

C-130H 輸送機により観測された北西太平洋上空における大気中酸素濃度の時空間変動

Time and space variations of the O₂/N₂ ratio observed over the western North Pacific using a cargo aircraft C-130H

石戸谷 重之^{1*}, 坪井 一寛², 松枝 秀和², 村山 昌平¹, 澤 庸介², 丹羽 洋介², 田口 彰一¹, 中村 雅道³, 河内 太郎³, 齊藤 和幸³, 高辻 慎也³, 辻 健太郎³, 西 秀紘³, 出原 幸志郎³, 馬場 祐介³

Shigeyuki Ishidoya^{1*}, Kazuhiro Tsuboi², Hidekazu Matsueda², Shohei Murayama¹, Yousuke Sawa², Yosuke Niwa², Shoichi Taguchi¹, Masamichi Nakamura³, Taro Kawasato³, Kazuyuki Saito³, Shinya Takatsuji³, Kentaro Tsuji³, Hidehiro Nishi³, Koshiro Dehara³, Yusuke Baba³

¹ 産業技術総合研究所, ² 気象研究所, ³ 気象庁

¹ AIST, ² Meteorological Research Institute, ³ Japan Meteorological Agency

大気中 O₂ 濃度 (O₂/N₂) の高精度観測は炭素循環解明の有力な手法であり、1990 年代初頭より多数の地上基地において観測が展開されているが (e.g. Manning and Keeling, 2006)、航空機を用いた自由対流圏における観測例は極めて限られている (e.g. Ishidoya et al., 2012)。そこで本研究では、神奈川県厚木基地 (35.45 °N, 139.45 °E) と南鳥島 (24.28 °N, 153.98 °E) 間に就航している C-130H 輸送機により採取した空気試料の (O₂/N₂)、Ar 濃度 ((Ar/N₂))、N₂ · O₂ · Ar の安定同位体比 (15N of N₂ · 18O of O₂ · 40Ar) を分析し、試料の成分分別を評価・補正することで (O₂/N₂) の実際大気中の変動を復元し、その 3 次元的な時空間変動を明らかにしたので報告する。

C-130H 輸送機による観測は月に一度の頻度で行われ、各観測において高度約 6 km の水平飛行中に 17-20 本、南鳥島への降下中に 4-7 本の計 24 本の大気試料を容積 1.7 L のチタン製容器に加圧採取した (Tsuboi et al., 2012)。また各月の C-130H 観測と同日には、南鳥島地上においても C-130H による大気採取と同じ時間帯 (正午±15 時) に 6 本の大気試料を採取した。採取した計 30 本の試料は気象庁において CO₂、CH₄、N₂O および CO の各濃度を分析した後、産業技術総合研究所において質量分析計により (O₂/N₂)、(Ar/N₂)、15N of N₂、18O of O₂ および 40Ar を分析した。なお質量分析計による分析は 2012 年 5 月以降に採取した試料について行った。

15N of N₂、18O of O₂ および 40Ar は対流圏大気中ではほぼ一定であると考えられ、(Ar/N₂) は 10-30 per meg 程度のわずかな季節変化を示すことが知られている (e.g. Casser et al., 2008)。しかしながら C-130H による大気採取で得られた試料の (Ar/N₂)、15N of N₂、18O of O₂ および 40Ar は対流圏大気中の値と有意に異なり、特に水平飛行中の試料では地上観測値と比較して (Ar/N₂) で最大約 800 per meg もの高い値を示した。このような変動は対流圏大気の実際の変動では起こりえず、C-130H による大気採取において試料空気の成分に何らかの分別が生じていることを示している。そのため C-130H 試料の (Ar/N₂)、15N of N₂、18O of O₂ および 40Ar 測定値の間の関係を調べたところ、いずれも熱拡散分別が生じた場合の関係 (Ishidoya et al., 2013) と整合的な結果が得られた。このことは、C-130H では与圧外気が流出する機内各所の空気吹出口の一つから大気を採取しているために、空気流路の分岐による熱拡散的な成分分別 (e.g. Bender et al., 2005) が生じていることを示すと考えられる。そのため (Ar/N₂) 測定値と、実験的に確認された熱拡散分別による (Ar/N₂) と (O₂/N₂) の変動の関係を用いて、(O₂/N₂) 測定値に重畳している O₂ と N₂ の分別を補正した。本研究による (Ar/N₂) の測定精度は ± 5 per meg 程度であり、熱拡散分別による変動における (Ar/N₂) / (O₂/N₂) 比 (*16O16O/15N14N の比の場合) は約 4.5 である。従って補正に伴う誤差は ± 1 per meg 程度であり、(O₂/N₂) 観測に要求される ± 1 ppm (± 4.8 per meg) の精度と比較して十分に小さいことから、本手法により実際大気中の (O₂/N₂) の変動を再現し得ると考えられる。

補正後の (O₂/N₂) には、地表約 6 km のいずれの高度帯においても CO₂ 濃度と負相関の明瞭な季節変化が見られた。また 2012 年 5 月-12 月の期間における南鳥島上空の平均的な高度分布において、大気ポテンシャル酸素 (APO = O₂+1.1xCO₂) (Stephens et al., 1998) は高度の増加に伴い値が減少しており、本観測期間において南鳥島周辺海域は O₂ の正味の放出源であったことが示唆される。発表では各月の観測で見られた (O₂/N₂) の特徴的な変動に関し、CO₂ 他との濃度との関係と後方跡線解析とを用いて変動要因を推定した結果も紹介する。本研究の補正法により、成分分別を最小化する大気採取 (e.g. Keeling et al., 1998) の実施が困難な観測においても、(O₂/N₂) の高精度観測が可能になると考えられる。

キーワード: 航空機観測, 大気中 O₂/N₂ 比, 大気ポテンシャル酸素 (APO) , O₂、N₂ 分別量補正法

Keywords: aircraft observation, atmospheric O₂/N₂ ratio, Atmospheric Potential Oxygen (APO), correction method for fractionation of O₂ and N₂

都市部における CO₂ 発生源の推定 : CO₂ 安定同位体比および CO₂, CO, NO_x 濃度連続測定

Analyses for CO₂ source in the urban area: measurement of stable isotope ratio of CO₂ and CO₂, CO, NO_x

弓場 彬江^{1*}, 高橋 けんし², 中山 智喜¹, 松見 豊¹

Akie Yuba^{1*}, Kenshi Takahashi², Tomoki Nakayama¹, Yutaka Matsumi¹

¹名古屋大学 太陽地球環境研究所, ²京都大学 生存圏研究所

¹Nagoya University, Solar-terrestrial environmental laboratory, ²Kyoto University, Research institute for sustainable humanosphere

CO₂ has the most effect on the global climate change because CO₂ has the largest positive radiative forcing (IPCC 2007). The accurate estimation of the CO₂ emission and loss flux are necessary to improve the prediction of the global climate change in the future, because the variations of CO₂ concentration substantially contributes to the variations of the global radiative forcing. CO₂ concentration varies due to the emission from the gasoline and natural gas combustion, biomass burning, and ecosystem respiration, the absorption due to the photosynthesis, the absorption into ocean and emission from the ocean surface. In the urban area, the variation of CO₂ concentration depends on the anthropogenic emission such as the fossil fuel combustion (gasoline and natural gas) and background CO₂ concentration mainly.

We conducted the continuous measurement of carbon and oxygen isotope ratios of CO₂ ($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{18}\text{O}$) using the infrared absorption laser spectrometer. The infrared absorption laser spectrometer can continuously measure $\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{18}\text{O}$ in high time resolution (10 seconds). The measurement period was from July 20 to August 10, 2012 at Nagoya University. Simultaneously, we measured the concentrations of nitrogen oxides, CO, water vapor and stable isotope ratios of water vapor (δD and $\delta^{18}\text{O}$). The variations of CO₂ concentrations, $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{18}\text{O}$ shows the contribution of the fossil fuel combustion and ecosystem respiration to the carbon cycle in the urban area.

Measured CO₂ concentrations and stable isotope ratios ($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{18}\text{O}$) show the diurnal variation in the measurement period. CO₂ concentrations decreased in the daytime and had a peak in the nighttime. On the other hand, $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{18}\text{O}$ had a peak in the daytime and decreased in the nighttime. This indicates that the variations of CO₂ concentration were substantially affected by the ecosystem respiration and photosynthesis in the urban area. We conducted the keeling plot analyses for $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{18}\text{O}$ in the nighttime to estimate the contributions of the fossil fuel combustion, biomass burning, and ecosystem respiration. In addition of the keeling plot analyses, we estimated CO₂ source from the relationship between the variations of CO and CO₂ concentrations. CO is emitted by the fossil fuel combustion and biomass burning mainly, while, CO₂ generated by the fossil fuel combustion, biomass burning and ecosystem respiration. Therefore, the relationship between CO and CO₂ concentration shows CO₂ source; the larger ratios of CO to increment of CO₂ from the background level (ΔCO_2) shows the contribution of the fossil fuel combustion or biomass burning, on the other hand, the smaller ratios of CO to ΔCO_2 shows the contribution of the ecosystem respiration. We will discuss the source of CO₂ from the analyses of the ratios of CO to ΔCO_2 and keeling plot.

