

富士山頂および山麓における雲粒中の硫酸イオン定量

南齋勉¹, 片井遼¹, 山本祐志², 大河内博³

1. 静岡理科大学, 2. グリーンブルー(株), 3. 早稲田大学

1. はじめに

一般的に、雨や霧などの湿性沈着物中の化学組成の分析を行う際、採取装置に回収したサンプルに対して行われるため、これらの成分は時間・空間的に平均化される。雨雲は単一の気塊ではなく、移流過程において凝結核となるエアロゾルやガス成分、水蒸気の複雑な沈着過程を経て形成されるため、従来の採取法では、雨水が持つ詳細情報は失われている。このことから、雲や霧中での大気汚染物質の沈着過程や、雨や雲中における化学反応の解明には、時間空間分解能に優れた採取分析手法が重要である。

現在まで、雨一滴の成分定性や、液滴径の計測に関する報告はあるが¹⁻⁵⁾、採取と計測の難しさから溶存成分の定量に関するものはほとんどない。われわれはゲル薄膜に含まれる溶質と雨中の溶存イオン成分による結晶生成を利用することで、一滴の雨滴の成分を簡便に定量する手法の確立を目指してきた^{6,7)}。未だ改善の余地はあるが、本手法の検出感度と分析精度は、実環境試料に耐えうるレベルに到達してきた。

本発表では、上記の新手法を用いた初の実環境試料のフィールド測定として、富士山山頂と富士山麓において雲粒のサンプリングをそれぞれ行なった結果について報告する。

2. 採取と観察

採取キットは以下の手順に従って作製した。5 mM の塩化バリウム水溶液に 5wt% となるようにゼラチンを加え、加温しながら 3 時間攪拌させた。この溶液を内径 33 mm のポリスチレンシャーレに塗布し、減圧条件のデシケーター内で 2 日間静置し、その後はアルミジップロック内に入れて保存した。

富士山頂における採取は以下のとおり行なった。測候所建屋の西側に設置された大河内グループのハイボリュウムエアサンプラーのアルミ脚部分に、図 1a に示すように垂直方向に樹脂製パッドを据え付け、その上にサンプリングキットを貼付させた。2019 年 7 月 23 日 12 時から翌 24 日の 8 時まで 1 時間ごとに採取を行なった。

富士山 5 合目の太郎坊大気観測サイトにおけるドローンサンプリングは以下のとおり行なった。小型マルチコプター Phantom4 (グリーンブルー社) 上に図 1b のように採取キットを貼付し、7 月 25 日 9 時から 17 時まで高度 1440 m への計 5 回のフライト (flight time: 10-15 min) を行なった。

採取後、アルミジップロックに収納し、研究室にてデジタ

ルマイクロSCOPE (KEYENCE VHX-7000) で撮影し、画像処理ソフトを用いて、液滴径と、生成した結晶ピクセル数を計測し、それぞれの分布について検討した。



図1 サンプリングキットの設置状況(a 富士山頂, b ドローン)

3. 結果と考察

富士山頂におけるサンプリングでは、日中は数回、雲内に入ることがあったが他の時間帯は晴天が続いていた。採取後の採取キットを目視観察したところ、雲滴の採取痕は確認されたものの、非常に微小であることから結晶生成の確認はできなかった。24 日の明け方にかけては、小雨を含むような濃い雲に覆われ、顕著な採取痕が確認された。

デジタルSCOPEによる観察の結果、日中のサンプリングにおいては、液滴痕が確認され、その液滴径は 5-60 μm の範囲で 20-30 μm にピークを持っていた (図 2)。この粒径分布は、これまでに報告されている雲粒の粒径分布とおおよそ一致していた^{8,9)}。採取された雲粒痕の一例を図 3 に示す。明け方における濃霧時のサンプリングキットについても同様にデジタルマイクロSCOPEで確認したが、ゲル表面が凹凸状に歪んでおり、焦点を合わせる事が難しく、液滴痕も確認することはできなかった。多くの水分を採取しすぎたためにゲルの含水率が増大したことが考えられる。また、結晶生成については、いずれの採取キットにおいても確認できず、本採取キットでの硫酸イオン濃度の検出下限である 134 μM を下回る濃度であったことが分かった。

