

富士山頂・太郎坊で捕集したエアロゾル粒子の個別分析

児玉真一¹, 吉末百花¹, 足立光司², 五十嵐博己¹, 大塚拓弥¹, 森樹大¹, 三浦和彦¹

1. 東京理科大学, 2. 気象研究所

1. はじめに

エアロゾル粒子は互いに凝集したり、ガスが凝結することによって、化学組成や形状が変化する。それらの変化に応じて湿度特性や光学特性が変化してしまうため、粒子個々の化学組成や形状、混合状態について調べる必要がある。

本研究では、夏季富士山頂(海拔 3776 m)と富士山麓の太郎坊(海拔 1300 m)で捕集したエアロゾル粒子に対し、透過型電子顕微鏡を用いて粒子個々の組成や形状を調べ、比較した。また、特徴的な事例が見られたサンプルについては追加の分析や分類を行った。

2. 手法

エアロゾル粒子は低圧カスケードインパクター (PIXE Int. Corp., Model I-1L) を用いて、炭素補強されたコロジオン膜上に捕集した。50%カットオフ径が 4.0 μm の S5 ステージを粗大粒子の混入を防ぐために使用し、50%カットオフ径が 0.25 μm の S1 ステージ(微小粒子)と 1.0 μm の S3 ステージ(粗大粒子)に粒子を捕集した。カットオフ径を合わせるため、富士山頂では流量を 0.55 L/min に設定し、60~120 分間捕集した。また、太郎坊では流量を 0.85 L/min に設定し、30~60 分間捕集した。

本研究では、富士山頂において 2017/7/16, 8/4 の 2 日間に捕集された 3 サンプルと太郎坊において 2017/8/6, 8/7 の 2 日間に捕集された 4 サンプルの合計 7 サンプルを対象に個別分析を行った。

透過型電子顕微鏡 (TEM; JEM-1400, JEOL) を用いて粒子の形態を観察し、エネルギー分散型 X 線分析器 (EDS; X-MAX80, Oxford Instruments) を用いて粒子に含まれる元素を特定した。定量した元素は 16 元素で、得られた質量濃度割合を基にエアロゾル粒子を 11 種類に分類した。

また、NOAA Hysplit Model (<https://www.ready.noaa.gov/HYSPLIT.php>) を用いて後方流跡線を計算し、気塊の由来を調べた。

3. 結果と考察

3.1 エアロゾル粒子分類結果

山頂で捕集した微小粒子の分類結果を図 1 に示す。3 サンプルとも硫酸塩が約 50%以上を占めていた。海塩の割合は少ないものの鉱物が約 10%を占めており、硫酸塩のうち約 50%は鉱物と混合していた。また、8/4 20 時のサンプルでは C-rich 粒子(煤粒子・有機物)が約 30%を占めており、他 2 つのサンプルと比べて特徴的であった。後方流跡線解析より 7/16 は東シナ海から本州を通過して気塊が到達しており、8/4 は太平洋由来の気塊の到達が示唆された。

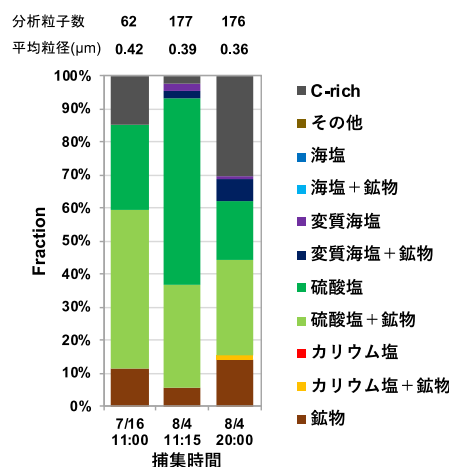


図 1 山頂分類結果 S1(微小粒子)

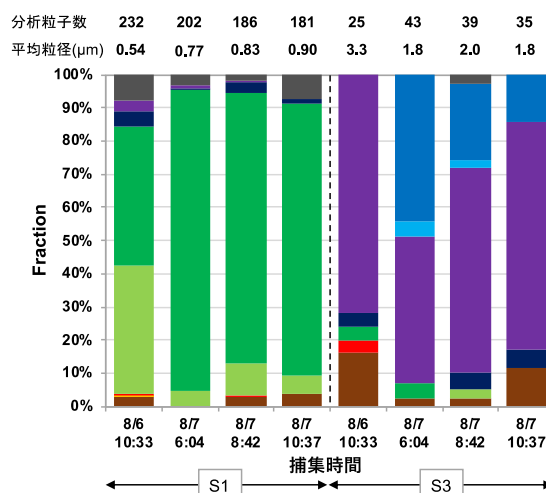


図 2 太郎坊分類結果 S1(微小粒子), S3(粗大粒子)