キーワード: 二酸化炭素, 安定同位体比, レーザー分光法, CO₂ 発生源推定, 一酸化炭素

Keywords: Carbon dioxide, Stable isotope ratio, Laser spectrometry, CO₂ Source estimation, Carbon monoxide

福江島でのMAX-DOASによるNO₂測定：地上現場観測との比較検証と長期変動傾向

NO₂ observed by MAX-DOAS at Fukue Island: Comparison to ground-based observations and long-term variations

金谷 有剛^{1*}, 入江 仁士², 高島 久洋³, 竹谷 文一¹, 駒崎 雄一¹, Xiaole Pan¹, 谷本 浩志⁴, 猪俣 敏⁴, 中山 智喜⁵, 松見 豊⁵
Yugo Kanaya^{1*}, Hitoshi Irie², Hisahiro Takashima³, Fumikazu Taketani¹, Yuichi Komazaki¹, Xiaole Pan¹, Hiroshi Tanimoto⁴, Satoshi Inomata⁴, Tomoki Nakayama⁵, Yutaka Matsumi⁵

¹ 海洋研究開発機構地球環境変動領域, ² 千葉大学, ³ 福岡大学, ⁴ 国立環境研究所, ⁵ 名古屋大学

¹RIGC/JAMSTEC, ²Chiba University, ³Fukuoka University, ⁴NIES, ⁵Nagoya University

我々はアジア広域大気汚染の実態把握のために、2009年春から、長崎県・福江島大気環境観測施設(32.75N, 128.68E)にて、オゾン・微小エアロゾル・ブラックカーボンに加えて、MAX-DOAS法(複数仰角太陽散乱分光計測・差分吸収解析法)によるNO₂, エアロゾルの計測を実施している。低仰角(3, 5, 10, 20, 30度)で得られた紫外可視波長帯のスペクトルについて、天頂(仰角90度)で得られたスペクトルを参照として解析することによって、NO₂, O₄(酸素分子の衝突錯体)の差分吸収度を測定する。O₄の差分吸収からまず放射伝達モデルと整合的なエアロゾルの高度分布を導出し、その後NO₂の対流圏鉛直カラム濃度や高度分布を導出する。福江島では、2009年5-6月、2010年3-6月にそれぞれ光解離・化学発光法とレーザー誘起蛍光法によるNO₂の現場計測がなされており、それらの結果を用いて、MAX-DOASによるNO₂の地上付近濃度の導出結果を評価した。いずれの期間も整合的な時間変動が見られ、サブppbレベルまでの測定妥当性が認められた。MAX-DOASの長期観測によって、2009-2012年の期間に得られたNO₂の日変動・季節変動などを解析した。いずれの年も、冬季に濃度が極大となる季節変化を示すことがわかった。とくに、韓国方面から気塊が速く輸送される場合に、高濃度のNO₂が記録されることがわかった。春にもそのような輸送が見られる場合があり、越境汚染に関わるオゾン生成レジームにも影響を及ぼしていることがわかった。

キーワード: 窒素酸化物, MAX-DOAS, 比較検証, 長期傾向, エアロゾル

Keywords: Nitrogen Oxides, MAX-DOAS, instrument comparison, long-term variation, aerosol

東アジアにおける対流圏 NO₂ カラム衛星データの CMAQ による再現性の評価：日変化の観点から

An evaluation of the CMAQ reproducibility of satellite tropospheric NO₂ data at different local times over East Asia

入江仁士^{1*}, 山地一代², 池田恒平², 鷓野伊津志³, 板橋秀一³, 大原利真⁴, 黒川純一⁵

Hitoshi Irie^{1*}, Kazuyo Yamaji², Kohei Ikeda², Itsushi Uno³, Syuichi Itahashi³, Toshimasa Ohara⁴, Jun-ichi Kurokawa⁵

¹ 千葉大学, ² 海洋研究開発機構, ³ 九州大学, ⁴ 国立環境研究所, ⁵ アジア大気汚染研究センター

¹Chiba University, ²JAMSTEC, ³Kyusyu University, ⁴NIES, ⁵ACAP

二酸化窒素 (NO₂) は対流圏化学において中心的な役割を果たしている。しかしながら、東アジアでは人工衛星観測とモデル計算から得られる対流圏 NO₂ カラム濃度が著しく異なることが報告されており、その原因解明は極めて重要である。本研究では、マルチスケール大気質モデル CMAQ を採用し、衛星観測から得られた対流圏 NO₂ カラム濃度の再現性を評価する。エミッションデータとして REAS Version 2 を利用した。異なる地方時で得られた衛星データ (SCIAMACHY/ENVISAT, OMI/Aura, GOME-2/Metop-A) を複合的に利用し、日変化の観点から評価を行った。評価を行う上で、公表されている衛星観測データの検証結果を考慮した。ケーススタディとして 2007 年 6 月と 12 月に着目し、CMAQ の水平解像度の影響等についての詳細な感度実験を行った。また、東アジア域のうち 12 の主要な領域を選択し、それぞれについて CMAQ と衛星データの比較を行った。2007 年 6 月について、CMAQ は対流圏 NO₂ カラム濃度の衛星データの値を概ね再現することが分かった。また、日変化パターンも再現することが分かった。それに対して、2007 年 12 月においては、衛星データと CMAQ の値のあいだに絶対値のみならず日変化パターンにも顕著な違いが見られた。その違いは本研究で実施したどの感度解析でも説明できなかった。この問題を解決するためには、冬季の衛星データ検証を含め、さらなる詳細な調査が必要である。

キーワード: NO₂, CMAQ, 衛星データ, 日変化

Keywords: NO₂, CMAQ, satellite data, diurnal variation

複数化学種観測による窒素酸化物排出量の推定 Multiple species constraints on surface NO_x emission inversion

宮崎 和幸^{1*}, Henk Eskes²
Kazuyuki Miyazaki^{1*}, Henk Eskes²

¹ 独立行政法人 海洋研究開発機構, ² オランダ王立気象研究所

¹Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ²Royal Netherlands Meteorological Institute (KNMI)

Satellite NO₂, CO, O₃, and HNO₃ data are assimilated into a chemical transport model to estimate global surface NO_x emissions and their seasonal variation in 2007. The data assimilation of data for multiple species provides comprehensive constraints on the NO_x emissions by limiting model errors in NO_x chemistry. The non-NO₂ data changed the regional and hemispheric monthly total NO_x emissions by 50% and 13-29%, respectively. These large changes introduced by the inclusion of non-NO₂ data imply a large uncertainty in the NO_x emissions inverted from NO₂ data only. Compared to the emission inventories, the estimated NO_x emissions show enhanced seasonal variations with the maximum emissions at most of the northern mid-latitudes occurring 1-2 months earlier. An analysis of the background error covariance demonstrates that additional constraints from other chemically related species (e.g., isopren and formaldehyde) have the potential to further improve surface NO_x emission analyses.

キーワード: 窒素酸化物, データ同化, 衛星観測

Keywords: NO_x emission, Data assimilation, Satellite observation

過去25年間の成層圏CO₂濃度のトレンドと年々変動 Trend and interannual variation of the stratospheric CO₂ in the past 25 years

菅原 敏^{1*}, 青木 周司², 中澤 高清², 石戸谷 重之³, 森本 真司⁴, 豊田 栄⁵, 本田 秀之⁶

Satoshi Sugawara^{1*}, Shuji Aoki², Takakiyo Nakazawa², Shigeyuki Ishidoya³, Shinji Morimoto⁴, Sakae Toyoda⁵, Hideyuki Honda⁶

¹ 宮城教育大学, ² 東北大院理大気海洋センター, ³ 産業技術総合研究所, ⁴ 国立極地研究所, ⁵ 東京工業大学, ⁶ 宇宙科学研究所

¹Miyagi Univ. of Education, ²CAOS, Tohoku Univ., ³AIST, ⁴NIPR, ⁵Tokyo Institute of Technology, ⁶ISAS/JAXA

Systematic collections of stratospheric air samples have been carried out over Japan since 1985, using a balloon-borne cryogenic sampler. The stratospheric air samples have been collected almost once a year or two years at 11 assigned heights, ranging from the tropopause to 30 - 35 km. The air samples were analyzed for various gas concentrations, such as CO₂, CH₄, N₂O, and SF₆, and their isotopes. Measurements of the stratospheric CO₂ concentration are one of the most promising methods to detect possible changes in the stratospheric circulation, because chemical loss and production are negligible in the stratosphere and its long-term trend in the troposphere is propagated into the stratosphere, with some time lag. Increasing trend of the CO₂ concentration was clearly found at heights above 20-25 km, where the CO₂ concentration becomes almost constant vertically. To clarify the difference of the secular CO₂ increases between the mid-stratosphere and the troposphere, the average values of the CO₂ concentration, calculated from the balloon data obtained at heights above 20-25 km, were compared with annual mean CO₂ concentrations at Mauna Loa (MLO) observed by NOAA/ESRL. The average increase rate of the CO₂ concentration in the mid-stratosphere, calculated by using a least-squares method, was 1.55(+0.03) ppmv/year. This value is significantly smaller than 1.73(+0.03) ppmv/year calculated for the same period for MLO data. Considering that the mid-stratospheric CO₂ concentration corresponds to the tropospheric values earlier by 4-5 years, the CO₂ increase rate in the stratosphere should be compared with the tropospheric values shifted by the same years. The average increase rate, thus calculated for the period 1981-2005, was 1.62(+0.03) for MLO data. This value is slightly smaller than those described above, due to interannual variations of CO₂ increase rate in the troposphere, but still larger than the stratospheric value. These facts imply that the concentration difference between the troposphere and mid-stratosphere gradually increased during the last 25 years. The interannual CO₂ variation in the mid-stratosphere was first discovered by our balloon measurements. The secular CO₂ increase in the mid-stratosphere is not monotonous, probably due to the propagation of interannual variations in tropospheric CO₂, being accompanied by time delay. The CO₂ anomalies in the mid-stratosphere, calculated as deviations from the second order polynomial trend and then shifted by -4.5 years, are fairly correlated with those in the troposphere. Such a correlation is found especially in CO₂ anomalies observed in the troposphere for a few years after 1991, which is known as the Pinatubo anomaly. This result suggests that the stratospheric air age can be newly estimated from the phase shift of the interannual CO₂ variations.