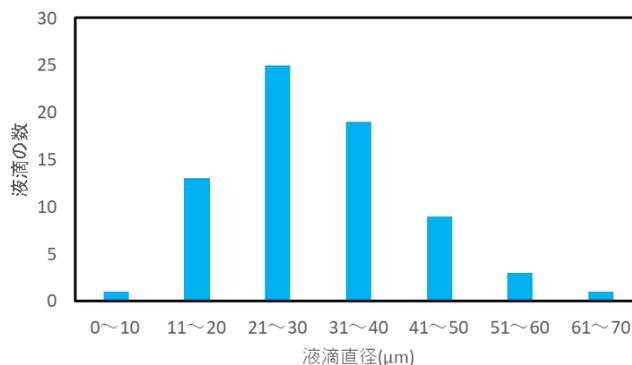


図2 富士山頂において採取された雲滴の粒径分布

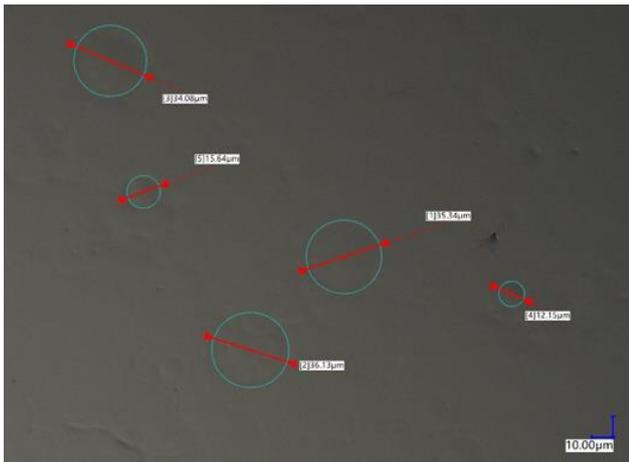


図3 富士山頂において採取された雲滴(7月23日13時採取)

次に、ドローン採取した状況について、朝方は雲底の低い厚い雲がサンプリングサイト上空にあり、昼前に一旦晴れたのち、午後の初めにかけて少量の降水があった。夕刻にかけて雲は徐々に薄くなり、雲高度も上昇した。結果として、1回目(7月25日9時)において最も顕著な雲滴痕が確認され、2回目(同9時45分)と3回目(同10時15分)においても、雲滴数は減少したものの雲滴痕が確認された。4回目(同11時)と5回目(同16時45分)の採取からは、雲滴はほとんど確認されなかった。これらの結果は、地上から見た雲の状況と良く一致していた。2回目以降のフライトにおいて採取された雲滴の粒径分布は数十 μm の範囲であり、富士山山頂で直接採取した粒径分布と似ていた。しかし、1回目の採取において、100 μm を超える大きな粒径の雲粒が多く観測され、100-120 μm にピークが見られた。

デジタルマイクロスコープにより、1回目のフライトの結果からは結晶生成も確認できた。図4にキット上に生成した硫酸バリウムの結晶の一例を示す。近接して採取された雲滴の硫酸イオン濃度が異なることが分かる。図5に得られた結晶のピクセル数分布を示す。検量線の範疇を下回っていることから、定量には至っていないが、検出下限に近い硫酸イオンを含む雲滴であることが示された。



図4 ドローン採取された雲滴による硫酸バリウム結晶生成

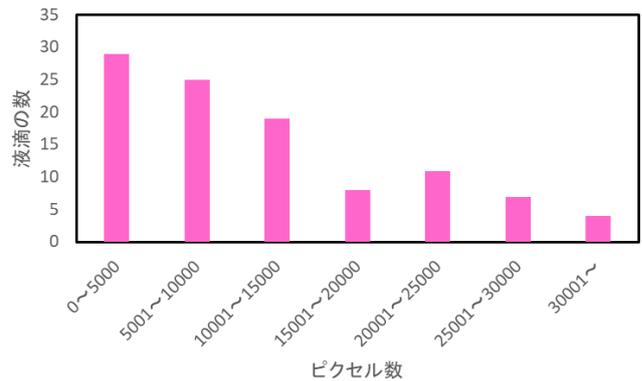


図5 ドローン採取による硫酸バリウム結晶ピクセル数分布

4. まとめ

山頂における採取では、今回トライアルということもあり、1日のみの採取期間であったが、雲滴の直接採取は十分に可能であることが示された。1回のサンプリングタイムは10分程度が最適であることも分かった。太郎坊でのドローンによる採取では、反応生成物である硫酸バリウムの結晶も確認され、地上で採取された雨粒と同様に濃度分布も確認された。この濃度分布は、雨雲を含む気塊の移流経路と紐づけられることが、われわれの雨滴解析の結果から示唆されており、粒径分布も含め更なる検討の余地は多く残されていることから、富士山頂やドローンによる採取データの更なる拡充が必要である。

参考文献

- 1) M. Kasahara, S. Akashi, C.-J. Ma, and S. Tohno, *Atmos.Res.*, **2003**, 65, 251.
- 2) C.-J. Ma, S. Tohno, M. Kasahara, and S. Hayakawa, *Anal.Sci.*, **2006**, 22, 415.
- 3) K. Bächmann, I. Haag, T. Prokop, A. Röder, and P. Wagner, *J. Chromatogr. A*, **1993**, 643, 181.
- 4) A. Röder and K. Bächmann, *J. Chromatogr. A*, **1995**, 689, 305.
- 5) B. Tenberken, P. Ebert, M. Hartmann, M. Kiber, A. Mainka, T. Prokop, A. Röder, and K. Bächmann, *J. Chromatogr. A*, **1996**, 745, 209.
- 6) B. Tenberken and K. Bächmann, *J. Chromatogr. A*, **1997**, 775, 372.
- 7) N. Tomikawa, B. Nanzai, and M. Igawa, *Anal. Sci.*, **2011**, 27, 861.
- 8) B. Nanzai, Y. Goto, Y. Ishida, and M. Igawa, *Anal. Sci.*, **2019**, 35, 1263.
- 9) J. Warner, *J. Atmos. Sci.*, **1969**, 26, 1272.
- 10) J. W. Fitzgerald and P. A. Spyers-Duran, *J Appl. Meteorol.*, **1973**, 12, 511.
- 11) N. L. Miles, J. Verlinde, and E. E. Clothiaux, *J. Atmos. Sci.*, **2000**, 57, 295.