

令和 4 年 5 月 19 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12297

研究課題名(和文) 燃烧起源鉄を含むエアロゾルのエイジング過程の解明：海陸風循環を利用したアプローチ

研究課題名(英文) Elucidation of aging process of aerosols containing iron of combustion origin: an approach using land-sea breeze circulation

研究代表者

岩本 洋子 (IWAMOTO, Yoko)

広島大学・統合生命科学研究所(生)・准教授

研究者番号：60599645

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：燃烧起源鉄を含む大気エアロゾル粒子のエイジング過程を明らかにするため、燃烧起源鉄の発生源に近い沿岸サイトと海陸風循環の影響を受ける内陸サイトにおいて採取した大気エアロゾル試料の分析を行なった。水溶性Feは非海塩性硫酸塩との濃度の相関が高く、人為起源の寄与が大きかった。また、多成分との濃度の相関や形態観察から、輸送中に水溶性Feと人為起源の硫酸塩との混合(エイジング)が進んだことが確かめられた。沿岸サイト近傍の主要な燃烧起源鉄の固定発生源である製鉄所は、観測期間中に高炉を停止した。これに伴い、沿岸サイトのエアロゾル中のFeは、全量で70%、水溶性で53%減少した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄は、海洋による炭素吸収の一部を担う植物プランクトンの生長を支える必須元素である。大気中の燃烧起源鉄は人為起源の酸性物質と共存する機会が多く、より溶けやすい生物利用可能な鉄の海洋への供給源として着目されている。本研究課題は燃烧起源鉄の主要な発生源に近い瀬戸内海の沿岸サイトと海陸風循環の影響を受ける内陸サイトにおいて、大気中の鉄を含む微粒子の動態を観測し、大気輸送中に燃烧起源鉄と人為起源の酸性物質との混合が進むことを確かめた。また、製鉄所の高炉停止という燃烧起源鉄の主要な発生源の消失が、大気エアロゾル中の鉄濃度を顕著に減少させることを確かめた。

研究成果の概要(英文)：To elucidate the aging process of atmospheric aerosol particles containing iron of combustion origin, we analyzed atmospheric aerosol samples collected at a coastal site near the source of iron of combustion origin and at an inland site affected by land-sea breeze circulation. The concentration of water-soluble Fe was highly correlated with that of non-sea salt sulfate, indicating that anthropogenic contribution is significant. In addition, it was confirmed that mixing of water-soluble Fe with anthropogenic sulfate, i.e., aging process, proceeded during transport from the correlation of concentration with multiple components and morphological observation. A steel mill, a major stationary source of iron of combustion origin near the coastal site, shut down its blast furnace during the observation period. As a result, the total and water-soluble iron in aerosols at the coastal site decreased by 70% and 53%, respectively.

研究分野：大気海洋化学

キーワード：燃烧起源エアロゾル 微量金属成分 主要イオン成分 粒径分布 濃縮係数 固定発生源 瀬戸内海

1. 研究開始当初の背景

海洋は、大気中に増加しつつある二酸化炭素 (CO₂) を吸収し、急激な気候変動を緩和する能力を持つ。海洋の植物プランクトンは、光合成により CO₂ を有機炭素として固定する。海洋の CO₂ 吸収能を正確に見積もる上で、植物プランクトンの消長を支える必須元素の供給量を把握することは重要である。

鉄は、植物プランクトンに最も多量に必要なとされる金属元素であるが、表層海水中で植物プランクトンが利用可能な溶存鉄濃度は極めて低い。そのため、鉄の枯渇によって植物プランクトンの生長が抑制される海域が存在する。このような海域に自然現象として鉄を供給する経路として、大気を経由したものがある。大気中には鉄を含む微粒子(エアロゾル)が存在し、鉱物ダストや燃焼起源の鉄粒子が相当する。このうち、燃焼起源鉄は、エンジンや製鉄工程などから定常的に大気中に放出される。また、燃焼起源鉄は、その生成過程から人為起源の酸性物質と共存する機会が多く、大気中の酸性物質との表面反応などの作用(エイジング)によりエアロゾル中の鉄がより溶けやすい化学種に変化することが予想される。しかし、燃焼起源鉄のエイジング過程に関して、観測に基づく知見は少なく、大気から海洋への鉄沈着量の見積りに不確定性を与える要因となっている。

