

レーザー顕微鏡による降水中蛍光粒子の観察

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2008-01-25 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 古池, 聖生, 鈴木, 款 メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.14945/00000351

レーザー顕微鏡による降水中蛍光粒子の観察

古池 聖生^{1*}・鈴木 款¹

Observation of fluorescent particles in rain water using Laser scanning microscope

Seiki FURUIKE^{1*} and Yosimi SUZUKI¹

Abstract Rain water contains various insoluble particles. Detection and observation of insoluble organic particles in rain water with a fluorescence microscope has been studied. A laser scanning microscope was used for observation of fluorescent particles. Rain water was collected from July 1996 to December 1996 in Shizuoka, and 17 rain water samples were collected. Fluorescent particles in rain water were characterized as organic matter using a Fourier transform infrared (FTIR) microscope. It was found that about 90% of fluorescent particles in rain water were organic matter and about 70% of non-fluorescent particles in rain water were inorganic matter, and also it was found that some of fluorescent particles were biological particles. These results indicate that most fluorescent particles in rain water reflect organic particles. Some fluorescent particles in rain water are cedar pollen and pine pollen, but the compound or material of majority couldn't be identified. The mean concentration of fluorescent particles with radii $2\mu\text{m} \leq r < 128\mu\text{m}$ in rain water was 960 cm^{-3} . The number of fluorescent particles in rain water was influenced by the amount of rainfall and wind speed, and the some cases is also influenced by rainfall intensity.

Key words: organic particles in rain water, fluorescent particles in rain water, rainout, washout.

はじめに

大気中には、気体成分だけでなく、固体および液体状の微粒子もまた存在している。これらの浮遊微粒子は総称して『大気エアロゾル』と呼ばれている。大気エアロゾルはその組成や性質も様々で、液体状のエアロゾルでは硫酸エアロゾル、硝酸エアロゾルなどが、また、固体状のエアロゾルでは、硫酸塩、土壌粒子、すす、有機物エアロゾルなどが存在している。これら大気エアロゾルは、呼吸と共に気管支・肺内に取り込まれ、喘息などの呼吸器障害の原因となりうる。また、太陽放射を散乱、吸収し、さらに雲に取り込まれて雲の反射率を変えることにより、地球-大気系の

熱収支に影響を与え気候変動を引き起こす。さらに、大気中で水蒸気の凝結により雲粒や氷晶が形成される過程に、雲核あるいは氷晶核として直接関与しており、また一方では、各種気体成分との反応を生ずることにより、大気中における不均質反応の場として作用している。このように、大気エアロゾルは、人体への影響や地球の気候への影響、および大気中における反応過程を考える上で、非常に重要な大気成分である。

大気エアロゾルは粒径が様々に異なっているだけでなく、さらにその組成においても様々に異なった成分粒子の集合体である。そのため、大気エアロゾルによる人体への影響や地球環境への影響などを考える場合には、その総量のみではなく、各成分の挙動について

¹静岡大学理学部地球科学教室、422 静岡市大谷836.

*現所属：名古屋大学大学院理学研究科、464-01 名古屋市千種区不老町。

¹Institute of Geosciences, Shizuoka University, 836 Oya, Shizuoka, 422 Japan.

*Present address: School of Science, Nagoya University, Furou-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-01 Japan.
E-mail: seysuzu@sci.shizuoka.ac.jp (Y.S.)

も考慮する必要がある。

大気エアロゾルの1つに『有機物エアロゾル』がある。この有機物エアロゾルに関する研究報告はまだ少なく、有機物エアロゾルの実態と放射過程や雲・降水形成過程でどのような役割を果たしているかを明らかにすることは、今後の重要な課題とされている。

これら有機物エアロゾルは降水中にも存在している。粒子の降水への取り込み過程は、Rainout（大気高層で雲粒が形成されるときに、雲粒中に取り込まれる過程）と Washout（雲粒が成長し雨滴となって大気中を落下する間に取り込まれる過程）がある。降水中の有機物についての研究例では、降水中の有機物の約80%が溶解状態で存在し、カルボン酸が最も多いことが報告されている（LIKENS *et al.*, 1983）。また、降水中の不溶性粒子の約30%が生物起源粒子であることが確認され、生物起源粒子の雲の凝結核や氷晶核への関与が示唆されている（CASARETO *et al.*, 1996）。氷晶核に関連した報告で、SCHNELL and TAN-SCHNELL（1982）はケニアの茶園で採集した腐敗した茶葉が非常に良い氷核形成作用を有していることを確認している。

また、霧粒が微生物の培地となり、二次的な生物エアロゾルの起源となりうるとの報告もある（FUZZI *et al.*, 1996）。

これらの研究は、生物起源粒子をはじめとする有機物エアロゾルと、雲・降水形成過程や降雨・霧といった現象などが深く関わっていることを示すものである。そこで、本研究では、降水中に取り込まれた有機物エアロゾルに着目し、顕微鏡を用いて観察することでその実体に迫る事を考えた。このような研究にはEDX分析機のついた電子顕微鏡を用いるのが一般的であるが、本研究では、新たな手法で降水中の有機物粒子の観察を試みた。そこで注目したのが、蛍光性を有する粒子である。有機物にはクロロフィルやリボフラビンなど強い蛍光性を示すものが多く知られている。有機物が蛍光を発するためには、分子の母核構造が吸光性を有し、無放射遷移しにくいことが必要で、共役二重結合を有し、分子構造が固定化し平面構造を取っているものは蛍光性を有しやすいとされている。降水中の有機物粒子検出の手段として蛍光粒子に着目したのである。

降水中の蛍光粒子の観察には、レーザー顕微鏡を用いることにした。レーザー顕微鏡は、光源にレーザー光を用いるため、位相・波長のそろった高輝度の励起光が得られ、精度良く蛍光粒子の観察を行えるという利点がある。レーザー顕微鏡による降水中の蛍光粒子の観察でどこまで有機物粒子に迫れるのかというのが本研究の1つの大きな目的である。実際に、降水中の蛍光粒子が有機物であるのかについては顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計による赤外線分析を行った。