キーワード: 二酸化炭素, 成層圏, 長期トレンド

Keywords: CO₂, Stratosphere, Long-term trend

極成層圏雲タイプとオゾン破壊の関係

Relationship between polar stratospheric cloud types and ozone destruction

武田 真憲^{1*}, 中島 英彰², 田中 博³

Masanori Takeda^{1*}, Hideaki Nakajima², Hiroshi Tanaka³

¹ 筑波大学大学院生命環境科学研究科, ² 国立環境研究所, ³ 筑波大学計算科学研究センター

¹Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, ²National Institute for Environmental Studies,

³Center for Computational Sciences, University of Tsukuba

極成層圏雲 (PSC) は極域下部成層圏の気温が硝酸三水和物 (NAT) の凝結温度以下になると出現する雲粒子である。PSC は粒子表面上の不均一反応と粒子の重力沈降による硝酸の除去過程 (脱窒過程) によって極域春季のオゾン破壊を引き起こす。PSC は 3 つの主要なタイプ (Type Ia, Ib, II) に分類される。Type Ia は主に硝酸三水和物 (NAT) で構成される固相粒子, Type Ib は HNO₃, H₂SO₄, H₂O で構成される過冷却三成分液滴 (STS), Type II は H₂O を主成分とした氷粒子である。

一般的に、極成層圏雲の形成頻度と化学的なオゾン消失量の間には高い相関がある。しかしながら、Terao et al. (2012) は北極域冬季における平均の PSC 観測頻度が同等な 1996 年と 2000 年の平均オゾン変化率は異なっていたことを示している。この要因の 1 つとしては、PSC タイプがオゾン破壊に影響していると考えられる。したがって、本研究では PSC タイプとオゾン破壊率の関係を統計的に調査した。

PSC 観測データとして衛星 CALIPSO 搭載ライダー CALIOP の観測データを用いた。CALIOP で観測された PSC は 6 つのタイプ (Mix 1, Mix 2, Mix 2-enhanced, Ice, Wave-ice, STS) に分類される (Pitts et al. 2007, 2009, 2011)。Mix は NAT と STS が混合した PSC タイプを示す。2007 年冬季南極域と 2009/10 年冬季北極域に CALIOP で観測された PSC タイプのオゾン破壊率を衛星 Aura 搭載の MLS データを用いた衛星マッチ解析手法によって定量化した。その結果、両極域ともに PSC タイプ毎に平均オゾン破壊率が異なっていることが確認され、特に STS や Mix の平均オゾン破壊率が大きいことが示された。

さらに、PSC タイプ毎に粒子個数密度を表す後方散乱比とオゾン破壊率の関係を調査した。その結果、全ての PSC タイプにおいて後方散乱比とオゾン破壊率の間に正の相関があることが確認された。後方散乱比を独立変数とした単回帰直線を PSC タイプ毎に求めた結果、Mix PSC に対する回帰係数が最も大きかった。これは、NAT や STS を含む PSC が大規模なオゾン破壊に対して高いポテンシャルを持つことを示唆する結果であると考えられる。

キーワード: 極成層圏雲, オゾン破壊, 衛星マッチ解析, CALIPSO

Keywords: Polar stratospheric cloud, Ozone destruction, Satellite-Match technique, CALIPSO

春季の南極域で観測された南極ヘイズ Unusual aerosol enhancement in Antarctic troposphere during spring

原 圭一郎^{1*}, 林 政彦¹, 矢吹 正教², 塩原 匡貴³
Keiichiro Hara^{1*}, Masahiko Hayashi¹, Masanori Yabuki², Masataka Shiobara³

¹ 福岡大学理学部, ² 京都大学生存圏研, ³ 国立極地研究所
¹Fukuoka Univ., ²Kyoto Univ. RISH, ³NIPR

Antarctic region is isolated from the other continents with human activities. Nevertheless, high aerosol concentrations (Antarctic haze) were observed occasionally near surface at Syowa Station, Antarctica, during winter ? spring (Hara et al., JGR, 2010). Vertical distributions of the Antarctic haze were obtained in a few tethered-balloon-borne aerosol measurements and a lunched-balloon borne aerosol measurement at Syowa Station (Hara et al., ACP, 2011). Spatial features of the aerosol enhancement, however, have not been discussed well. This study aims to elucidate spatial features of aerosol enhancement (Antarctic haze) over Syowa Station by simultaneous measurements in near surface ~ upper atmosphere. Condensation particle counter (CPC), optical particle counter (OPC), and aethalometer were used to measure physical properties of aerosols near surface. Micro-pulse LIDAR (MPL) and aerosol sonde (balloon-borne OPC) were used to measure vertical distributions of aerosol particles over Syowa Station in this study. Balloon-borne aerosol measurements carried out under aerosol enhanced conditions near surface on 14 August and 6 September, 2012. High aerosol enhanced conditions near surface on 13-16 August, 2012 were observed immediately after storm condition. MPL measurements exhibited that aerosols were enhanced in ~ ca. 2.5 km on 13 - 16 August. In contrast, aerosol enhancement near surface on 5 - 7 September, 2012 appeared suddenly under the calm wind conditions. Although aerosol number concentrations near surface dropped markedly before the aerosol enhancement (00-15UT on 5 September), strong aerosol enhancement was found around 1-1.5 km since 05UT on 5 September in the MPL measurements. Although strong aerosol enhanced layer was distributed mostly in ~3km, high relative backscatter was observed occasionally in 3 ~ 4 km on 6 September. Here, we discuss aerosol features and distributions in the twice simultaneous measurements.

鉛化学種および同位体比による鉛排出源特定の試み Identification of Sources of Lead in the Atmosphere by its Speciation and Isotopic Composition

坂田 昂平^{1*}, 坂口 綾¹, 谷水 雅治², 高久 雄一³, 高橋 嘉夫¹

Kohei Sakata^{1*}, Aya Sakaguchi¹, Masaharu Tanimizu², Yuichi Takaku³, Yoshio Takahashi¹

¹ 広島大学大学院地球惑星システム学専攻, ² 独立行政法人海洋研究開発機構, ³ 公益財団法人環境科学技術研究所

¹Department of Earth and Planetary Systems Science, Hiroshima University, ²Kochi Institute, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ³Institute for Environment Sciences

1. Introduction

Recently, chemical reactions of major elements occurred in the atmosphere have been clarified, whereas those of trace metals have not. In particular, formation processes of Pb species, which is concerned to cause a health hazard, are still unclear. The identification of species and formation process of Pb is important to evaluate the human hazards. In addition, Pb species is expected to be used as a transboundary pollution tracer, because Pb species are different depending on each emission area. In this study, Pb species in size-fractionated aerosol sample were determined by XAFS spectroscopy together with the Pb isotope ratios to identify the formation mechanisms of Pb species in aerosol.

2. Sampling and Analysis Methods

Size-fractionated aerosol samples were collected by a high-volume cascade impactor in Higashi-Hiroshima. Sampling period was from 9th Oct. 2012 to 23th Oct. 2012 (2 weeks). Candidates of Pb source in atmosphere, fly ash of municipal solid incinerator (MSWI), heavy oil combustion, road dust and resuspension particles on the roof, were also collected. Weathered Hiroshima-granite, which is crustal material of the sampling area, was also collected as a possible natural Pb source. Lead species were determined by X-ray absorption fine structure (XAFS) spectroscopy. Heavy metals concentrations were measured by ICP-MS. Lead isotope ratios were determined by MC-ICP-MS with Tl doping technique after appropriate treatments.

3. Results and Discussion

Lead species were different between coarse and fine aerosol particles. Lead species in coarse aerosol particles were PbC_2O_4 , $2\text{PbCO}_3\text{-Pb(OH)}_2$, and $\text{Pb(NO}_3)_2$. Lead sources of coarse aerosol particles can be road dust because main Pb components in road dust were PbC_2O_4 and $2\text{PbCO}_3\text{-Pb(OH)}_2$. This result was also suggested by EFs of Cu and Sb which are good indicators of road dust. Lead nitrate in coarse aerosol, which was not contained in road dust, might be formed by chemical reaction of natural Pb with gas-phase HNO_3 in the atmosphere. In contrast, Pb species of fine aerosol particles were PbC_2O_4 , PbSO_4 , and $\text{Pb(NO}_3)_2$. Major Pb sources in fine aerosol particles are fly ash of MSWI and heavy oil combustion based on the determination of Pb species in these materials examined in this study. This result was also supported by size-distributions of Cd, Ni and V.

In our presentation, the results of Pb isotopic composition will be discussed together with Pb species in aerosol samples.

キーワード: エアロゾル, 鉛化学種, 鉛同位体比, X線吸収微細構造法, MC-ICP-MS

Keywords: Aerosol, Lead species, Lead isotope, XAFS spectroscopy, MC-ICP-MS

大陸から飛来するPM2.5に含まれる重金属成分の挙動～個別粒子レーザーイオン化質量分析とフィルター採取による化学分析～ Behavior of Heavy Metal-containing PM2.5 Transported from the Asian Continent :Single-particle MS and Chemical Analysis

秀森 丈寛^{1*}, 中山 智喜¹, 松見 豊¹, 薮下 彰啓², 大橋勝文³, 兼保 直樹⁴, 伊礼 聡⁵, 高見 昭憲⁵, 吉野 彩子⁶, 鈴木亮太⁶, 湯元弥生⁶, 畠山 史郎⁶

Takehiro Hidemori^{1*}, Tomoki Nakayama¹, Yutaka Matsumi¹, Akihiro Yabushita², Masafumi Ohashi³, Naoki Kaneyasu⁴, SATOSHI IREI⁵, Akinori Takami⁵, Ayako Yoshino⁶, Ryota Suzuki⁶, Yayoi Yumoto⁶, Shiro Hatakeyama⁶

¹ 名大 STE 研, ² 京大院工, ³ 鹿児島大院工, ⁴ 環境研, ⁵ 産総研, ⁶ 農工大院農

¹STE Lab, Nagoya Univ, ²Kyoto Univ, ³Kagoshima Univ, ⁴NIES, ⁵AIST, ⁶TUAT

東アジア地域では、冬季から春季にかけて偏西風により黄砂や大陸で発生した大気汚染物質が輸送される。エアロゾルによる気候への影響や人体への健康被害などの観点から、東アジアから輸送され日本に到達したエアロゾル粒子の起源や変遷過程を調査することが重要である。そこで、輸送されたエアロゾル粒子の影響を考察するため、2010年春季及び冬季に長崎県福江島にて、単一エアロゾル粒子のサイズと化学成分を実時間で同時に測定できるレーザーイオン化個別粒子質量分析を用いてPM2.5のエアロゾル観測を行った。また春季にはハイボリウムサンブラによる化学組成分析、ACMS、TEOM、微量ガス分析を併用し集中観測を行った。本発表では、健康被害に影響を及ぼす鉛を含むエアロゾルに注目し解析した結果を報告する。