2. 研究の目的

本研究課題の目的は、エアロゾル中の燃焼起源鉄の濃度、混合状態、形態が、大気輸送中の物理・化学的変質(エイジング)を経ることによってどのように変化するかを調査し、エイジング過程が植物プランクトンに利用可能な「可溶性の鉄」の沈着量に与える影響を把握することである。

3. 研究の方法

エアロゾル中の燃焼起源鉄のエイジング過程を解明するために、燃焼起源鉄の発生源を有する瀬戸内海地域において、大気エアロゾルの観測サイトを立ち上げた。観測サイトとして、瀬戸内海に面した広島大学練習船呉基地(沿岸サイト)と周囲に大規模な大気汚染物質の固定発生源のない広島大学東広島キャンパス(内陸サイト)を選定した(図1)。両サイト間の距離は約30 km である。沿岸サイト付近には燃焼起源鉄の主要な発生源である製鉄所が存在する。なお、この製鉄所は2021年9月29日に高炉を停止したため、高炉停止が燃焼起源鉄の動態に与える影響についても本研究で調査した。

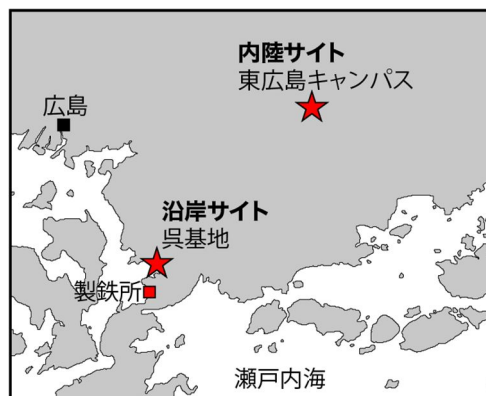


図1. 観測サイトの位置関係

主要な大気観測は2021年の4月から12月の間に実施した。大気エアロゾル試料は各サイトの建物屋上にハイボリウムサンプラを設置し、テフロン製フィルタ上に微小粒子(PM_{2.5})

と粗大+微小粒子(PM_{10-2.5}+PM_{2.5})に分級して捕集した。観測期間中、原則週2回の頻度でフィルタの交換と回収を行った。また、個別粒子分析用試料はコロジオン膜を貼った銅グリッド上に直接捕集した。沿岸サイトでは大気沈着物の採取を並行して行なった。

エアロゾルのバルク化学分析にはICP発光分光分析法を用い、エアロゾル中の鉄の濃度を全量と水溶性とでそれぞれ明らかにした。また、イオンクロマトグラフ法を用い、エアロゾル中の無機イオン成分の測定を実施した。個別粒子分析には透過型電子顕微鏡(TEM)とエネルギー型X線分析装置(EDX) または電子プローブX線マイクロアナライザ(EPMA)を用い、個々の鉄含有粒子の粒径と元素組成、混合状態を明らかにした。

4. 研究成果

水溶性金属成分の動態

測定した14種類の水溶性微量元素成分のうち、観測期間を通して検出限界以上の濃度が得られたのはAl、Ba、Cu、Fe、Mn、Znであった。このうちFeとZnの濃度が他の金属元素に比べて高い傾向にあった(図2)。水溶性Feの濃度範囲は、内陸サイトで1.6~36.9 ng m⁻³、沿岸サイトで5.1~58.7 ng m⁻³であり、内陸サイトより沿岸サイトの濃度が高い傾向にあった。季節別では、内陸・沿岸サイト共に夏季に濃度が高かった。