試料採取および分析方法

降水のサンプリング地点とサンプリング方法

降水のサンプリングは、静岡大学理学部C棟屋上（標高約70m）にて行った。降水は、直径30cmのポリエチレン製のロートを用いて、5リットルのポリエチレン製のボトルに集められた。ボトルの中には、降水中に含まれる微生物の殺菌剤として、アジ化ナトリウム（NaN₃）を、薬さじ（小）1杯程度（約50mg）をあらかじめボトルの中に入れておいた。サンプリングのロー

トとボトルは、降水が始まる直前か、降水開始直後に設置した。降水サンプルの回収は、降水が止んでからできるだけ早く行った。捕集された降水は、別のポリエチレン製のボトルに移し変え、実験に用いるまで冷蔵庫で保管した。なお、降水採集時のロート、ボトルはMQ水で洗浄したものを扱い、降水採集後に降水を移し代えるボトルは希塩酸で洗浄したものを利用した。

レーザー顕微鏡による降水中蛍光粒子の観察

降水中粒子の観察を行うにあたり、降水をろ過する必要がある。降水は、適量を吸引ろ過により直径47mm、孔径0.4μmのNucleporeフィルター（材質：Polycarbonate）上に粒子を捕集した。粒子を捕集したフィルターは、乾燥後はさみで適当な大きさに切り、カバーガラスを載せ、プレパラートを製作した。本研究での蛍光粒子の観察は、励起波長を488nm、蛍光波長を515nm以上で行った。この波長の設定においては、他の観察波長より比較的バックの蛍光のノイズが少なかったこと、得られた蛍光が比較的強く、鮮明であったことによりこの観察波長を決定した。波長488nmの励起光はアルゴンレーザーにより得られた。

レーザー顕微鏡で粒子の粒径測定を行うにあたり、粒子を球体と仮定した時の半径で表すことにした。そこで、粒子の半径を、粒子の粒径を長径と短径を足して4で割った値と定義した[半径=(長径+短径)/4]。

粒径測定は、半径2μm~128μmの粒径範囲で行った。サブミクロンサイズの粒子になってくると、粒子自体の発する蛍光を鮮明にとらえることが難しくなるため、粒径測定の下限を半径2μmとし設定した。粒径別の粒子数は、半径2μm以上~4μm未満、4μm以上~8μm未満、8μm以上~16μm未満、16μm以上~32μm未満、32μm以上~64μm未満、64μm以上~128μm未満のそれぞれの粒径範囲に含まれる粒子の総数として表した。また、粒径測定は基本的に透過光で見た粒子を測定した。測定に用いたレーザー顕微鏡はZeiss社製LSM 410である。

顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計による降水中粒子の分析

降水中の有機物粒子の検出の手段として、蛍光を発する粒子の適用を考えたが、本当に蛍光粒子が有機物であるかどうかを確かめる事は、本研究において極めて重要な課題である。そこで、顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計（島津製作社製；顕微鏡専用機μIR-8000）¹以後、顕微FTIRと省略による粒子の分析を試みた。

フーリエ変換赤外分光光度計（FTIR）のは、試料に赤外線を照射し、分子振動に基づく赤外線の吸収を測定するものである。物質は、その分子構造により特有の赤外吸収スペクトルをもつため、特に、未知試料の同定などの分析に有効である。

蛍光粒子の顕微FTIR分析は、レーザー顕微鏡で観察した降水中の蛍光粒子の顕微鏡写真をあらかじめ撮っておき、その写真をもとに、写真に写っているのと同じ粒子を探して分析を行った。

分析方法は、バックグラウンドとサンプルを測定し、その比をとって試料による赤外線の吸収スペクトルを得る。ここでのバックグラウンドは、粒子を捕集しているNucleporeフィルター上で、測定に影響を与えるような大きな粒子が存在していない場所の測定から得

表1 降水中の蛍光粒子の数濃度、蛍光粒子数と気象条件.

Table 1 Relation between fluorescent particles in rain water and meteorological conditions.

降水日 (1996年)	蛍光粒子の 数濃度 (個/l)	降水量 (mm)	蛍光粒子数 (個)	降水時間 (h)	降水強度 (mm/h)	風速 (m/s)
7月 5日	465021	66	306914	10	6.6	2.86
8~10日	619409	68.5	424295	32	2.14	2.38
20~21日	143607	118	169456	20	5.9	2.27
8月 24日	1372543	16	219607	3	5.33	2.92
28~29日	249701	77.5	193518	26	2.94	2.19
9月13~14日	2168103	13.5	292694	10	1.35	2.35
21~22日	1231396	59	726524	17	3.47	4.26
26日	1591468	3	47744	5	0.6	0.7
10月 3日	1657004	28.5	472246	6	4.75	2.67
8日	854134	48	409984	18	2.67	2.69
14日	214942	32	68781	15	2.13	1.99
11月 1日	808438	37	299122	12	3.08	1.91
8~9日	649333	23.5	152593	22	1.07	1.89
27日	2075036	18.5	383882	10	1.85	1.71
12月 5日	837825	88.5	741475	20	4.43	3.39
10~11日	1089000	11.5	125235	5	2.3	1.42
17~18日	307752	41	126178	7	5.86	1.94
平均	960683	44.06	303544	14	3.15	2.33

たスペクトルを用いた。この測定分解能は 1cm^{-1} 、分析限界は $10\mu\text{m}$ 程度の粒子である。

結 果

降水中蛍光粒子の粒径測定と気象条件の関係

降水中の蛍光粒子の粒径測定については、1996年7月～12月の期間内に採集した17の降水について行った。1月あたりでは、2～3の降水となる。表1に測定した降水中の蛍光粒子 ($2\mu\text{m}\sim 128\mu\text{m}$) の数濃度、蛍光粒子数 ($2\mu\text{m}\sim 128\mu\text{m}$) と、その時の気象条件 (静岡地方気象台観測データより) をまとめた。

