

## P-16: 富士山で捕集したエアロゾルの個別粒子分析

土井瀬菜<sup>1</sup>、岩本洋子<sup>1</sup>、三浦和彦<sup>1</sup>

### 1. 東理大・理

#### 1. はじめに

エアロゾル粒子は、太陽光を直接的に散乱または吸収したり、雲粒として働き雲の放射特性を変えたりすることで放射収支に影響を与える。エアロゾルの放射特性や雲凝結核能は粒子の化学的、物理的性質に依存するため、個々のエアロゾルの形状や混合状態を解明することは、エアロゾルの気候影響を理解する上で重要である。富士山山頂は自由対流圏に位置し、ローカルな汚染の影響を受けにくい。また、長距離輸送された、排出源特有の大気エアロゾルを観測できるという利点がある。本研究では富士山山頂で捕集されたエアロゾルの粒子の形状、混合状態に着目し、輸送経路や気象条件による粒子の性状の違いを調べた。

#### 2. 手法

##### 2. 1. 観測方法

2014年と2015年の夏季に、富士山特別地域気象観測所(北緯 35.36°、東経 138.73°、高度 3776 m)の一号庁舎 2階で大気観測を行った。大気エアロゾル粒子は、屋外に設置したインレットから導電性シリコンチューブを用いて室内に導入し、低圧カスケードインパクターを用いて捕集した。上流側に粗大粒子除去用のカットオフ径 4.0  $\mu\text{m}$  のインパクターを接続し、粒子の捕集にはカットオフ径 0.25  $\mu\text{m}$  と 1.0  $\mu\text{m}$  のインパクターを用いた。インパクター内のステージ上に貼った炭素補強を施した銅グリッド上に、慣性力を利用して粒子を捕集した。流量は 0.55 L/min に設定し、1 時間捕集を行った。捕集状況を表 1 に示す。本研究では表 1 に示す 11 サンプルを分析対象試料とした。RH[%]は捕集時間中の外気の平均相対湿度を示している(表 1)。捕集は室内で行っているため、今後、室内配管の相対湿度も含め検討する必要がある。

##### 2. 2. 分析方法

粒子の高さを見積もるために、白金パラジウムを用いたシャドウイングを行った。その後、粒子を透過型電子顕微鏡(TEM H-9000)で観察し、写真を撮影した。また、後方流跡線(HYSPLIT Trajectory model [https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_traj.php](https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php))を用いて観測点到達から 72 時間前を遡り、エアマスの由来と、流跡線に沿った湿度変化を調べた。

#### 3. 結果と考察

##### 3. 1. 粒子の分類

図 1 のように、粒子の形状を 9 タイプに分類した<sup>(1)</sup>。図 1 (a)~(e) の写真上の実線はシャドウである。(a)~(e) はシャドウが長く、粒子の輪郭がはっきりしているため、大気中で固体状であったことが推測される。(f)~(i) はグリッド上に薄く広がり、シャドウが見られず、輪郭が薄くはっきりしていないため、大気中で液滴状であったと推測される。先行研究より(a)、(b) は  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、(g) は  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  であることが報告されている<sup>(2)</sup>。また、(h) は大気中で有機物と混合した液滴状の無機物がグリッド上で再結晶することで形成される<sup>(3)</sup>。

##### 3. 2. 有機物による潮解性の変化

図 2 に、粒径ごと(0.1-0.5、0.5-1.0、1.0-  $\mu\text{m}$ )の各形状の割合を示す。本研究では、(f) や (h) に分類された粒子が多く見られた。サンプル1と2の相対湿度は、それぞれ、88.2 %、91.8 %であり、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  の潮解湿度(80 %)と  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  の潮解湿度(39 %)を超えているにも関わらず、固体状の粒子が含まれていた。これらのサンプルは、図1(h) と外部混合していることから、有機物の影響が考えられる。有機物は無機物と混合することで、潮解性を変化させることが知られている<sup>(4)</sup>。したがって、潮解湿度を超える相対湿度であっても粒子の相変化が起こらなかった可能性が示唆される。これらの結果から、有機物との内部混合は、硫酸アンモニウムなどの潮解性の高い物質の雲凝結核能に影響を与えることが推測される。

表 1. 捕集時間と捕集時の気象状況。捕集時間が日中である場合は Day、夜間である場合は Night と記した。

| No. | Date      | Start | Stop  | Day or Night | RH[%] | Analyzed particle number |
|-----|-----------|-------|-------|--------------|-------|--------------------------|
| 1   | 2014/7/19 | 2:00  | 3:00  | Night        | 88.2  | 112                      |
| 2   | 2014/7/20 | 2:00  | 3:00  | Night        | 91.8  | 226                      |
| 3   | 2014/8/1  | 11:00 | 12:00 | Day          | 66.5  | 371                      |
| 4   | 2014/8/2  | 2:00  | 3:00  | Night        | 56.3  | 497                      |
| 5   | 2014/8/14 | 11:15 | 12:15 | Day          | 92.2  | 242                      |
| 6   | 2014/8/15 | 2:00  | 3:00  | Night        | 92.1  | 2360                     |
| 7   | 2014/8/23 | 13:45 | 14:45 | Day          | 82.3  | 648                      |
| 8   | 2015/7/24 | 11:45 | 12:45 | Day          | 98.6  | 893                      |
| 9   | 2015/7/25 | 2:00  | 3:00  | Night        | 69.3  | 68                       |
| 10  | 2015/8/2  | 2:00  | 3:00  | Night        | 45.7  | 1146                     |
| 11  | 2015/8/11 | 10:35 | 11:35 | Day          | 44.6  | 459                      |