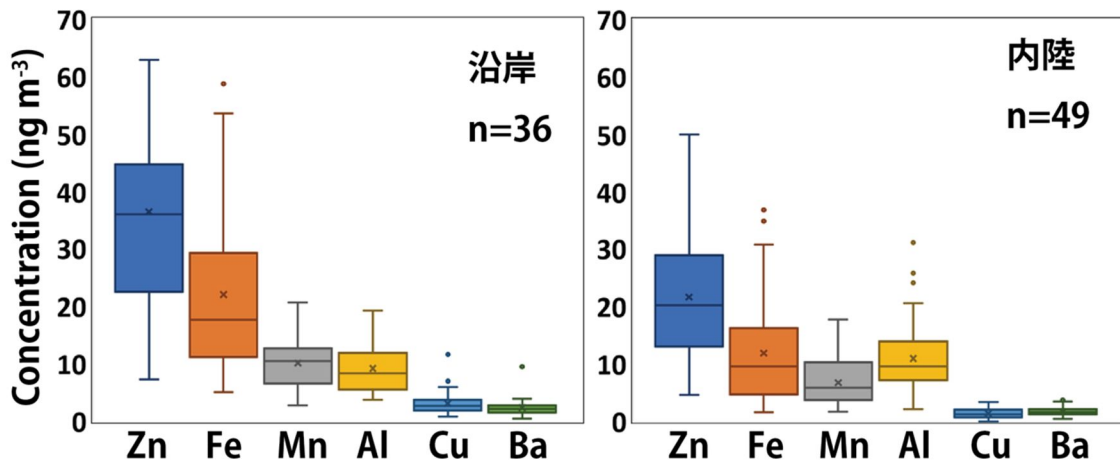


図 2. 大気エアロゾル中の水溶性微量金属の濃度

主要な微量金属元素であった Fe と Zn の粒径分布を比較したところ、水溶性画分では、いずれの元素も内陸サイトと沿岸サイトの両方で微小粒子の割合が高かった (図 3)。水溶性 Zn の粒径分布は両サイトでほぼ同じであったが、水溶性 Fe に関しては沿岸サイトに比べて内陸サイトで粗大粒子の割合が大きかった。また、全 Fe は 89% が粗大粒子として存在するのに対し、水溶性 Fe は 89% が微小粒子として存在した。一般に粗大粒子は自然起源、微小粒子は人為起源の寄与が大きいとされている。このため、水溶性 Fe は人為起源の寄与が大きいと考えられた。

さらに、主要イオン成分と水溶性微量金属成分の濃度の相関を調査した。内陸サイトでは、Fe は Al (0.74)、Cu (0.80)、Mn (0.75)、Zn (0.76)、nss-SO₄²⁻ (0.87)、NH₄⁺ (0.78) と高い相関があった。一方で、沿岸サイトでは、Fe と高い相関があったものは、Mn (0.77) と nss-SO₄²⁻ (0.75) のみであった。Mn は Fe と同じく製鉄によって排出される金属元素である。両サイト共に、水溶性 Fe と nss-SO₄²⁻ との間高い相関があったことは、水溶性 Fe が人為起源であることを支持する。また、内陸サイトでは、水溶性 Fe は他の水溶性金属成分とも高い相関があったことから、大気輸送中のエイジングにより内部または外部混合が進んだ可能性が考えられた。

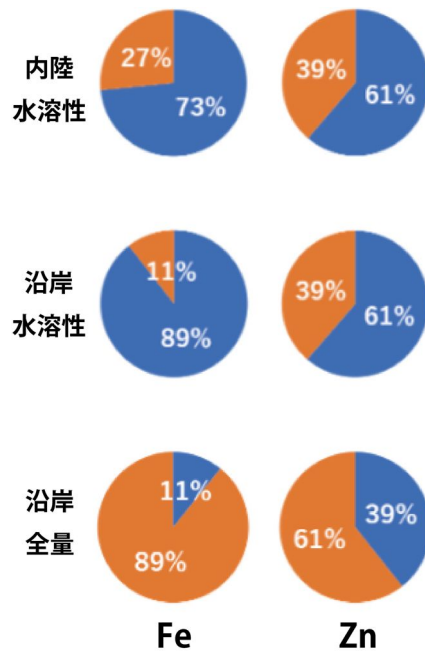


図 3. 大気エアロゾル中の微量金属成分の粒径分布

個々の鉄含有粒子の形態

沿岸サイトで採取された大気エアロゾル粒子の個別粒子分析の結果、鉄含有粒子の中には一旦溶解して大気中で凝固して形成されたと考えられる球状粒子が多く含まれる事がわかった。球状粒子のうち、8割から9割が鉄含有粒子であり、そのほとんどが鉄酸化物であった。鉄含有粒子は硫酸アンモニウムと内部混合している場合があり、内部混合により、粒径が増加し沈着が促進される可能性が考えられた。

高炉停止が大気環境に与える影響

2021年9月の製鉄所高炉停止後、内陸サイトと沿岸サイト共に水溶性微量金属成分の濃度は減少した。各金属元素の地殻に対する濃縮係数 (EF) を高炉停止前後で比較したところ、内陸サイトでは高炉停止後に EF が上昇または変化がなかったのに対し、沿岸サイトでは水溶性 Fe の EF が有意に減少した (図 4)。これは、沿岸サイトにおいて、高炉停止に伴い、自然起源以外の Fe の寄与が小さくなったことを意味する。