ここで、蛍光粒子 ($2\mu\text{m}\sim 128\mu\text{m}$) の計数は降水の一部フィルター上にろ過したものについて行っている。そこから得られる情報は、単位体積当たりの降水中の蛍光粒子数、つまり、蛍光粒子の数濃度である。降り始めから降り終わりまでの1回の降水中に含まれる全蛍光粒子の数を求めるには、計数により求めた蛍光粒子の数濃度に降水の総量をかける必要がある。ここで、本研究で捕集した降水の総量は、直径30cmのポリロートを用いて降水を捕集しているので、直径30cmの円筒形の容器に捕集された降水の量、ということになるが、イメージを簡略化するために、降水の捕集容器に、底辺が1辺10cmの正方形をした直方体を仮定し、この中に捕集された降水の量を1回の降水の総量とした。よって、降水の総量 (cm^3) は $10\text{cm} \times 10\text{cm} \times \text{降水量 (mm)} \times 10^{-1}$ で求められる。したがって、降水中の蛍光粒子数とは、1回の降水で底辺の1辺が10cmの正方形をした直方体に捕集された降水中の蛍光粒子の数ということになり、それは、計数により求めた降水中の蛍光粒子の数濃度に上記の式で計算される降水の総量をかけて算出される。

また、気象条件のデータについて、風速は降水の降

り始めから降り終わりまでの平均値であり、降水強度は降水量を降水時間で割って求めたものである。

図1には、計数の結果求めた全17降水の平均の蛍光粒子の数濃度の粒径別の分布と、体積の粒径別の分布をまとめた。体積は球体を仮定して計算したが、その時の計算に用いた粒子の半径は、所定半径範囲の中間値 (対数) を用いた。

降水中の蛍光粒子の数濃度、蛍光粒子数と降水量、降水強度、風速にの関係について、図2～図4に示した。

図1の蛍光粒子の粒径別の分布を結果みると、蛍光粒子の数は、粒径が小さいほど粒子の数が増えていくが、粒子の体積でみると、その逆で、粒径が大きくなるにつれて、蛍光粒子の体積は増す傾向にある。降水1リットル中に含まれる蛍光粒子 ($2\mu\text{m}\sim 128\mu\text{m}$) の数は、全17降水の平均で、約96万個 (1cm^{-1} あたり960個)、球体を仮定したときの蛍光粒子の体積の平均は、約 1.8mm^3 となった。

また、気象条件と降水中蛍光粒子との関係のグラフについてみると、非常によく相関していると言えるものはなかったが、図2aの降水量と蛍光粒子の数濃度 (個/l)、および、図3bの風速と蛍光粒子数 (個) は、ある程度の相関が見られた。興味深いことは、降水量が多くなればなるほど蛍光粒子数が一方的に増えて行くということではなく (図2b)、また、風速と蛍光粒子数にはある程度相関があるにもかかわらず、風速と蛍光粒子の濃度には全く相関がない (図3a)、ということである。

図4の蛍光粒子と降水強度との間には、あまり相関がみられなかった。

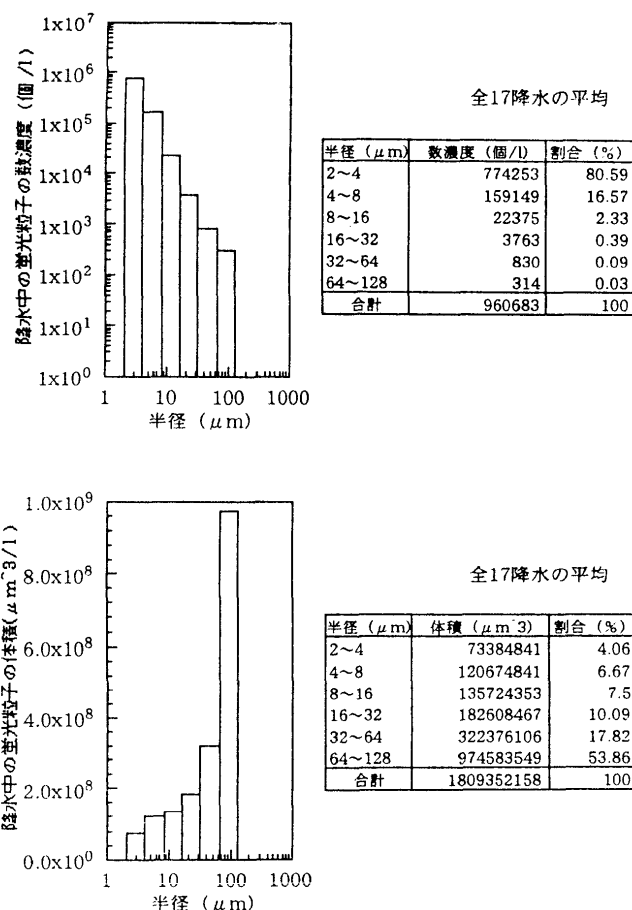


図1 全17降水の平均の蛍光粒子の数濃度・体積の粒径別分布。

Fig. 1 Mean size distribution and mean volume distribution of fluorescent particles in rain water.

顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計による降水中粒子の分析

粒子の分析は、蛍光粒子をメインに行ったが、無蛍光粒子についても少し分析を行った。分析に用いた降水は、1996年7月8~10日、9月13~14日、11月8~9日、12月5日、の4サンプルである。降水中の蛍光粒子については、以上の4降水で合計41個、無蛍光粒子については、11月8~9日、12月5日、の2サンプルで合計14個、分析を行った。

今回の分析では、粒子を捕集している Nuclepore フィルター（材質：Polycarbonate）も赤外線を吸収する。Nuclepore フィルターによる吸収が強い波数 1770cm⁻¹ 付近、1550cm⁻¹ 付近 1350~1150cm⁻¹ 付近のスペクトルは大きく乱れるためこの付近のスペクトルは参考にならない。

測定した粒子の写真を図5に、また写真に写っている粒子の分析で得られた FTIR スペクトルの一例を図6~図8に示す。

縦軸が赤外線透過率(%), 横軸が赤外線の波数(cm⁻¹) である。赤外吸収スペクトルの特徴を以下に示す。

- ・—OH伸縮振動: 3200 ~3700cm⁻¹
- ・—NH伸縮振動: 3400 cm⁻¹前後
- ・—CH伸縮振動: 2800~3000 cm⁻¹
- ・—CONH: 1600 cm⁻¹を挟んだ2つ（アミドおよ