春季36日間の観測で約9万個の、冬季12日間で約3万個の陽イオン質量スペクトルを取得し、そのうちの鉛イオン(Pb)を含む質量スペクトルは全体の2-4%を占めた。鉛を含むエアロゾルはカリウム、鉄、亜鉛などと内部混合していることがわかった。質量スペクトルパターンから分類すると4つの粒子タイプに分けることができた。その中でカリウム、鉄、亜鉛と内部混合した石炭燃焼由来と推測できる粒子タイプが最も多く40-60%程度を占めた。その他、石油燃焼由来と考えられるバナジウムを含むものは10-17%、産業廃棄物燃焼由来と考えられる錫を含むものは2.5-10%を占めた。土壌由来と考えられるアルミニウムやカルシウムと内部混合した粒子タイプは、18-30%を占めた。後方流跡線解析から中国大陸からの気塊が訪れたとき、含鉛エアロゾルの飛来が増加することが分かった。バナジウム以外の含鉛エアロゾルの経時変化は、黄砂の成分である酸化ケイ素類(SiO_3)の経時変化とよい一致を示した。これらのことから、飛来した含鉛エアロゾルの40-70%は人為的に発生し、中国大陸から輸送されてきたと考えられる。

キーワード: PM2.5, 長距離輸送, 個別レーザーイオン化質量分析計, 含重金属エアロゾル

Keywords: PM2.5, long-range transport, single-particle laser ionization mass spectrometer, Heavy metal-containing aerosols

火山起源エアロゾル中の鉄の溶解性および化学種の解析 Solubility of iron in aerosols of volcanic origin with iron speciation analysis

宮原 彩^{1*}, 高橋 嘉夫¹, 古谷 浩志², 植松 光夫²

Aya Miyahara^{1*}, Yoshio Takahashi¹, FURUTANI, Hiroshi², Mitsuo Uematsu²

¹ 広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻, ² 東京大学大気海洋研究所

¹Department of Earth and Planetary Systems Science, Graduate School of Science, Hiroshima University, ²Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo

In high nutrient low chlorophyll (HNLC) region, which covers 20% of the world oceans, growth of phytoplankton is limited by iron (Fe) concentration (Martin and Fitzwater, 1988). It has been suggested that aerosols can be an important supply source of Fe to the HNLC region. The solubility in ocean of Fe in aerosols, in turn, depends on its chemical species, but the Fe species in the aerosols have not been fully clarified. Therefore, the aim of this study is to determine the Fe chemical species and its solubility in aerosols of various sources. In particular, there have been few studies on the Fe speciation and solubility in aerosols of volcanic origin. Thus, marine aerosol samples of volcanic origin were examined in this study. The aerosol samples were collected from the Northwestern Pacific during research cruise of Hakuho-Maru (KH-08-2) in summer in 2008. As a result of backward trajectory analysis for the sample (Leg.1-5) when high sulfate concentration was detected, it was suggested that the aerosol samples was supplied from the Okmok volcano in the Aleutian Islands of Alaska as volcanic ashes. Hence, the volcanic ashes (< 20, 20-32, and 32-250 micron) of Okmok volcano received from Alaska Volcano Observatory were also studied as well as yellow dusts (CJ-1, CJ-2, and Gobi Kosa Dust) for comparison.

The Fe/Al ratio in the Leg.1-5 sample was identical to that of the volcanic ash sample, showing that the aerosols collected during the Leg.1-5 is supplied from the eruption of the Okmok volcano, which reinforces the suggestion by the backward trajectory analysis. Sulfur K-edge XANES showed that sulfide originally contained in the volcanic ash changed into sulfate possibly due to the alteration during the transport to the Northwestern Pacific. Iron K-edge XANES analysis showed Leg.1-5 contained ferrihydrite (60%), magnetite (28%), and iron(II) sulfate (12%), whereas volcanic ashes (< 20 micron) contained augite (57%), fayalite (25%), and pyrite (18%). CJ-1 and CJ-2 contained illite, ferrihydrite, and chlorite, while Gobi Kosa Dust contained illite, ferrihydrite, and hematite. In addition, the average valence of Fe determined by pre-edge fitting of Fe K-edge XANES showed that the ratio of ferric iron of Leg.1-5 (average valence of Fe = 2.4) is higher than that of volcanic ashes (average valence of Fe = 2.1). These results showed aerosols of volcanic origin released into the atmosphere were altered and oxidized while being transported.

The total Fe concentration (T-Fe) in samples after acid decomposition and the dissolved Fe concentration (D-Fe) in samples extracted by MQ water or simulated seawater (pH 8) were determined by ICP-AES. The Fe solubility (Fe_s) here was defined as the percentage of Fe released in the solution after 24 h: Fe_s (%) = (D-Fe/T-Fe) x 100. The results showed that the solubility to seawater (Fe_s -SW) of Fe contained in the aerosol samples of volcanic origin is larger than that of yellow dusts by a factor of more than 1000. Generally speaking, Fe solubility depends on the valence of Fe, that is, the solubility decrease with the increase in the ratio of ferric iron for ferrous iron. In this study, however, the Fe solubility of the aerosol samples is higher than that of volcanic ashes mainly due to the formation of iron(II) sulfate, highly soluble species, as shown in the XAFS spectra. This is why volcanic ashes which originally contained insoluble Fe changed into the aerosols with high soluble Fe content.

Although the average emission of fine volcanic ash (176-256 Tg/yr; Durant et al., 2010) into the atmosphere is less than that of annual terrigenous dust load (1000-3000 Tg/yr; Tegen and Schepanski, 2009) by a factor of 1/10, the soluble Fe content in the aerosols supplied as volcanic ashes cannot be underestimated due to the very high soluble Fe content in the aerosols of volcanic origin.

Keywords: Fe, speciation, solubility, aerosol, volcanic ash, dust

西部北大西洋で採取した海洋エアロゾル中の有機エアロゾルの組成と濃度分布 Molecular distributions of organic aerosols collected over the western North Atlantic

河村 公隆^{1*}, 小野かおり¹, 立花英里¹, トリシュ クイン²
Kimitaka Kawamura^{1*}, Kaori Ono¹, Eri Tachibana¹, Trish Quinn²

¹北海道大学低温科学研究所, ²NOAA PMEL

¹Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, ²NOAA PMEL

2012年8月20日から27日の期間中に、NOAA R/V Ronald H. Brownの研究航海(ボストンからバーミューダ島、WACS for Western Atlantic Climate Study)にて、ハイボリュームサンプラーと石英フィルターを用いて、海洋エアロゾル試料(n=5)を採取した。OC/EC炭素計、イオンクロマトグラフ、GC/FID、GC/MSを用いてエアロゾル試料を分析し、それぞれ、有機炭素(OC)・元素炭素(EC)、主要無機イオン、低分子ジカルボン酸・ケト酸・ α -ジカルボニル、糖類・SOAトレーサー・脂肪酸などを測定した。有機炭素(OC)濃度(範囲、0.19-1.89 $\mu\text{g m}^{-3}$)は、米国東海岸から外洋に向けて、急激に減少した。EC濃度(0.000-0.001 $\mu\text{g m}^{-3}$)は全ての試料で低い値を示した。Na+濃度(0.61-2.2 $\mu\text{g m}^{-3}$)は、外洋で高い値を示したのに対し、SO₄²⁻濃度(1.5-2.0 $\mu\text{g m}^{-3}$)は、全試料で高い値であった。また、シュウ酸を主成分とする低分子ジカルボン酸(C2-C12)を検出し、その濃度(32-340 ng m⁻³)は沿岸域から外洋にかけて減少することがわかった。更に、レボグルコサンなどバイオマス燃焼のトレーサー、イソブレン SOA (Secondary Organic Aerosol) トレーサー、モノテルペン SOA トレーサー、花粉(sucrose, fructose)および菌類(arabitol, mannitol, trehalose)のトレーサーである糖化合物も検出した。それらの濃度も、陸に近い海域で高く、外洋で低い傾向を示した。高等植物由来の高分子脂肪酸(C20-C30)も、同様の傾向を示した。

キーワード: 海洋エアロゾル, 有機物, 低分子ジカルボン酸, SOA トレーサー, バイオマス燃焼トレーサー, 花粉・孢子トレーサー

Keywords: marine aerosols, organic compounds, LMW dicarboxylic acids, SOA tracers, Biomass burning tracers, pollen and fungal spore tracers

化学イオン化質量分析法を用いたイソプレンのオゾン酸化による二次有機エアロゾル生成機構の考察

Investigation on the SOA formation mechanism in isoprene ozonolysis by chemical ionization mass spectrometry

猪俣 敏^{1*}, 廣川 淳², 坂本 陽介², 谷本 浩志¹, 佐藤 圭¹, 奥村 智憲³, 東野 達³

Satoshi Inomata^{1*}, HIROKAWA, Jun², Yosuke Sakamoto², Hiroshi Tanimoto¹, Kei Sato¹, OKUMURA, Motonori³, TOHNO, Susumu³

¹ 国立環境研究所, ² 北海道大学大学院地球環境科学研究院, ³ 京都大学大学院エネルギー科学研究科

¹National Institute for Environmental Studies, ²Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, ³Graduate School of Energy Science, Kyoto University

イソプレンは大気中に放出される揮発性有機化合物 (VOC) の中で最も多く放出され、大気中での酸化過程を通して多くの二次有機エアロゾル (SOA) を生成する。イソプレンの酸化過程には3種類考えられる。その1つはOHラジカルとの反応であるが、日中で主要な酸化過程であり、これまで様々な研究グループによりSOA収率や生成機構について調べられている。2つ目がNO₃との反応であるが、これは夜間に主に起きる。3つ目がオゾンとの反応であるが、SOA収率は他の酸化過程より小さいことが知られているが、オゾン反応は、昼夜問わず起こりえ、他の酸化過程と相互に作用しうると考えられるので、オゾン反応を理解しておくことは重要と考える。また、SOAは、気候変動、大気質、人の健康に影響を及ぼすと考えられており、その影響を定量的に評価していくには、(1) VOCの大気酸化過程で生成する半揮発性の有機化合物の特定、(2) その半揮発性有機化合物 (SVOC) のガス相・粒子相分配、(3) SOA中の成分の把握及び粒子内での変質、などの知見が必要と考えられている。そこで我々は、イソプレンのオゾン酸化で生成する気相・粒子相の半揮発性の有機化合物の生成物を化学イオン化質量分析法を用いて検出することで、イソプレンのオゾン酸化によるSOA生成機構解明を目指した。