微量金属全量については、高炉停止後に Cu、Fe、Mn、Zn の濃度が減少傾向にあり、特に Fe は 70% の濃度減少であった。一方で、鉱物起源の指標である Al の濃度にはほとんど変化が見られなかった。さらに、EF の平均値も Fe に関しては高炉停止前の 13.6 から高炉停止後の 3.4 にまで減少し、変化の傾向は水溶性 Fe より顕著であった。本研究

課題により、Fe の主要な固定発生源の消失が大気エアロゾル中の Fe の動態に与える影響を把握することができた。

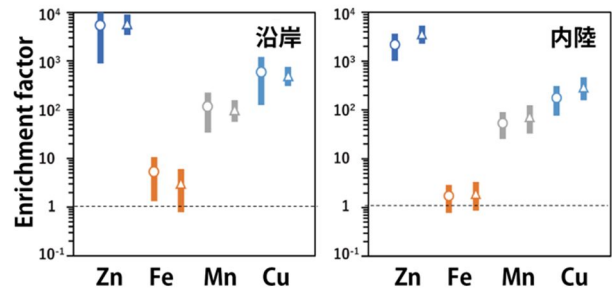


図 4. 水溶性微量金属の濃縮係数の変化。丸印は高炉停止前、三角印は高炉停止後を示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Iwamoto Yoko, Aiki Hidenori, Isoguchi Osamu, Obayashi Yumiko, Kondo Fumiyoshi, Kondo Yoshiko, Jun Nishioka and	4. 巻 30
2. 論文標題 Decadal vision in oceanography 2021: Air sea boundary	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Oceanography in Japan	6. 最初と最後の頁 199 ~ 225
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5928/kaiyou.30.5_199	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 岩本 容子	4. 巻 34
2. 論文標題 海洋大気エアロゾルの沈着・生成とその気候影響に関する研究	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 海洋化学研究	6. 最初と最後の頁 4 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yoshizue Momoka, Taketani Fumikazu, Adachi Kouji, Iwamoto Yoko, Tohjima Yasunori, Mori Tatsuhiro, Miura Kazuhiko	4. 巻 11
2. 論文標題 Detection of Aerosol Particles from Siberian Biomass Burning over the Western North Pacific	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Atmosphere	6. 最初と最後の頁 1175 ~ 1175
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/atmos11111175	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 岩本 洋子	4. 巻 35
2. 論文標題 海洋起源エアロゾル粒子の雲凝結核への寄与	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 エアロゾル研究	6. 最初と最後の頁 192 ~ 198
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11203/jar.35.192	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yoshizue Momoka, Iwamoto Yoko, Adachi Kouji, Kato Shungo, Sun Siyi, Miura Kazuhiko, Uematsu Mitsuo	4. 巻 75
2. 論文標題 Individual particle analysis of marine aerosols collected during the North-South transect cruise in the Pacific Ocean and its marginal seas	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Oceanography	6. 最初と最後の頁 513 ~ 524
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10872-019-00519-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計6件(うち招待講演 2件/うち国際学会 0件)

1. 発表者名 海塚収英, 岩本洋子, 竹田一彦, 三浦和彦
2. 発表標題 東広島における雲凝結核数濃度の通年観測 -西之島火山噴火の影響を交えて-
3. 学会等名 日本地球化学会年会第68回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩本洋子, 広田真子, 竹田一彦, 佐久川弘
2. 発表標題 東広島における大気エアロゾル中のリン酸の季節変動
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩本洋子
2. 発表標題 海洋大気エアロゾルの沈着・生成とその気候影響に関する研究
3. 学会等名 海洋化学研究所秋季講演会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 海塚収英, 岩本洋子, 竹田一彦, 三浦和彦
2. 発表標題 東広島で観測された大気エアロゾルの雲凝結核特性
3. 学会等名 第25回大気化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩本洋子, 広田真子, 竹田一彦, 佐久川弘
2. 発表標題 東広島における大気エアロゾル中のリン酸の季節変動
3. 学会等名 第37回エアロゾル科学技術研究討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩本洋子
2. 発表標題 粒子状物質を介した大気海洋間の物質循環過程-日本大気化学会奨励賞受賞記念講演-
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------