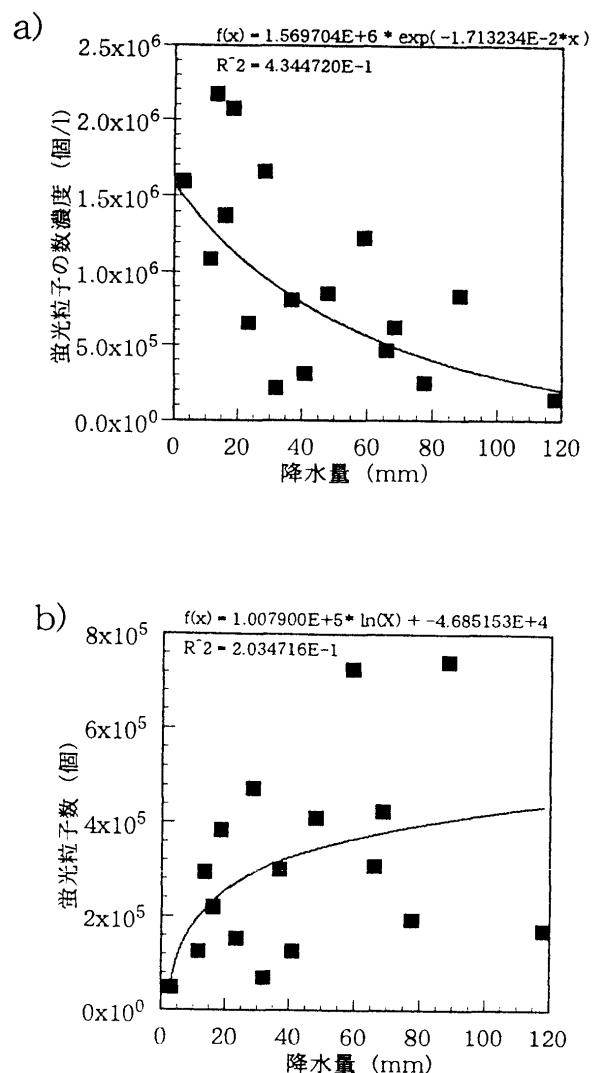


図2 降水量と降水中蛍光粒子の数濃度(a)および個数(b)との相関図。

Fig. 2 Relationship between the amount of rainfall and fluorescent particles in rain water.

びⅡ)の吸収

・CO₂ 逆対称伸縮: 2350cm⁻¹前後

図6と図7のように、CHの伸縮振動による赤外吸収のスペクトルが得られたものは有機物と判断した。得られたスペクトルの特徴から、図6に関してはCHによる吸収が見られることより『炭化水素』と分類した。また、さらに図7の様にペプチド結合によるスペクトルが得られたものに関しては、『炭化水素』から独立させ、『ペプチド』と分類した。図8では、有機物の存在を示すようなスペクトルはみられなかったため、このような粒子を『無機物』と分類した。なお2350cm⁻¹前後に現れているピークは、大気中のCO₂の変動によるものとみられる。

測定結果のまとめを表2と図9に示した。

図9より、蛍光粒子の約90%が有機物（『炭化水素』+『ペプチド』）である結果を示した。また、無蛍光粒子の約70%が無機物である結果を示した。

また、表2について、顕微FTIRの分析限界が10μm程度の粒子なので、半径2μm~4μmの粒子について

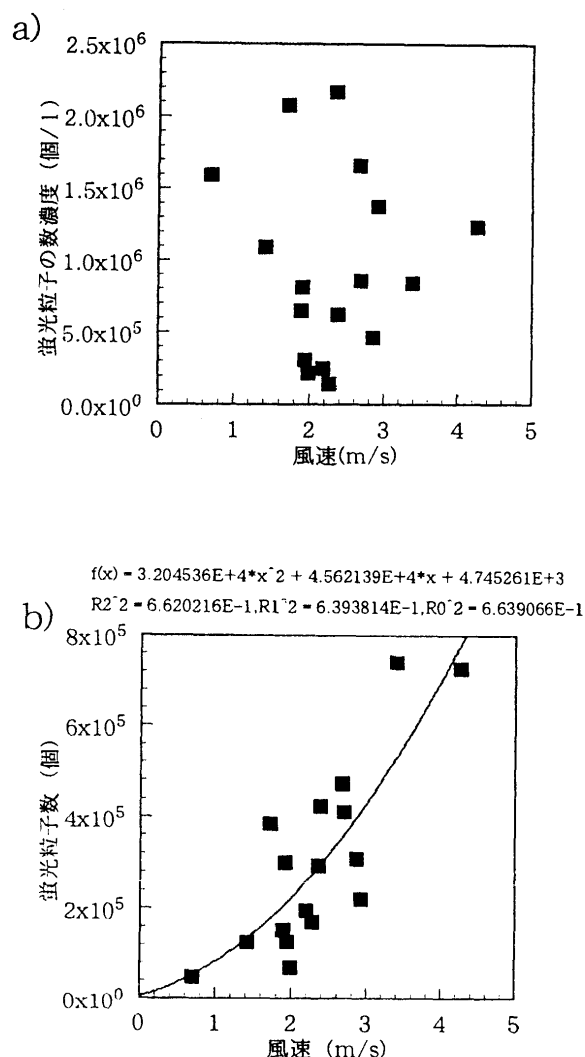


図3 風速と降水中蛍光粒子の濃度(a)および個数(b)との相関図。

Fig. 3 Relationship between wind speed and fluorescent particles in rain water.