実験は、国立環境研究所のスモッグチャンバー内 (内容積6m³) で、イソプレンとオゾンを反応させ行った。イソプレン、オゾンの初期濃度はそれぞれ2ppmv、4ppmvとし、反応生成物を陽子移動反応質量分析法 (PTR-MS) で検出した。また、2時間反応させた後、生成したSOAをPTFEフィルターに捕集して、そのフィルターをPTR-MS装置のインレット部分に配置し、フィルターホルダーごと、25 から85 まで段階的に温度を上げ、揮発してくる有機成分をPTR-MSで検出した。本反応系では、OHラジカルが再生するため、OH捕捉剤なしの場合とOH捕捉剤としてCO、シクロヘキサンを添加した同様の実験を行った。また、生成物の帰属のため、負イオン化学イオン化質量分析法 (NI-CIMS) でも、同様の実験を行った。本実験は、北海道大学で、1m³ のテフロン製バックで、スモッグチャンバー実験と同じ条件で行った。

NI-CIMSで得られた気相生成物は、クリーギー中間体 (CH₂OO、分子量46) が酸化生成物のギ酸、メタクリル酸、ピルビン酸に複数付加したオリゴマーで帰属された。生成したオリゴマーはヒドロペロキサイドであるので、PTR-MSでは有機化合物Mに陽子が付加した[M+H]⁺が検出されるが、ヒドロペロキサイドの場合、[M+H]⁺からH₂Oが抜けたイオンが強く見られていると考えられるため、その補正をしてみると、NI-CIMSの結果と良く一致することがわかった。一方、粒子相成分を分析してみると、NI-CIMSでは気相と同様の生成物が見られたため、カルボン酸にクリーギー中間体が付加したオリゴマーが粒子成分と考えられ、これらが気相・粒子相の両方に見られたことから、SOA生成の鍵を握る化合物であるがわかった。粒子相成分のPTR質量スペクトルには、NI-CIMSで見つかったオリゴマー以外のシグナルも検出された。それらは30や70の間隔があることを見出し、これらはホルムアルデヒド、メタクロレインの分子量に相当することから、アルコールとこれらアルデヒドが反応して生成するヘミアセタールと考えられた。これらのシグナルは粒子相でしか見られなかったことから、粒子相での反応で生成していると考えられた。また、気相・粒子相で質量スペクトルを取得したので、それらを定量化することで、気相・粒子相の分配を質量数ごとに見積もることができた。その値を用いると、平衡を仮定すると、飽和蒸気圧を見積もることができ、検出されたオリゴマー、ヘミアセタールはおおよそ10⁻⁴ Torrの飽和蒸気圧であることが見積もられた。これはSOA収率曲線を揮発性の異なる4つの生成物を仮定したモデルでフィットして得られた結果と整合した。

キーワード: イソプレン, オゾン分解, 化学イオン化質量分析法, 陽子移動反応質量分析計, 二次有機エアロゾル, クリーギー中間体

Keywords: isoprene, ozonolysis, chemical ionization mass spectrometry, proton transfer reaction mass spectrometer, secondary organic aerosol, Criegee intermediate

エチレンのオゾン酸化反応における気相及び粒子相の負イオン化学イオン化質量分析計を用いた成分分析

Analysis of gas and particle phase products in the ethylene ozonolysis using negative ion chemical ionization mass spect

坂本 陽介^{1*}, 廣川 淳¹, 猪俣 敏²

Yosuke Sakamoto^{1*}, HIROKAWA, Jun¹, Satoshi Inomata²

¹ 北海道大学大学院地球環境科学研究科, ² 国立環境研究所地球環境研究センター

¹Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, ²Center for Global Environmental Research, National Institute for Environmental Science

オゾン - アルケン反応は都市域の大気汚染プロセスで重要であり、オゾンとアルケン両方の重要な消失過程である。また、オゾン - アルケン反応はクリーギー中間体と呼ばれる反応性の比較的高い中間体を生成し、その一部が分解することにより OH、HO₂、RO₂ などのラジカル種を生成することが報告されている。特にオゾン - アルケン反応による OH 生成は夜間の大気 OH の重要な生成源となることが報告されている。更に、オゾン - アルケン反応が二次有機エアロゾル (SOA) を生成する事も報告されている。しかし、その重要性にもかかわらず、クリーギー中間体の反応の詳細を始めとして、オゾン - アルケン反応には未だ不明な点が多い。エチレンは最も単純な構造を持つアルケンであり、石油化学工業において広く基礎原料として用いられ、大きな大気への放出量をもつ揮発性炭化水素化合物の一つである。しかし、エチレンでさえ、他のアルケンと同様、そのオゾン酸化過程は十分に理解されていない。

負イオン化学イオン化質量分析法 (negative ion chemical ionization mass spectrometry, NI-CIMS) はカルボン酸、ヒドロペルオキシドなどの有機化合物を少ないフラグメントで選択的かつ高感度に測定することのできる手法である。そこで、本研究ではエチレン - オゾン反応の理解を進める目的で、テフロンバッグを用いた室内実験において NI-CIMS を反応生成物分析に応用した。

エチレン - オゾン反応の気相生成物分析を行ったところ、ギ酸やヒドロペルオキシメチルホルム酸 (hydroperoxymethyl formate) などの過去に報告例のある化学種が観測された。加えて、クリーギー中間体をユニットとしてオリゴマー化したヒドロペルオキシドが観測された。エチレンのオゾン酸化において SOA の生成が確認されたため、NI-CIMS を用いた粒子相成分分析も行った。粒子相成分としても、クリーギー中間体をユニットとしてオリゴマー化したヒドロペルオキシドが観測された。これは、気相で生成したオリゴマーが粒子相に取り込まれたものであると考えられる。また、気相では観測されなかったピークも多数観測され、粒子相での反応が示唆された。

一方、クリーギー補足剤としてメタノールを添加し、エチレンのオゾン酸化反応を調べたところ、SOA の生成と、気相のオリゴマー生成が大きく抑制されることが観測され、クリーギー中間体がオリゴマーと SOA 生成に大きく寄与することが明確に示された。本研究の結果から、オリゴマーの生成機構として、ヒドロペルオキシドとクリーギー中間体の反応により長鎖のヒドロペルオキシドを生成し、そこに更に逐次的にクリーギー中間体が付加する反応機構を提案した。

キーワード: オゾン分解, エチレン, SOA, ヒドロペルオキシド, オリゴマー化反応

Keywords: ozonolysis, ethylene, SOA, hydroperoxide, oligomerization

電子顕微鏡を使ったすす粒子の混合状態

Mixing states of soot particles from transmission electron microscopy: their mixing state, size, shape, and composition

足立 光司^{1*}, 財前 祐二¹, 五十嵐 康人¹
Kouji Adachi^{1*}, ZAIZEN, Yuji¹, Yasuhito Igarashi¹

¹ 気象研究所

¹ Meteorological Research Institute

Mixing state, size, shape, and composition of atmospheric aerosol particles influence their climate and health effects. Transmission electron microscopy (TEM) can magnify the particles and reveal the internal structures at a single particle scale. We study aerosol particles collected from urban mountain sites in Japan. In this study, we focused on soot particles and their mixing states, shape, size, and compositions of the coating materials, if any, since they absorb light and have great influence on the climate.

Together with scanning transmission electron microscopy (STEM), which is one of the technique of TEM, and energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS), which measures the composition of interest within TEM, we analyze the compositions and mixing states of soot particles as well as elemental distribution within individual particles. We use the STEM-EDS system that automatically measures sizes, shape factors, and compositions of all aerosol particles within a field of view (~300 particles). The results suggest that ~75% of soot particles were coated (internal mixture) at the mountain site (remote area) and the larger aerosol particles include the more soot particles. At the mountain site, soot particles were mostly coated by ammonium sulfate. On the other hand, soot particles from urban site were coated by both organic aerosol and sulfate, and the ratio varied depending on the time of the day. These data are useful to understand the optical properties, atmospheric lifetime, and climate effects of soot particles and to improve climate modeling.

キーワード: エアロゾル, 電子顕微鏡

Keywords: aerosol, electron microscope

名古屋で観測された炭素質エアロゾルの光吸収特性 Light absorption properties of carbonaceous particles in Nagoya

中山 智喜^{1*}, 池田 裕香¹, 瀬戸口 義貴², 澤田 祐希¹, 川名 華織², 持田 陸宏², 松見 豊¹

Tomoki Nakayama^{1*}, Yuka Ikeda¹, Yoshitaka Setoguchi², Yuki Sawada¹, Kaori Kawana², Michihiro Mochida², Yutaka Matsumi¹

¹ 名古屋大学太陽地球環境研究所・理学研究科, ² 名古屋大学環境学研究科

¹Solar-Terrestrial Environment Laboratory and Graduate School of Science, Nagoya University, ²Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

大気エアロゾルは、太陽放射を散乱・吸収するため地球大気の放射収支に影響を与えている。代表的な光吸収性エアロゾルであるブラックカーボン (BC) 粒子は大気中で、硫酸塩や有機物に被覆されると、被覆成分がレンズとして働き、光吸収量が増加 (レンズ効果) すると予想されている (Bond ら [2006] 他)。また、紫外から短波長可視領域に光吸収性を持つ有機エアロゾル (ブラウンカーボン) が存在し、放射収支に影響を与えている可能性も指摘されている (中山 [2012] 他)。しかしながら、従来のフィルター吸収法では、フィルター繊維上での変質や多重散乱の影響により BC の被覆やブラウンカーボンの光吸収への寄与を推定するのは困難であった。そこで、本研究ではエアロゾルが浮遊した状態で吸収係数を直接計測できる三波長光音響分光装置 (PASS-3) を用いてエアロゾル光吸収係数の波長依存性を測定し、BC の被覆やブラウンカーボンによる光吸収への寄与の推定を試みた。

観測は、2011年8月および2012年1月に名古屋大学東山キャンパスにおいて行った。観測では、外気を拡散ドライヤとPM1サイクロンに通した後、ヒーターに導入し、温度を30分毎に、25, 100, 300 (夏季) もしくは25, 300, 400 (冬季) に変化させて測定を行った。PASS-3装置を用いて、405, 532 および781 nm における、吸収および散乱係数を測定した。また、EC/OC計 (熱分離光学補正法) により元素状炭素 (EC) および有機性炭素 (OC) の測定を行った。さらに、CO やCO₂ 等の気相成分の測定も行った。

得られた吸収係数の波長依存性およびインレット温度による違いから、レンズ効果による光吸収の増加量およびOCによる光吸収の寄与を見積もった。粒子を300 (もしくは400) に加熱すると、BCを被覆しているOCや無機塩の大部分は揮発すると考えられるため、781 nmではOCによる光吸収はないと仮定すると、室温と加熱時の吸収係数の比から、レンズ効果による光吸収の増加率を見積もることができる。その結果、レンズ効果による光吸収量の増大は、夏季冬季ともに10%以下と小さいことがわかった。本研究の結果は、最近Cappaら[2012]により報告された米国カリフォルニアでの観測結果と整合的であり、レンズ効果による光吸収の増大は、コア・シェルMie散乱理論から予想される結果に比べて小さいことが示唆された。一方、レンズ効果による光吸収の増加率は波長により変化しないと仮定し、405nmにおける全光吸収に対するOCの光吸収の寄与を見積もったところ、夏季においては、300 で揮発するOCの光吸収の寄与は5%以下とほとんどないのに対し、冬季には、300(400) で揮発するOCの光吸収が、 $12 \pm 9(20 \pm 12)$ %と有意な寄与を有することが分かった。また、CO/CO₂比が大きいときに、OCの質量吸収断面積が大きくなる傾向が見られたことから、暖房の使用や野焼きなどに伴う不完全燃焼過程により排出されたOCが、観測された光吸収に寄与している可能性が示唆された。

文献

Bond et al., J. Geophys. Res., 111, D202011 (2006).