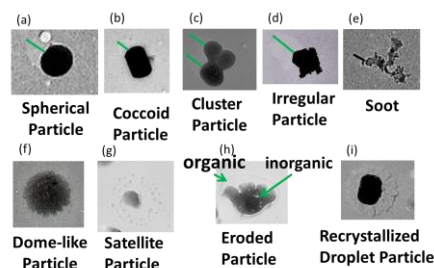


図 1. 形状による粒子の分類

### 3. 3. クラスター状粒子

クラスター状粒子は 11 サンプル中 6 サンプルで見られた(図 3)。クラスター状粒子は、低湿度下で凝集によって生成することが報告されている<sup>(2)</sup>。図 2 より、粒径が大きくなるほど、(c) の割合が増えることから、凝集によって粒子自体の大きさも増大することが示唆される。表 2 に後方流跡線に沿った相対湿度の変化から求めた 72 時間前から 48 時間前までの相対湿度の平均値、最大値、最小値を示す。また、図 4 にクラスター状粒子が見られたサンプルの後方流跡線を示す。表 2、図 3、図 4 から、クラスターを構成する粒子の大きいものは、アジア大陸沿岸由来であり、相対湿度が比較的高い。一方、クラスターを構成する粒子が小さいものは、日本に長く滞在しているか、または相対湿度が比較的低い。アジア大陸沿岸は日本に比べ、SO<sub>2</sub> ガス濃度が高い。また、高湿度下では、粒子へのガスの溶解込みが盛んに起こる。したがって、クラスターを構成する粒子の大きいものは、ガスの溶解込みにより粒子が成長した後、凝集によってクラスターが形成されたことが推測される。一方、クラスターを構成する粒子が小さいものは、それほど粒子の成長が進まない状態でクラスターが形成されたことが推測される。本研究では高湿度下でもクラスター状粒子が見られたので、この理由については今後検討する必要がある。

### 4. 結論

2014 年及び 2015 年の富士山山頂で得られたエアロゾル粒子を形状により 9 タイプに分類した。硫酸アンモニウムの潮解湿度を上回る環境湿度下で捕集したサンプルに固体状の硫酸アンモニウムが見られたことから、有機物の影響が示唆された。今回のサンプルではクラスター状粒子が高湿度下でも見られたため、クラスター状粒子の生成についてさらに検討していく必要がある。また、クラスターを構成する粒子の大きさは輸送経路や相対湿度が影響することが示唆された。

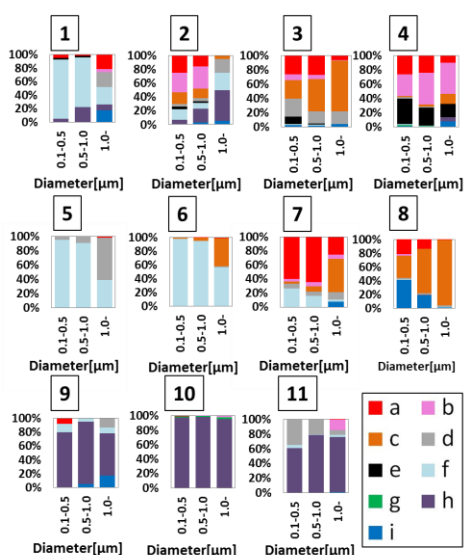


図 2. 粒径毎に分類した形状別の個数割合

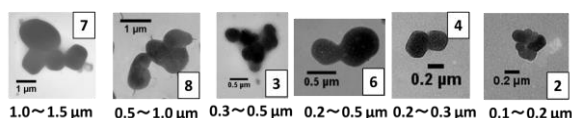


図 3. クラスター状粒子の TEM 画像。写真上の番号は、サンプル名に対応している。クラスター状粒子を構成する粒子の粒径の大きい順に左から並べた。

表 2. クラスター状粒子が観察されたサンプルの後方流跡線のデータから算出した、観測点から 72 時間前から 48 時間前までの相対湿度の平均値、最大値、最小値。

| RH [%] | 7    | 8    | 3    | 6    | 4    | 2    |
|--------|------|------|------|------|------|------|
| Ave    | 76.3 | 69.3 | 48.8 | 65.1 | 84.0 | 33.1 |
| Max    | 82.3 | 81.1 | 54.7 | 70.8 | 90.5 | 64.1 |
| Min    | 72.1 | 62.8 | 45.8 | 62.3 | 78.8 | 12.5 |

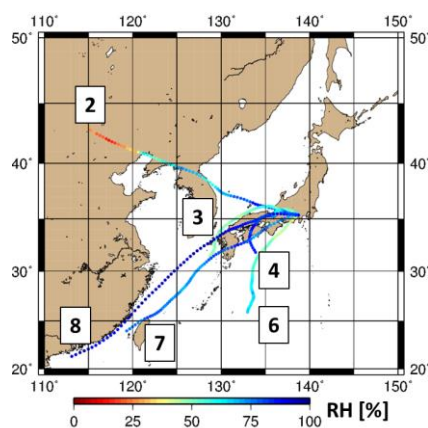


図 4. クラスター状粒子が観察されたサンプルの海拔 3776 m から遡った後方流跡線解析結果

### 参考文献

- (2) Ueda, S. *et al.*: *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **15**, 25089-25138, 2015
- (3) Ueda, S. *et al.*: *J. Geophys. Res.*, **116**, D17207, 2011
- (4) Buseck, P. R. and Posfai, M. : *Air Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **96**, 3372-3379, 1999
- (5) Saxena, P. and Hildemann, L. M.: *J. Geophys. Res.*, **100**, 18,755-18,770, 1995

\*連絡先: 土井 瀬菜(Sena DOI), sena.saturn@gmail.com