

富士山で雲を直接サンプリング：一滴ごとの分析から何が見えるのか？

南齋勉¹, 白倉将貴¹, 石川翔², 山本祐志³, 大河内博²

1. 静岡理科大学, 2. 早稲田大学, 3. グリーンプルー(株)

1. はじめに

雨雲は雲粒核となるエアロゾルに水分子が凝結することで形成され、粒子状物質やガス成分の取り込みや、水蒸気による吸湿過程を経て成長する。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。このため、従来の採取法では、雨水が持つ詳細情報は失われている。雲粒の核形成から、雲粒への大気汚染物質の沈着、雲粒中における液相反応の解明には、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¹⁻⁶⁾、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、図1に示すような、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^{7,8)}。その結果、硫酸塩について、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ので、昨年度から実環境における雨粒や雲粒のサンプリングを行なっている。

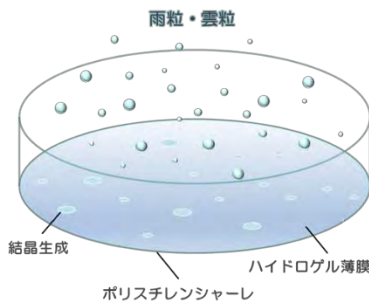


図1 結晶生成を利用した雨粒採取分析ツール

この手法を用いた採取分析対象として、地表(静岡県西部に位置する静岡理科大学)において観測された降水イベントにて初期降水の雨粒を採取した。また、令和3年度には、富士山山頂測候所における直接採取(山頂班による17サンプル採取)と、富士山麓5合目太郎坊におけるドローン飛行によって、雲粒のサンプリングをそれぞれ行なった(図2)。富士山は標高が高く自由対流圏に位置しており、また独立峰であることから、比較的近傍の汚染の影響を受けずに中国大陸から飛来するPM2.5などの汚染大気の長距離輸送の影響を観測することができる。雨粒と雲粒の粒径分布と、液滴中の硫酸塩濃度分布を比較することで、雲粒形成から降水までの成長過程の解明につながる事が期待される。

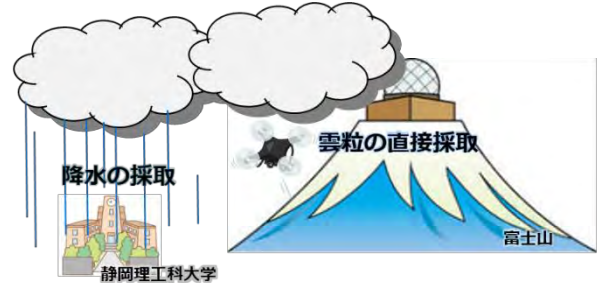


図2 地上と富士山頂におけるサンプリング

2. 採取と観察の方法

雨粒採取分析ツール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。降水を確認した際に、ツールをアルミジップロックから取り出し、シャーレの内面には塗布されたゲル薄膜上に雨粒が載るように 3 分間暴露し、シャーレの蓋を被せたのち、再びアルミジップロック内に収納した。

富士山頂における採取は、山頂班に依頼することで、2021年7月22日から8月25日の間、測候所が雲内に入ったことを確認した際に、雨粒採取と同様の手法で行なった。その結果、17個のサンプル採取に成功した。

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 (グリーンプルー社; 図3) 上に採取ツールを貼付し、2021年7月24日7時から9時まで高度1440mへの計4回のフライト(飛行時間: 3~6 min)を行なった。



図3 雲粒採取に用いたクアッドコプター

採取後の試料は、研究室に戻ったのち、デジタルマイクロスコープ (KEYENCE VHX-7000) で、雨粒もしくは雲粒の浸透により生成した硫酸バリウムの結晶を撮影し、画像処理ソフトを用いて、液滴粒径と、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。

3. 一滴ごとの分析からわかること

雨粒と雲粒のいずれの採取においても、ゲル薄膜上の降水が採取された液滴跡の内側には、図4に示すような硫酸バリウムの結晶生成が確認された。液滴跡の直径を確認したところ、雲滴については、10-100 μm の範囲で粒径分布が確認され、20-30 μm の液滴径を持つ雲滴が最も多く確認された。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⁹⁾¹¹⁾。



図4 液滴径や硫酸塩濃度の異なる雲滴

雨粒については、降水イベントによって液滴径分布は、異なる傾向が確認された。しかし、採取された17イベント中ほとんどの降水の粒径分布は100 μm を下回る大きさであり、初期降水を対象として採取したことから、一般的に報告されている雨滴径の分布¹²⁾よりも小さい結果となったと考えられる。

雨滴の濃度分布について検討した結果、液滴径分布と同様に広い分布が確認されたが、低濃度の雨滴の分布が多く、支配的であることが示された。この結果は、溜めて分析する従来の定量法では、平均化によって濃度が低く見積もられていることを示す。見積もられた雨滴体積と硫酸塩物質量から、体積加重平均濃度を算出すると、ほとんどの降水イベントにおいて、一般的に報告されている平均濃度(数十 $\mu\text{mol/L}$)よりも高濃度($\sim 1 \text{ mM}$)となり、初期降水が高濃度であることが確認された。

降水イベントごとに、得られた雨滴の「液滴跡直径」、「硫酸塩物質量」、「硫酸塩濃度」の各々の間での相関関係についてみると、ほとんどの降水イベントは、①雨滴体積の分布が狭いイベント、②雨滴中の硫酸塩濃度の分布が狭いイベント、

③雨滴中の硫酸塩物質量の分布が狭いイベント、これら3つのいずれかのパターンに分けられることが分かってきた。これらの降水イベントをもたらした雲の、雲核が形成された後の成長過程について、それぞれ以下のように推察できる。①雲滴成長が小さい雨雲、②合体を中心とした雲粒成長過程を経た雨雲、③吸湿を中心とした雲粒成長過程を経た雨雲。そして、硫酸塩以外のエアロゾルが雲凝結核となった雲粒である。これらのパターンが分かれる要因について、雨雲を含む気塊の移流経路(後方流跡線)、当日の気圧配置(天気図)、相対湿度や降水量(気象庁データ)から検討を行なったが、顕著な傾向は得られなかった。今後、大気中エアロゾルやガス濃度など大気化学データとの比較も検討している。

4. おわりに

一滴ごとの雨粒中に含まれる硫酸塩濃度分布と、液滴径分布から、雨雲の雲粒形成や成長の過程について情報が得られることが分かってきた。現在は、雨粒に関する解析のみであるが、富士山頂で山頂班メンバーによって採取された試料や、ドローンによって採取された雲粒試料についての解析が進むことで、より詳細な検討が進むことが期待される。

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.
- 12) M. A. Cecchini, L. A. T. Machado, P. Artaxo, *Atmos. Res.* **2014**, 143, 301.