Cappa et al., Science, 337, 1078-1081 (2012).

中山智喜, エアロゾル研究, 27, 13-23 (2012).

キーワード: エアロゾル光学特性, 実大気観測, ブラックカーボン, レンズ効果, ブラウンカーボン, 気候変動

Keywords: Aerosol optical properties, Ambient measurement, Black carbon, Lensing effect, Brown carbon, Climate change

黒色炭素の変質と長距離輸送：化学・エアロゾル気候モデルを用いた全球シミュレーション

Aging and long-range transport processes of black carbon: global simulation with a chemistry-aerosol climate model

須藤 健悟^{1*}, 和田 明久¹, 竹村 俊彦²

Kengo Sudo^{1*}, Akihisa Wada¹, Toshihiko Takemura²

¹ 名古屋大学大学院環境学研究科, ² 九州大学応用力学研究所

¹Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, ²Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

現状の全球エアロゾルモデルでは、黒色炭素（BC）の疎水性から親水性への変質過程や降水除去過程の取り扱いに大きな不確実性が存在し、概して、極域など遠隔地域でのBC濃度を大きく過小評価する傾向にある（IPCC/ACCMPのモデル間相互比較など）。その結果、BCの大気加熱による気候影響についても依然として大きな不確実性が残存している（Kerr, Science, 2013）。本研究では、全球化学・エアロゾルモデルMIROC-ESM-CHEMを用いて、BC全球シミュレーションの改良を行い、BCの放射強制力推定の見直しを行った。これまでの研究（須藤ら、2011）により、硫酸によるBC表面の被覆過程を表現する簡易的な変質スキーム（Liu et al., 2011）が導入され、南極・昭和基地におけるBCの濃度や季節性を再現することに成功している。しかしながら、この方法では、北極域を含む北半球高緯度域で、観測されたBC濃度や季節性をうまく再現できていないことが確認された。本研究では、BCの変質過程として、硫酸ガスだけでなく、揮発性炭化水素類（VOCs）の酸化に伴う有機成分も考慮し、これらの凝縮によるBC表面の被覆を陽に計算するスキームを導入した。さらに、雪氷面上への沈着過程や、降水除去過程（CCN活性度）およびBCのエミッションの季節性などについても改良を行った。この結果、北極域についても、定量的にも観測に近いBCの濃度・季節性が計算されることが確認された。北極域のBCについては、冬季～春季では化石燃料燃焼が、夏季ではシベリア域のバイオマス燃焼が、それぞれ主要な起源であることが、本モデル計算により示された。また、改良されたモデルにより推定されたBCの全球平均放射強制力は 0.83 W m^{-2} となり、改良前のモデルによる推定値 0.41 W m^{-2} や、IPCCのモデル平均値に比べて、BCが実際には約2倍の強さの加熱効果を及ぼしている可能性が示唆された。

キーワード: 黒色炭素, スス, 変質, 長距離輸送, 放射強制力, 全球モデル

Keywords: black carbon, soot, aging, long-range transport, radiative forcing, global model

3次元タグモデルを用いた西太平洋域におけるブラックカーボンの季節変動と発生源寄与

Seasonal variations of Asian black carbon outflow to the Pacific using a tagged three-dimensional model

松井 仁志^{1*}, 小池 真¹, 近藤 豊¹, 大島 長², 茂木 信宏¹, 金谷 有剛³, 高見 昭憲⁴, Martin Irwin¹

Hitoshi MATSUI^{1*}, Makoto Koike¹, Yutaka Kondo¹, Naga Oshima², Nobuhiro Moteki¹, Yugo Kanaya³, Akinori Takami⁴, Martin Irwin¹

¹ 東京大学大学院理学系研究科, ² 気象研究所, ³ 海洋研究開発機構, ⁴ 国立環境研究所

¹University of Tokyo, ²Meteorological Research Institute, ³Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ⁴National Institute for Environmental Studies

The Community Multiscale Air Quality model with a source and process tagged method (CMAQ/PASCAL) was used to understand source regions and types (anthropogenic (AN) and biomass burning (BB)) of Asian black carbon (BC) outflow to the Pacific during 2008 - 2010. The model calculations generally reproduced absolute concentrations and temporal (seasonal, monthly, and day-to-day) variations of BC mass concentrations observed by both surface and aircraft measurements in outflow regions in East Asia. These model calculations show that both the total eastward flux and transport efficiency (fractions transported from sources) of BC are the highest during spring (26 kg s⁻¹ and 33% at 150E) and the lowest during summer (8 kg s⁻¹ and 20% at 150E). These seasonal variations of Asian BC outflow are generally controlled by transport patterns (monsoons, frontal passages, and convection) and emissions from the following three sources: (1) AN emissions from China (China AN), (2) BB emissions from Southeast Asia and South China (SEA BB) during February - April, and (3) BB emissions from Siberia and Kazakhstan (Siberia BB) during April - July. In our calculations, China AN dominates the total eastward BC flux on period average (61%, 17%, and 6% from China AN, Siberia BB, and SEA BB, respectively, at 150E). On the other hand, SEA and Siberia BB account for 30 - 50% of the total eastward BC flux (150E and 175E) during spring and summer, and they intensify seasonal contrast of Asian BC outflow flux. BC from Siberia BB is also found to be transported to the Pacific more efficiently than that from other sources. Although the amounts of BB emissions are currently highly uncertain, our results suggest that the control of Siberia BB will be important in terms of the trans-boundary transport of BC to the Pacific, North America, and the Arctic.

キーワード: ブラックカーボン, 領域3次元モデル, タグモデル, 東アジア, 発生源寄与, バイオマス燃焼

Keywords: black carbon, regional three-dimensional model, tag model, East Asia, source contribution, biomass burning

春季東アジア域におけるブラックカーボンの上方輸送過程 (A-FORCE 航空機観測) Vertical transport mechanisms of black carbon over East Asia in spring during the A-FORCE aircraft campaign

大島 長^{1*}, 小池 真², 近藤 豊², 松井 仁志², 茂木 信宏², 中村 尚³, 竹川 暢之³, 北 和之⁴

Naga Oshima^{1*}, Makoto Koike², Yutaka Kondo², Hitoshi MATSUI², Nobuhiro Moteki², Hisashi Nakamura³, Nobuyuki Takegawa³, Kazuyuki Kita⁴

¹ 気象研究所, ² 東京大学大学院理学系研究科, ³ 東京大学先端科学技術研究センター, ⁴ 茨城大学理学部

¹Meteorological Research Institute, ²Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo, ³Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo, ⁴Faculty of Science, Ibaraki University

ブラックカーボン (BC) エアロゾルは太陽放射を効率的に吸収し、大気を加熱し、また氷床等の融解を促進することにより、地球の放射収支に大きな影響を及ぼす。大気境界層から自由対流圏への BC の上方輸送過程は、BC の広域的な空間分布および加熱源分布を決定する。従って BC の上方輸送過程を理解することは、エアロゾルの気候影響を評価する上で非常に重要であるが、その理解は未だ不十分である。これらの点を解明するために、2009 年 3-4 月に A-FORCE (Aerosol Radiative Forcing in East Asia) 航空機観測が黄海・東シナ海上空で実施され、計 120 回の BC の鉛直分布が高度 0-9 km において測定された。本研究では、A-FORCE 航空機観測と領域三次元化学輸送モデル (WRF-CMAQ) を組み合わせることで、春季東アジア域における BC の上方輸送過程とその輸送経路を理解することを研究目的とした。

既存の CMAQ モデルはエアロゾルの湿性沈着過程の取り扱いで、雲底下と雲中での降水に伴うエアロゾルの除去過程の違いを区別しない。本研究ではこれらの除去過程の違いを区別するようなモデルへと改良した。本研究では、水平解像度 81km × 81km、鉛直 21 層の東アジア領域においてモデル計算を実施し、2009 年 3-4 月の計算結果を使用した。またモデル計算において、湿性沈着過程の有無の差から、BC の輸送効率 (湿性沈着過程に伴い大気中から除去されずに残った BC の比率) の推定も行った。

航空機で観測された空気塊に対して、モデル計算結果と観測結果との比較を行った。その結果、モデルは観測された BC 濃度を自由対流圏中で過大評価したが、相対的な高度分布の変化をよく再現した。またモデルは、観測から推定した BC の輸送効率の高度分布や BC の降水による除去の傾向を良い精度で再現した。

検証されたモデル計算結果を用いて、春季東アジア域 (2009 年 3 月 20 日 - 4 月 30 日) における BC の輸送過程について調べた。大気境界層内 (高度 700hPa 以下) における BC の水平質量フラックスを調べたところ、中国華北域と中国華中内陸域 (山岳地帯付近) において、顕著な水平フラックスの収束がみられた。高度 700hPa 面における BC の上向き質量フラックスを調べたところ、水平フラックスが収束していた華北域と華中内陸域において、上向きフラックスの極大値がみられた。これらの上向きフラックスを平均項 (40 日間平均) と擾乱項 (40 日間平均からの偏差) とに区別して解析をした結果、華北域の上方輸送では擾乱項が卓越し、華中内陸域の上方輸送では平均項が卓越した。中国華北域では主に低気圧活動に伴い BC が上方輸送されていたのに対し、華中内陸域では主に地形性の上昇流と積雲対流活動に伴い BC が上方輸送されていたことが明らかとなった。また、BC の湿性沈着量は、華中内陸域の上方輸送域において最大であった。下層における水蒸気の供給によって引き起こされる降水活動の緯度方向の違いが、BC の空間分布や輸送効率を決定する上で重要な役割を果たしていたことが示唆された。