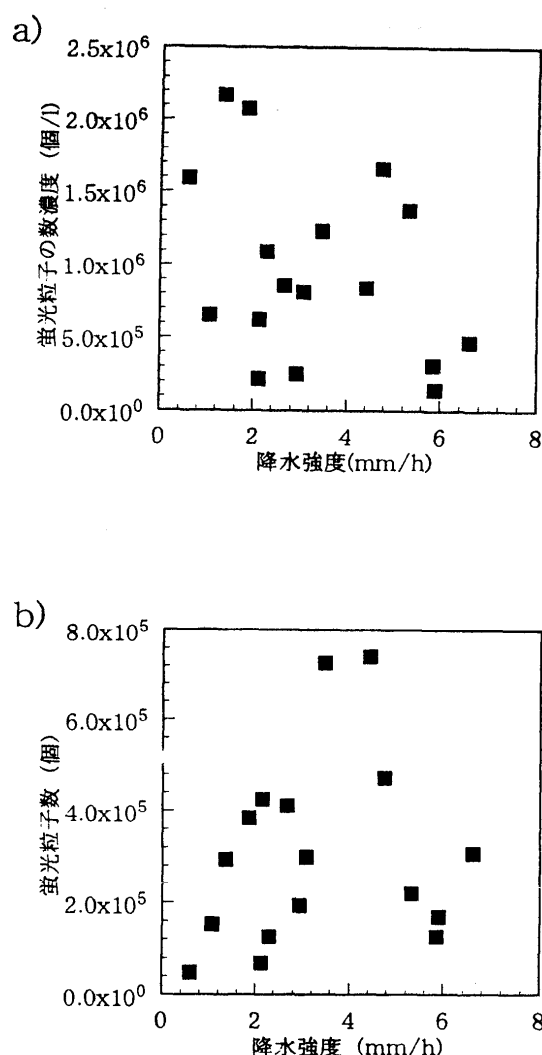


図4 降水強度と降水中蛍光粒子の濃度(a)および個数(b)との相関図。

Fig. 4 Relationship between rainfall intensity and fluorescent particles in rain water.

は分析ができなかった。

考 察

顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計による降水中粒子の分析

顕微 FTIR 分析の大きな目的は、降水中の蛍光粒子が有機物かどうかを探ることにある。分析の結果、蛍光粒子の約90%が有機物である結果を示した。しかし、無蛍光粒子の約30%が有機物である結果を示し、蛍光を発していない有機物粒子も少なからず存在していることが分かった。これらの結果から判断すると、降水中の蛍光粒子は、有機物粒子をよく反映していると言えるが、蛍光を発しない有機物粒子も確認されたことを考えると、有機物粒子全体をとらえるには、蛍光粒子だけでは十分でないと判断できる。

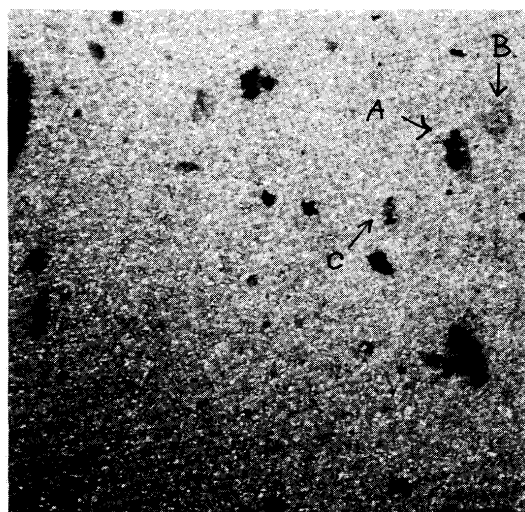
今回の顕微 FTIR 分析では、分析した粒子の赤外吸収スペクトルからその粒子の実態解明への手がかりを得ることができた。FTIRスペクトルがセルロースやグリセリンのそれとよく似ている粒子があり、これらの

粒子に関しては、植物片などの植物起源粒子の可能性が極めて高いと思われる。また、図7の『ペプチド』に分類した粒子の赤外吸収スペクトルと、粒子の大きさや形から判断して細菌である可能性は少ないと思われるので、動物起源の粒子であろうと考えられる。

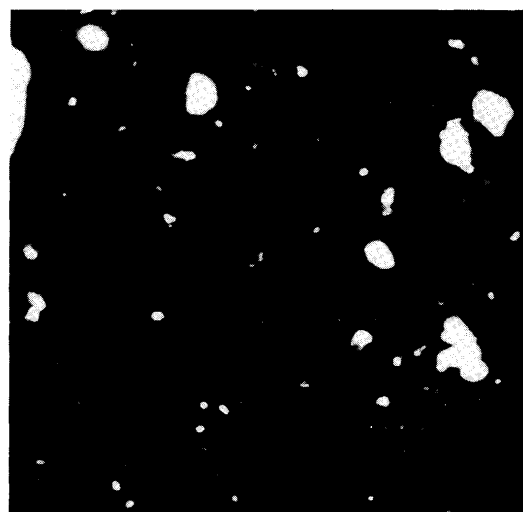
降水中蛍光粒子と気象条件との関係

降水中の蛍光粒子の形態は非常に様々であった。その形から蛍光を発している粒子の起源が分かったのは、杉花粉とマツ花粉のみである。粒子の形態から起源を探るのは極めて難しい。

図2～図4の蛍光粒子と降水時の気象条件との相関図を見ると、ある程度相関を示すものが存在する。単純に考えると、降水量の多い降水ほど、降水中の蛍光粒子数は増加するように思えるが、図2bではそのような関係はあまり見られない。図2aでは、降水量の多い降水ほど濃度が低いという傾向がある程度確認できる。図3bでは、風速が大きくなるほど蛍光粒子数も増すという傾向がみられるが、図3aの風速と濃度に関



透過光観察



蛍光観察

図5 降水中蛍光粒子のレーザー顕微鏡写真.

Fig. 5 Laser micrograph of fluorescent particles in rain water collected on Nuclepore filter.

