表会、電気通信大学、2012. 1. 6

14. 鈴木麻未、三浦和彦、長岡信頼、平林頌子、府川明彦、永野勝裕、保田浩志: 東京神楽坂における大気電気伝導率の測定、日本大気電気学会第 86 回研究発表会、電気通信大学、2012. 1. 6

15. 三浦和彦、上田紗也子、永野勝裕、速水 洋、小林 拓、村山利幸、鴨川仁、加藤俊吾: 富士山大気の鉛直構造に関する研究、日本大気電気学会第 85 回研究発表会、高知工業高等専門学校、2011. 7. 21

16. 三浦和彦、梶川 藍、飯沼和久、武田真憲、永野勝裕、小林 拓、保田浩志: 富士山頂および東京神楽坂で測定した大気電気伝導率、日本地球惑星科学連合 2011 年大会、幕張メッセ国際会議場、2011. 5. 24 (招待講演)

17. 永野勝裕、児島紘、三浦和彦: 日本の自由対流圏におけるラドンの起源、日本大気電気学会第 84 回研究発表会、防衛大学校、2011. 1. 6

18. 武田真憲、永野勝裕、児島紘、三浦和彦: 富士山頂におけるラドン濃度の日周変動、日本大気電気学会第 84 回研究発表会、防衛大学校、2011. 1. 6

19. 梶川藍、三浦和彦、飯沼和久、武田真憲、永野勝裕、保田浩志: 富士山頂および東京

神楽坂における大気電気伝導率の測定、日本大気電気学会第84回研究発表会、防衛大学校、2011.1.6

〔図書〕(計3件)

1. 三浦和彦・上田紗也子・永野勝裕・加藤俊吾・松木篤・Paolo Laj・竹谷文一・小林 拓、第4章 エアロゾル、新粒子、土器屋由紀子、佐々木一哉編著「よみがえる富士山測候所」、pp180、成山堂、101-110、2012.6
2. 保田浩志・矢島千秋・加藤俊吾・鳥居建男・鴨川 仁、第7章 宇宙線・自然放射線、土器屋由紀子、佐々木一哉編著「よみがえる富士山測候所」、pp180、成山堂、127-132、2012.6
3. 三浦和彦、第4章 太陽エネルギーの気候への影響を測る、東京理科大学出版センター編著「太陽エネルギーがひらく未来」、pp193、東京書籍、107-139、2012.6

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.rs.kagu.tus.ac.jp/miura/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

三浦 和彦 (MIURA KAZUHIKO)  
東京理科大学・理学部・准教授  
研究者番号：00138968

### (2) 研究分担者

永野 勝裕 (NAGANO KATSUHIRO)  
東京理科大学・理工学部・講師  
研究者番号：40408703

### (3) 連携研究者

小林 拓 (KOBAYASHI HIROSHI)  
山梨大学・大学院医学工学総合研究部・准教授

研究者番号：20313786  
(H22-H24)

保田浩志 (YASUDA HIROSHI)

独立行政法人放射線医学総合研究所・放射線防護研究センター・上席研究員

研究者番号：50250121  
(H22-H24)

上田紗也子 (UEDA SAYAKO)

東京理科大学・理学部・ポストドクトラル研究員

研究者番号：00612706  
(H23-H24)

矢島千秋 (YAJIMA KAZUAKI)

独立行政法人放射線医学総合研究所・福島復興支援本部環境動態・影響プロジェクト・主任研究員

研究者番号：20392243  
(H24)