太郎坊で捕集した微小粒子と粗大粒子の分類結果を図 2 に示す。微小粒子は山頂と同様に硫酸塩が多く、約 80% 以上を占めていた。特に 8/6 のサンプルは、硫酸塩のうち約 50% が鉍物と混合していた。一方、粗大粒子は海塩類の割合が約 70% 以上を占めていた。微小粒子の平均粒径が山頂で捕集された微小粒子に近い値であることから、海由来の気塊が山頂を経由してから到達した可能性が示唆された。また、微小粒子と粗大粒子を比べると、粗大粒子の方が鉍物の割合が多いことが分かった。

3.2 特徴的な事例の考察

8/4 に山頂で捕集した微小粒子の TEM 写真を図 3 に示す。昼前に捕集された粒子は輪郭がはっきりとした固形状、夜に捕集された粒子は輪郭がぼやけた液滴状であり、形状が全く異なっていた。また、夜に捕集されたサンプルは 176 個の粒子のうち C-rich 粒子が 53 個存在しており、TEM 写真から形状を判断し分類した。その結果、煤粒子が 3 個と硫酸塩-有機物、もしくは鉍物-有機物の混合粒子が 50 個確認できた。さらに、EDS による組成データからも C-rich 粒子と分類された 53 個の粒子では硫酸塩由来の硫黄と鉍物由来のケイ素の存在割合が他の元素よりも多いことが分かった。形状と組成データの両方から、混合粒子中の硫酸塩と鉍物の存在が確認できた。

8/6 に太郎坊で捕集した微小粒子は電子線を当てても揮発しない円形状の粒子が多く観察された。一つの粒子の内側と外側に分けて組成を分析したところ、内側は硫黄の割合が多いことから硫酸塩の可能性が示唆された。一方、外側は炭素の質量濃度割合が 76% と圧倒的に多い結果となった。Li et al. (2014)¹⁾ は有機物中の炭素の質量濃度割合は 83±19% と述べている。以上を踏まえると、硫酸塩のまわりに不揮発性の有機物が付着した粒子である可能性が示唆された。

8/7 8 時台に太郎坊で捕集した微小粒子は様々な形状の粒子が確認できたため、分析した粒子 186 個について Ueda et al. (2011)²⁾ を参考に形状を分類した。その結果を図 4 に示す。形状判別ができなかった Others の 6 個を含め、5 種類に分類したところ、粒径 50 nm 以下の粒子が凝集したような形状である Soot aggregation が 14 個、球状・繭状の粒子で、コントラストがはっきりしている Single circular or coccoid が 105 個、侵食地形型で、コントラストがはっきりしていない

Eroded particle が 49 個、球状・繭状の粒子が凝集したような形状である Cluster が 12 個となった。

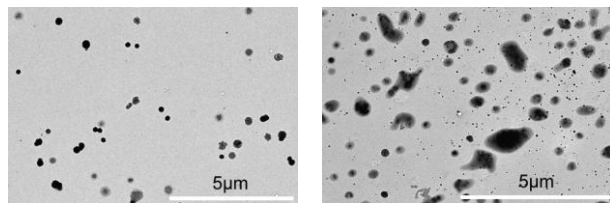


図 3 8/4 に山頂で捕集した微小粒子の TEM 写真 (左:昼 右:夜)

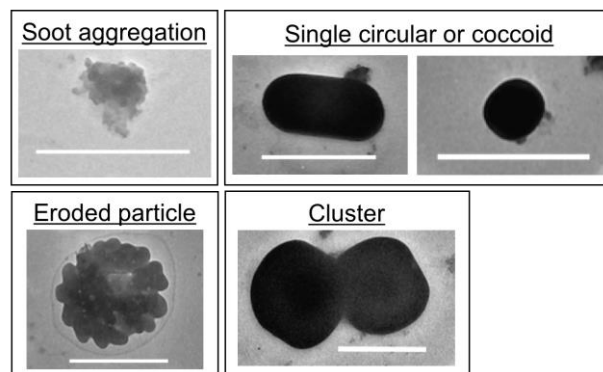


図 4 形状分類画像 (白線は 1 μm を表す)

4. まとめ

鉍物は山頂で、海塩は海からの輸送の影響がより大きいと考えられる太郎坊でよく見られた。両地点とも硫酸塩の割合が多く、特に山頂では太郎坊に比べて、鉍物と混合した硫酸塩が多いことが分かった。また、分析したサンプルの中には特徴的なものが複数存在した。山頂 8/4 S1 夜に捕集した C-rich 粒子は硫酸塩や山頂特有の鉍物が内部混合していた。太郎坊 8/6 S1 に捕集した円形状の粒子は硫酸塩のまわりに不揮発性の有機物が付着している可能性が示唆された。そして、太郎坊 8/7 S1 8 時台では球状・繭状の粒子が 56% を占めていた。

謝辞

本観測は認定 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。三浦研究室の皆様には富士山頂と太郎坊でサンプリングをしていただきました。ここに記して感謝いたします。

参考文献

- 1) Li et al. (2014), J. Geophys. Res. Atmos., 119, 1044–1059, doi:10.1002/2013JD021003.
- 2) Ueda et al. (2011), J. Geophys. Res., 116, D17207, doi:10.1029/2010JD015565.