東経 140 度面における BC の東向き質量フラックスについて調べた結果、中緯度域 (北緯 35-50 度) の下部対流圏中と亜熱帯域 (北緯 20-35 度) の中部対流圏中において、東向きフラックスの極大値がみられた。本研究期間中では、中国北部で排出され華北域で上方輸送された BC が主に下部対流圏中で東方へ輸送されていたのに対し、中国南部や南アジアで排出され華中内陸域で上方輸送された BC が主に中部対流圏中で東方へ輸送されていたことが明らかとなった。

キーワード: エアロゾル, ブラックカーボン, 物質輸送, 湿性沈着, 東アジア, 領域エアロゾルモデル

Keywords: Aerosol, Black carbon, Transport, Wet deposition, East Asia, Regional-scale aerosol model

コロナ(光冠)画像を用いたチェンバー内の雲粒粒径の高精度測定

Corona-imaging colorimetric method for accurate measurement of the size of water droplets in an expansion chamber

青木 大佳^{1*}, 茂木 信宏¹, 近藤 豊¹

Hiroka Aoki^{1*}, Nobuhiro Moteki¹, Yutaka Kondo¹

¹ 東京大学大学院理学系研究科

¹ Graduate School of Science, The University of Tokyo

Expansion chamber を用いた実験により、雲粒の生成・成長に関するエアロゾルと雲の微物理過程を検証するためには、チェンバー内で凝縮成長する雲粒集団の粒径を正確かつ高精度で測定することが極めて重要である。本研究では、雲粒集団に白色光を照射することで生成するコロナ(光冠)の画像を用いて、雲粒の粒径を高精度で測定する新しい手法(CIC: Corona-Imaging Colorimetry)を開発したので報告する。本手法ではコロナをデジタルカメラにより撮影し、撮像から抽出したRGB値を色を表現する標準パラメータ(三刺激値)に変換する。この測定値とMie理論を用いたモデル計算結果を比較することにより、雲粒の粒径を推定する。

本手法の評価実験では、水槽に懸濁した粒径既知のポリスチレンラテックス粒子に対して、2%以下の確度で粒径を推定できることが確認された。チェンバー内で凝縮成長する雲粒粒径の時間変化についても測定できることが確認された。本手法は技術的にシンプルであり、粒径が10 μm以上の雲粒に対して凝縮成長のある瞬間毎の粒径を正確に測定できる。そのような点において、レーザー光源を含む特別に設計された光学系を必要とし、ある瞬間の粒径を推定するためにそれまでに経た凝縮成長過程のすべてを追跡する必要のあるConstant Angle Mie Scattering (CAMS) methodよりも優れている。

発表では、この粒径推定手法の理論的側面、色の定量的取り扱いの詳細を議論する。

キーワード: コロナ(光冠), 雲粒, 粒径測定, チェンバー, 凝縮

Keywords: Corona, Cloud Droplets, Sizing, Chamber, Condensation

下層大気鉛直安定度とエアロゾルの雲物理への影響：東シナ海における雲粒子濃度の増大メカニズム

Influences of near-surface stratification for aerosol impact on clouds over the East China sea

小池 真¹, 竹川 暢之^{2*}, 茂木信宏¹, 近藤 豊¹, 中村 尚²

Makoto Koike¹, Nobuyuki Takegawa^{2*}, Nobuhiro Moteki¹, Yutaka Kondo¹, Hisashi Nakamura²

¹ 東大院・理, ² 東大・先端研

¹Graduate School of Science, The University of Tokyo, ²Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo

2009年の春季東シナ海の非降水性層積雲について、雲底下のエアロゾル数濃度と雲底に近い高度での雲物理量を航空機から直接観測した。本研究の目的は、この観測データからエアロゾルの雲粒子濃度への影響が東シナ海の温暖な SST (黒潮) によりどのように変化するか明らかとすることである。

本研究では雲水量 (LWC) が 0.01 g/m³ 以上のデータを雲内と判定し、半径 1.5μm 以上の粒子を雲粒とした。

(1) エアロゾル数濃度と雲粒子濃度の関係

雲粒子濃度はエントレインメントの影響によって変化するため、本研究ではその影響を受けていない湿潤断熱的な状態での雲粒子の推定値として上位 5% の雲粒子濃度を用いた。この雲粒子濃度と雲底下の乾燥直径 130nm 以上のエアロゾルの数濃度と比較したところ、正の相関が見られた。この結果は東シナ海の雲粒子濃度がエアロゾルの影響を受けていることを明確に示すものである。

(2) SST の影響

より詳細に見てみると、エアロゾル数濃度が同程度でも雲粒子濃度が 2 倍程度変化していることがわかる。そこで同じエアロゾル数濃度に対する雲粒子濃度の増大割合を調べたところ、925hPa における気温 (T950) と海表面温度 (SST) との差 (SST-T950) と正の相関を持つことが分かった。すなわち下層大気鉛直安定度の指標である SST-T950 が大きく、下層大気鉛直安定度が低いほど、同じエアロゾルに対して雲粒子濃度が高いことが明らかとなった。これは SST-T950 が高くなると、SST の大気加熱によって生じる対流において上昇流速が高くなり、その大気中での過飽和度が高まり、より活性化されにくい (一般的により小さな) エアロゾルまで雲粒へと活性化されたためと考えられる。

(3) SST の影響の領域的特性

SST-T950 が高いデータは SST の高い黒潮領域において観測されていた一方、SST-T950 が低いデータは SST の低い黄海上で観測されていた。A-FORCE で観測された春季の黄海・東シナ海には、大陸からの寒気移流がたびたびおこる。この結果、SST の低い黄海においては、SST-T950 が低下する一方、SST の高い黒潮上においては高くなる。この北西季節風は同時に大陸から高濃度の人為起源エアロゾルを輸送する。この結果、エアロゾル濃度の増大と高い SST-T950 の両方の効果により、雲粒子濃度が増大する可能性が示唆された。SST-T950 が高い黒潮上では雲頂高度も高い一方、低い黄海では雲頂高度が低く霧状となっていた。本研究の結果は、下層大気鉛直安定度の指標 SST-T950 により雲のマクロな様相 (雲頂高度、層厚、鉛直積算雲水量) とミクロな雲物理量 (雲粒子濃度) の両方に影響している可能性が初めて示したものである。

キーワード: エアロゾル, 雲, SST, 黒潮, 東アジア

Keywords: aerosol, cloud, SST, Kuroshio Ocean current, East Asia

2012年秋季に能登半島で観測された雲凝結核の特性 Characteristics of cloud condensation nuclei observed at Noto peninsula, Japan, in autumn 2012

岩本 洋子^{1*}, 木ノ内健人², 松木篤¹
Yoko Iwamoto^{1*}, Kento Kinouchi², Atsushi Matsuki¹

¹ 金沢大学 環日本海域環境研究センター, ² 金沢大学 理工学域

¹Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, ²College of Science and Engineering, Kanazawa University

Atmospheric aerosols can act as cloud condensation nuclei (CCN) and therefore play an important role in regulating radiative properties and lifetime of clouds. Along with the development of the industrial activities, the loading of atmospheric aerosols tends to increase, especially in East Asia. To access the radiative balance and/or hydrological cycle of the Earth in the future, quantitative evaluations of CCN characteristics are needed based on in-situ atmospheric observations.

In this study, CCN activity of submicrometer-sized aerosols were measured at Noto Ground-based Research Observatory (NOTOGRO), located at the tip of Noto peninsula, facing the Sea of Japan, in autumn 2012. Ambient aerosols were sampled through the PM10 inlet (14.7 m A.G.L.). The dried aerosols were introduced into a differential mobility analyzer (DMA) for size selection, and the resulting monodisperse aerosol was then transferred to a water-based condensation nuclei (CN) counter and a continuous flow thermal gradient CCN counter to measure the number concentrations of CN and CCN, respectively. The CCN efficiency spectra, where CCN number fraction is plotted against the diameter of aerosols, were obtained at four different supersaturations (0.1%, 0.2%, 0.5% and 0.8%). The bulk chemical composition of non-refractory submicrometer-sized aerosols was also measured by an aerosol chemical speciation monitor (ACSM).

Parameters related to the mixing state and hygroscopicity of the aerosols were obtained at high time resolution based on the analysis of the CCN efficiency spectra. The slope of the CCN efficiency spectra (diameter at which 50% of CN act as CCN) for ambient aerosols was not as steep as that for pure ammonium sulfate particles, indicating heterogeneity in the mixing states of the ambient aerosol. The hygroscopicity parameter kappa (Peters and Kreidenweis, 2007), estimated from the CCN activation diameter, suggested that organics contributed on the aerosol mass especially in the size range of less than 100 nm. The bulk chemical composition obtained by ACSM also indicated the large contribution of organics on the total aerosol mass, however, the size resolved CCN measurements provided a clue to the elucidation of the size-dependant chemical composition of submicrometer-sized aerosols.

References:

Peters and Kreidenweis (2007), *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1961-1971.

キーワード: 大気エアロゾル, 雲凝結核, 有機エアロゾル, 吸湿成長パラメータ, 東アジア

Keywords: atmospheric aerosols, cloud condensation nuclei, organic aerosols, hygroscopicity parameter, East Asia

2012年秋季に能登半島で観測された複数の過飽和度条件下における雲粒の大きさ Cloud droplet size measured for different supersaturations at Noto Peninsula, Japan, in autumn 2012.