してはあまり相関が見られない。第4図の降水強度と蛍光粒子数、および数濃度の間には相関はほとんど見られない。

図2aより、降水量の多い降水ほど、蛍光粒子の数濃度が低い雨滴が、雨の降り始めから降り終わりまで降り続くとは考えにくく、おそらく降水開始直後のWashoutにより蛍光粒子の数濃度の非常に高い降水が形成され、Washout完了後は比較的な数濃度の低い降水によって、それが徐々に希釈されていった結果の表れであろうと考えられる。そうすると、降水中の蛍光粒子数は、Washoutが完了するまで急速に増えるが、完了後は、相対的に数濃度の低い降水が降ってくるため、徐々に増えていくことが考えられる。そのような過程を経て、降水中の蛍光粒子数が決定したとすれば、図2bは、もう少し相関があっても良いと思われるが、かなりばらつきが見られる。これらのばらつきは、風速による効果が考えられる。降水中の蛍光粒子は主に、陸上起源だと考えられるため、それらの巻き上げには風の強さ（風速）が影響してくると思われる。図3bを見ると、降水中の蛍光粒子数は風速と比較的良好な相関がある。つまり、雨滴中に取り込まれる蛍光粒子の数が風速により影響を受けるためと考えられる。そうすると、数濃度の方も風速と相関があっても良いものと思われるが、図3aを見ると分かるように全く相関がない。これは、降水中の数濃度は、降水開始時のWashoutにより形成された蛍光粒子の数濃度の非常に高い降水を、その後の降水による希釈がどの程度効いてくるかによる影響が大きいと考えられる。だから、仮に、降水開始時の急激なWashoutが存在せず、その後の希釈効果も存在しなければ、風速と蛍光粒子の数濃度との相関ももっと良くなるはずである。

降水量と蛍光粒子数（図2b）のばらつきに戻って注目してみる。図中に最小二乗法により求めた対数曲線から上に大きくかけ離れている点（9/21-22, 10/3, 12

/5）と下に大きくかけ離れている点（7/20-21, 8/28-29, 10/14, 12/17-18）の風速を見ると、上に大きくかけ離れている降水の風速は、全降水の平均風速よりも大きく、また下に大きくかけ離れている降水の風速は平均風速よりも小さい事が分かる。つまり、図3bで見られる風速と蛍光粒子数との関係が、このばらつきを説明してくれるように思える。しかし、さらに詳しく見ると風速だけでは説明のつかないものもある。7/20-21の風速は平均風速よりもわずかに小さいだけであるが、大きく下にかけて離れている。風速に関していえば、7/5や8/24の降水の風速は、本研究で対象としている全降水の中でも大きい方であるにもかかわらず、図2bの対数曲線から大きくは外れていない。つまり、この3つの降水についていえば、測定結果以上に、蛍光粒子が含まれていてもいいはずなのに、含まれていないのである。この矛盾をある程度、説明してくれそうなのが、降水強度である。

降水強度とは単位時間に降った降水の量であるが、これが、雨滴の大きさに関係するならば、降水強度の強いものは雨滴の粒径が大きく、弱いものは雨滴の粒径が小さいと考えることができる。粒径の小さい雨滴の方が、粒径の大きい雨滴よりも表面積が大きくなる。このため、粒子の捕集には、降水強度の弱いものの方が、粒子を効率よく捕集すると考えられる。この降水強度に関して、前述の7/20-21, 7/5, 8/24をみてみると、この3降水はすべて強い降水強度であることが分かる。つまり、降水強度が強いために、粒子が雨滴（または雲滴）に取り込まれる効率が悪く、それゆえ、風速の大きさほど蛍光粒子が降水中に取り込まれていないと考えることができる。11/27に関してもこの関係が当てはまる。11/27の降水中の蛍光粒子数は風速が小さいわりには比較的多いが、この時の降水強度が弱いために粒子が効率よく雨滴（雲滴）に取り込まれたと考えることができる。しかし、図4より降水強度と蛍光

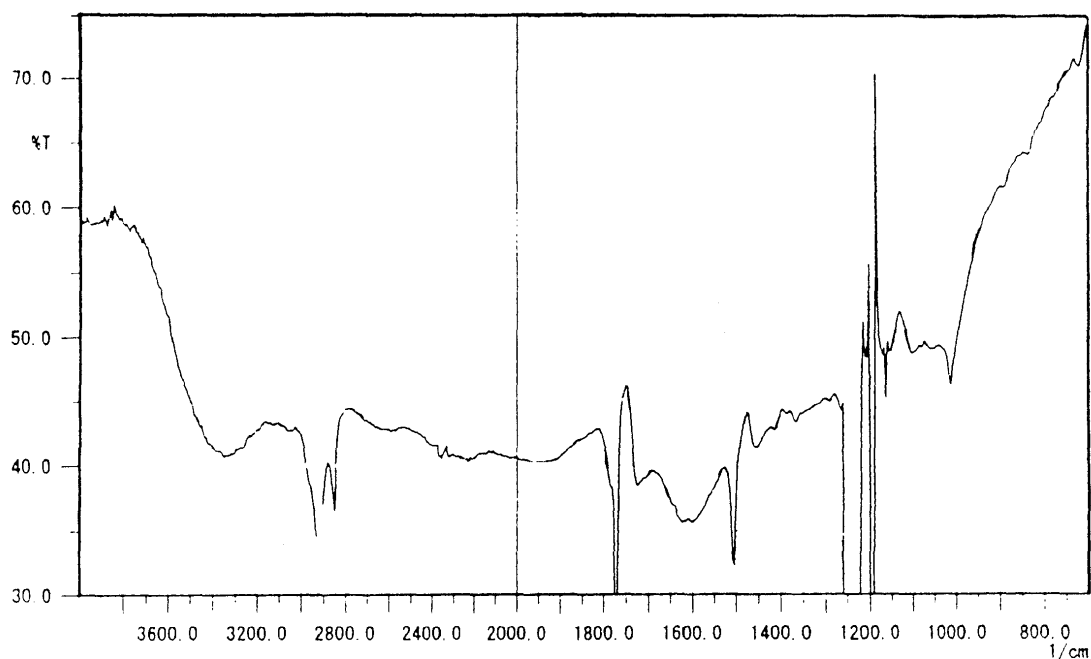


図6 降水中蛍光粒子(図5中の粒子A)のFTIR スペクトル「炭化水素」.

Fig. 6 FTIR spectrum of a fluorescent particle "Carbohydrate" in rain water (particle A in Fig. 5).

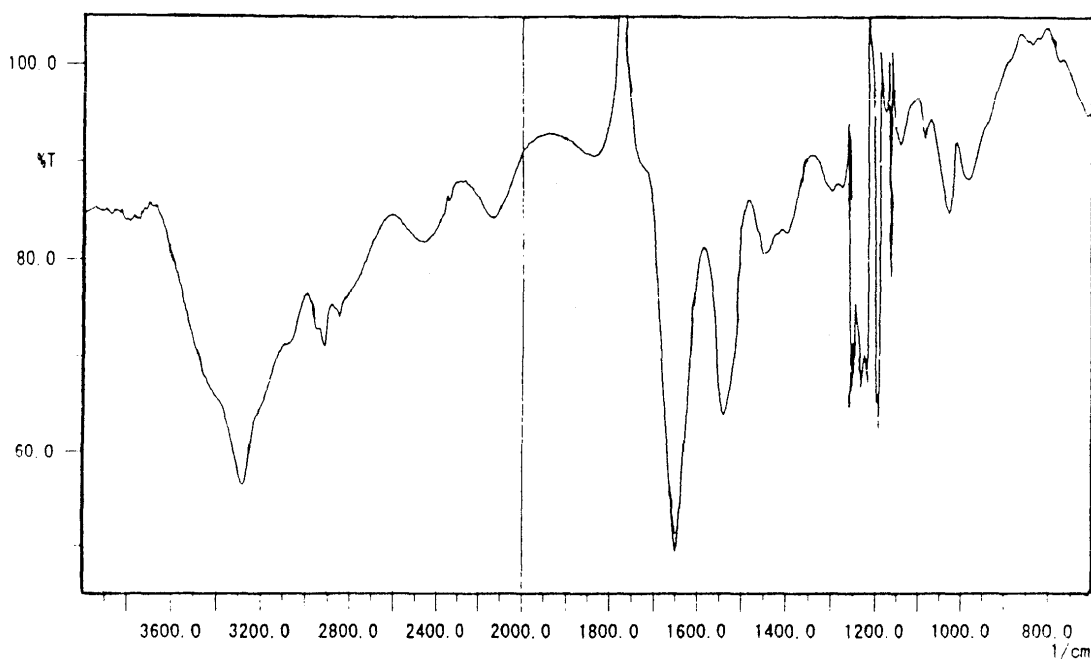


図7 降水中蛍光粒子(図5中の粒子B)のFTIR スペクトル「ペプチド」.

Fig. 7 FTIR spectrum of a fluorescent particle "Peptide" in rain water (particle B in Fig. 5).

粒子の間には相関が見られない。降水への蛍光粒子の取り込みに降水強度がどの程度関わってくるのかははっきりしない。

以上をまとめる。図2bより、降水量が多いからといって、降水中に取り込まれた蛍光粒子数も多いとは限らない。これは、雨滴中の蛍光粒子の数濃度が降水により異なるためであると考えられる。図2aより、降水量の多い降水ほど、蛍光粒子の数濃度は小さくなってい

く。これは、降水開始直後の Washout により蛍光粒子の数濃度の非常に高い降水が形成され、Washout完了後は、相対的に数濃度の小さい降水が降ってくるため、降水量の増加と共に、蛍光粒子の数濃度が希釈されていると解釈できる。図3bより、風速と蛍光粒子数にある程度相関があるのは、風の強さ(風速)は、地上からの粒子の巻き上げに深く関与しているので、陸上起源と考えられる蛍光粒子の巻き上げにも深く関与

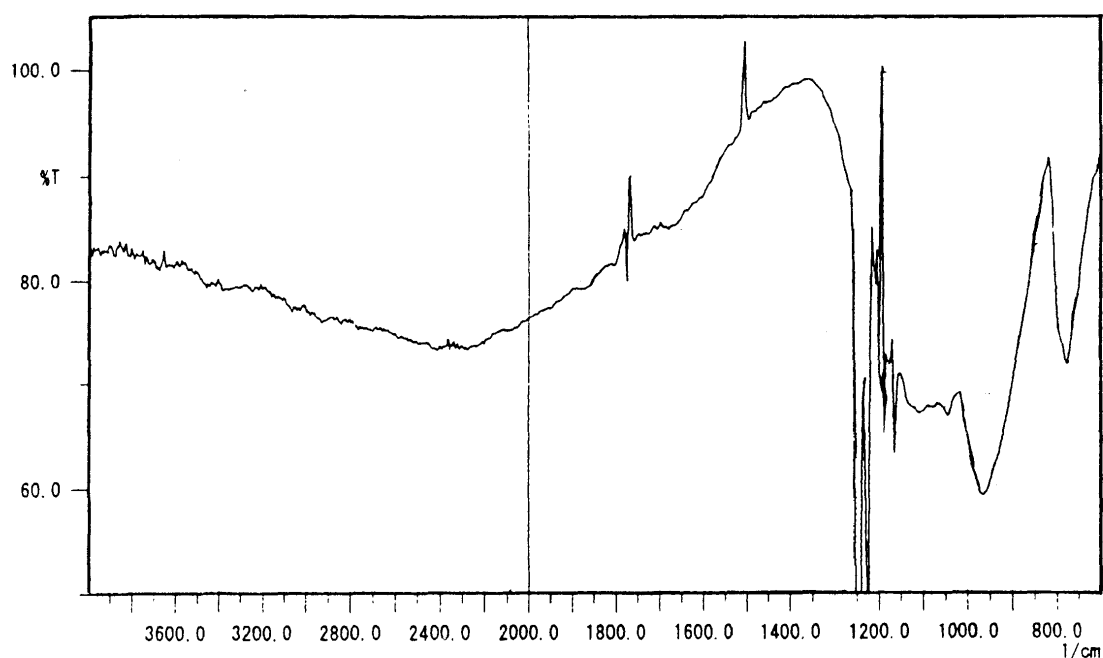


図8 降水中蛍光粒子(図5中の粒子C)のFTIR スペクトル「無機物」.

Fig. 8 FTIR spectrum of a fluorescent particle "Inorganic matter" in rain water (particle C in Fig. 5).

表2 降水中蛍光粒子・無蛍光粒子の降水日別および粒径別 FTIR 分析結果.

Table 2 FTIR analysis of fluorescent and non-fluorescent particles in rain water.

蛍光粒子

単位: 個

半径 (μm)	2~4	4~8	8~16	16~32	32~64	64~128	合計	炭化水素	ペプチド	無機物
7月9~10日	0	2	6	4	2	2	16	12	3	1
9月13~14日	0	0	0	0	1	3	4	4	0	0
11月8~9日	0	1	1	1	0	0	3	3	0	0
12月5日	0	4	7	3	1	3	18	13	3	2
合計	0	7	14	8	4	8	41	32	6	3
炭化水素	0	5	11	7	3	6	32			
ペプチド	0	0	2	1	1	2	6			
無機物	0	2	1	0	0	0	3			

無蛍光粒子

単位: 個

半径 (μm)	2~4	4~8	8~16	16~32	32~64	64~128	合計	炭化水素	ペプチド	無機物
11月8~9日	0	1	2	4	0	1	8	2	0	6
12月5日	0	2	3	1	0	0	6	2	0	4
合計	0	3	5	5	0	1	14	4	0	10
炭化水素	0	0	3	1	0	0	4			
ペプチド	0	0	0	0	0	0	0			
無機物	0	3	2	4	0	1	10			

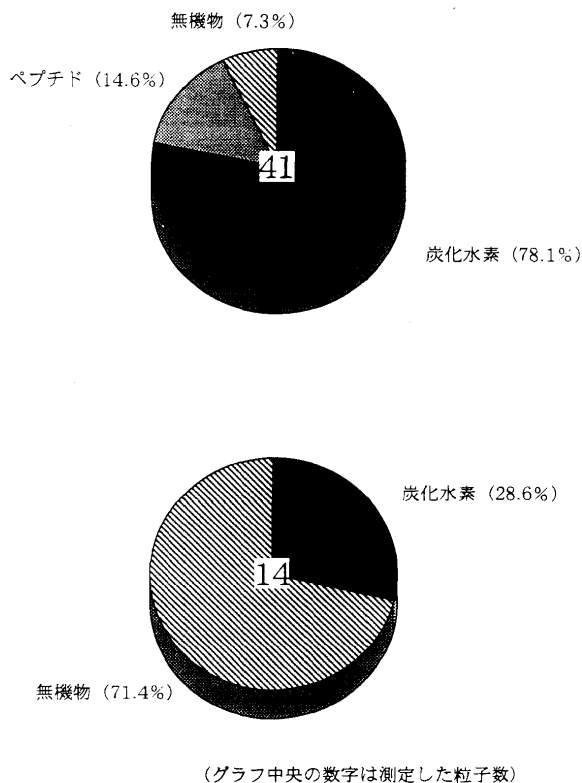


図9 降水中の蛍光粒子(a)および無蛍光粒子(b)の FTIR 分析結果。

Fig. 9 FTIR analysis of fluorescent and non-fluorescent particles in rain water.

していることが考えられる。そして、巻き上げられた蛍光粒子は Washout および Rainout により降水中に取り込まれると考えられる。図4より、降水強度と蛍光粒子の間に相関は見られないが、降水強度と雨滴（雲滴）に取り込まれる蛍光粒子の数に負の相関があるとみなされる降水もいくつかあり、降水への蛍光粒子の取り込みに降水強度も関わっている可能性が考えられる。

結 論

降水中の蛍光粒子のどの位が有機物粒子であるかについて調べる事は本研究において重要なことであった。この点について、顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計（顕微FTIR）による分析を行った。その結果、蛍光粒子の約9割が有機物である結果を示した。しかし、同分析では、無蛍光粒子の約3割についても有機物である結果が出た。この結果から考えると、降水中の蛍光粒子は有機物粒子を良く反映していると言えるが、蛍光を発しない有機物粒子も存在していることから、有機物粒子全体をとらえるには蛍光粒子だけでは十分でないと考えられる。また、今回の顕微 FTIR の分析では、蛍光粒子の中に生物起源とみられる粒子の存在を確認した。

降水時の気象条件から、降水中の蛍光粒子は風により地上から巻き上げられ、Washout または Rainout に

より降水中に取り込まれたものと考えられる。また、降水開始時の Washout による急激な取り込みも起こっていると考えられる。さらに、降水強度が、蛍光粒子の降水への取り込みに関与している可能性もみられた。

今回の研究では、レーザー顕微鏡で観察された降水中の蛍光粒子によって、降水中の有機物粒子に一定程度迫ることができ、また、顕微 FTIR 分析によりその実態にも迫ることもできた。しかし、降水中の有機物粒子について、そこから得られた情報はまだまだ少ない。降水中の有機物粒子、さらには、大気中の有機物エアロゾルの実態とその挙動を明らかにするためには更なる研究が必要である。

謝辞： レーザー顕微鏡の使用に関して、農学部の鳥山優先生には使用方法の説明から、メンテナンス等にあたるすべてのことでお世話になりました。また、生物科の石川勝利先生には蛍光観察について御指導頂きました。顕微鏡測定用フーリエ変換赤外分光光度計による分析に際しては、株式会社島津製作所の山口雅弘氏には、分析の打ち合わせや日程調整など分析実現に向けて大変な御尽力を頂き、また、同社の鈴木康志氏、ならびに土淵毅氏には、分析に立ち合って頂きました。

引用文献

- LIKENS G. E., EDGERTON E. C., GALLOWAY J. N. (1983), The composition and deposition of organic carbon in precipitation. *Tellus*, **35B**, 16-24.
- CASARETO B. E., SUZUKI Y., OKADA K., MORITA, M. (1996), Biological micro-particles in rain water. *Geophysical research letters*, **23**, 173-176.
- SCHNELL, R. C., TAN-SCHNELL S. H. (1982), Kenyan tea litter; a source of ice nuclei. *Tellus*, **34**, 92-95.
- FUZZI S., MANDORIOLI P., PERFETTO A. (1996), Fog droplets as atmospheric source of secondary biological aerosol particles. *Atmospheric Environment*, **31**, 287-290.