木ノ内 健人^{1*}, 岩本洋子², 松木篤²

Kento Kinouchi^{1*}, Yoko Iwamoto², Atsushi Matsuki²

¹ 金沢大学大学院自然科学研究科自然システム学専攻, ² 金沢大学環日本海域環境研究センター

¹School of Graduate School of Natural Science & Technology, Kanazawa University, ²Institute of Nature and Environmental Technology

The size of cloud droplets is one of the important factors that control the radiative properties and lifetimes of clouds. In general, it has long been accepted that growth rates of cloud droplets depend solely on water vapor supersaturation (SS). To challenge this established theory, we conducted in-situ measurement of atmospheric aerosols and related cloud growth kinetics in East Asia, in order to investigate the relative importance of other factors that can potentially influence the initial cloud droplet growth. In this study, diameters of cloud droplets were measured by using cloud condensation nuclei counter (CCNC) at Suzu, Noto Peninsula (NOTOGRO) in October, 2012. CCNC was operated at four different SS conditions (SS=0.1%, 0.2%, 0.5%, 0.8%). The diameters of cloud droplets activated from ambient aerosols were compared to those activated from ammonium sulfate (regarded here as representative inorganic CCN). The negative correlations between the cloud droplets' diameters and organic aerosol mass fractions were observed. The initial growth rate of cloud droplets activated from ambient aerosol were considered to be inhibited by the existence of organics especially under the lower SS conditions (SS=0.1% and 0.2%).

キーワード: 雲凝結核, 雲粒の粒径, 大気エアロゾル, 化学組成

Keywords: cloud condensation nuclei, cloud droplet size, atmospheric aerosol, chemical composition

SMILES が捉えた成層圏・中間圏の HO₂ ラジカルの日変動 SMILES measurements of diurnal variations of hydroperoxyl radical (HO₂) in the stratosphere and mesosphere

鈴木 尚^{1*}, 佐川 英夫², 中野 幸夫¹, 水野 のり², 笠井 康子²
Nao Suzuki^{1*}, Hideo Sagawa², Yukio Nakano¹, Nori Mizuno², Yasuko Kasai²

¹ 東京学芸大学, ² 情報通信研究機構

¹Tokyo Gakugei University, ²NICT

1 序論

HO₂ ラジカルは大気的主要な酸化反応に関与する重要な酸化体の 1 つである。成層圏・中間圏において HO₂ の体積混合比は約 10 億分の 1 と非常に微量であり、これまで観測は非常に困難であった。そのため、HO₂ の日変動などのふるまいは明らかになっていない。

本研究では、国際宇宙ステーション (ISS) 搭載の超伝導サブミリ波リム放射サウンダ (SMILES) により観測されたデータを用いて、HO₂ 濃度の高度分布や日変動を解析した。解析した結果から、成層圏および中間圏大気の HO₂ の生成・消失反応について考察を行った。

2 SMILES による HO₂ 観測

SMILES のプラットフォームである ISS は地上から 320-340 km 上空にあり、約 90 分で地球を一周する。SMILES の地球上の観測点数は、1 日に約 1630 点であり、2009 年 9 月-2010 年 4 月にかけて、65° N-38° S の緯度帯を中心に観測した。SMILES は、大気中に含まれる微量物質が発しているサブミリ波領域の電波を受信し、音響光学型分光計によって分光されたスペクトルを測定する。得られた放射輝度スペクトルを反転解析することで、大気中の HO₂ の混合比鉛直分布を導出している。本研究では 649.70 GHz に遷移周波数をもつ HO₂ のスペクトル強度解析によってえられた HO₂ の体積混合比データを用いて、以下の方法で HO₂ の高度分布および日変動を解析した。

【日中・夜間における HO₂ の高度分布】SMILES で観測した HO₂ データを用いて、赤道域 (20° N-20° S)、中緯度 (20° N-50° N)、極域 (50° N-65° N) の 3 つの緯度領域における HO₂ の高度分布を導出し、日中と夜間の変化について調べた。

【成層圏と中間圏における HO₂ 濃度の日変動】SMILES で観測した HO₂ データを用いて、成層圏 (高度 18-50 km) と中間圏 (高度 50-80 km) における HO₂ 濃度を上記の緯度範囲ごとに導出した。横軸に太陽天頂角をとることにより、HO₂ 濃度の日変動について調べた。

3 結果・考察

HO₂ の高度分布から、HO₂ 濃度のピーク高度は、日中では約 75 km、夜間では約 80 km に存在し、日中、夜間ともに、中間圏でピークが見られた。このことは、各緯度領域においても共通の結果であった。

図 1 に示したように、本研究では中間圏から下部熱圏にかけて全球の HO₂ の日変動をはじめ高精度で観測することに成功した。日中の HO₂ 濃度の増加は明らかに光化学反応が関わっていることがわかる。成層圏では、O₃ の光解離反応から生成する励起酸素原子、O(¹D) と H₂O の反応、中間圏ではそれに加えてさらに、H₂O の光解離反応によって HO₂ の生成メカニズムを説明することができる。

謝辞: SMILES データ処理は情報通信研究機構の NICT サイエンスクラウドを用いて行われた。

キーワード: オキシダント, HO₂, 過酸化水素ラジカル, 日変動, 成層圏, 中間圏

Keywords: oxidant, HO₂, hydroperoxyl radical, diurnal variation, stratosphere, mesosphere

AAS21-P01

会場:コンベンションホール

時間:5月19日 18:15-19:30

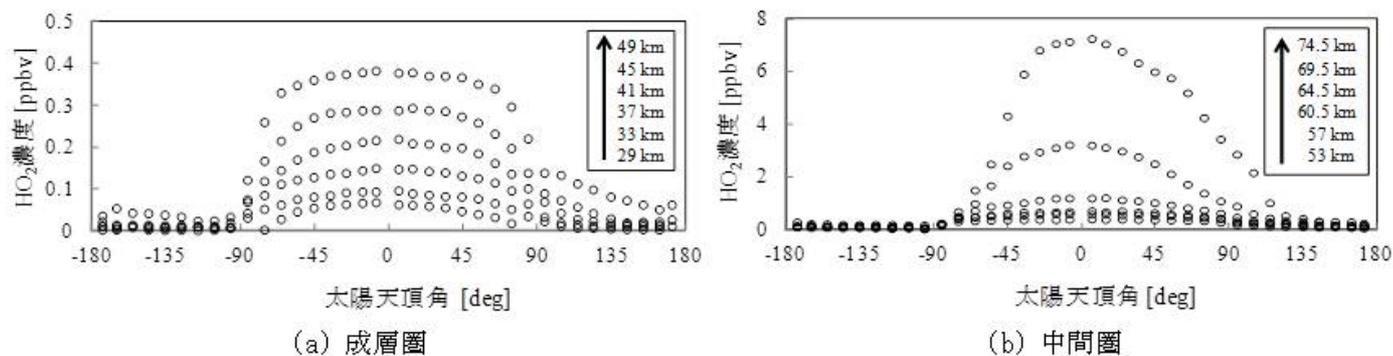


図1 SMILESが捉えた成層圏および中間圏における赤道域でのHO₂の日変動(高度29.0 km-74.5 km)

2009-2011年にFTIRで観測された北極オゾン層破壊の日本への影響

Impacts of the Arctic ozone depletion on Japan observed with FTIR between 2009 and 2011

橋本 優希^{1*}, 村田功¹, 中島英彰², 森野勇²

yuki hashimoto^{1*}, Isao Murata¹, Hideaki Nakajima², Isamu Morino²

¹ 東北大学大学院環境科学研究科, ² 国立環境研究所

¹Tohoku University, ²National Institute for Environmental Studies

環境問題の一つとしてオゾン層の破壊が挙げられる。フロンガスの規制は行われているものの、大気中に蓄積したフロンによりオゾンホールは規模はまだまだ縮小し始めていない。2011年春季には北極観測史上最大のオゾンホールが観測された。このオゾンホール自体は極渦内部で起きる現象のため人が多く住む中緯度地域への影響は少ないが、下部成層圏においてオゾンを再生する化学反応は存在しないので、極渦の崩壊後にはオゾン破壊のおきた空気塊が拡散し中緯度大気に影響を及ぼす。本研究はつくば上空における極渦崩壊前後のオゾンの濃度を比較することによって、オゾン層破壊の影響が日本にどの程度あるのか調べることを目的とする。

つくばの国立環境研究所ではフーリエ変換型分光計 (FTIR) を用いて大気微量成分の観測を行っており、東北大学ではこの観測スペクトルを用いて解析を行っている。本研究ではオゾン、フッ化水素 (HF) についてスペクトルフィッティングプログラム SFIT2 を用いて高度分布を導出した。

HF を同時に調べたの目的は、下部成層圏では HF は化学的に安定で、力学的輸送の指標として使えるためである。そのためオゾンと HF の相関を取ることで力学的変動分をキャンセルし、求めたいオゾンの化学破壊による変動分を導出することができる。極渦崩壊前後のオゾンと HF との相関を比較し、オゾンの化学破壊を経験した空気塊がどの程度中緯度に影響を及ぼすかを調べる。

後藤 (2010) は同じつくばの観測から 2008 年までの解析を行っており、2005-2008 年の 3 月から 5 月に観測された高度 19km 付近における中緯度空気塊のオゾン-HF 相関から 2007、2008 年には極渦崩壊後にオゾン量が減少していることを見出した。その減少量は 0.2-0.4ppm であった。本研究では 2009 年以降について解析を行ったが、2009 年の初期解析結果からは極渦崩壊後においてオゾン量の減少は確認されなかった。講演では、2009-2011 年の日本上空へのオゾン層破壊の影響を報告する。

参考文献

後藤秀美, フーリエ変換型赤外分光計を用いたつくば上空 O₃, HCl, HF の高度分布観測, 2010 (修士論文)

紫外・熱赤外・マイクロ波を用いた対流圏オゾンのシナジーリトリバルに関する研究

Simulation study of synergetic retrieval for tropospheric ozone with UV, TIR, and MW measurements

佐藤 隆雄^{1*}, 佐川 英夫², 入江 仁士³, 野口 克行⁴, 齋藤 尚子³, 今須 良一⁵, 林 洋司⁵, 笠井 康子²

Takao M. Sato^{1*}, Hideo Sagawa², Hitoshi Irie³, Katsuyuki Noguchi⁴, Naoko Saitoh³, Ryoichi Imasu⁵, Yoji Hayashi⁵, YASUKO KASAI²

¹ 宇宙航空研究開発機構宇宙科学研究所, ² 情報通信研究機構, ³ 千葉大学環境リモートセンシング研究センター, ⁴ 奈良女子大学, ⁵ 東京大学気候システム研究センター

¹Institute of Space and Astronautical Science, Japan Aerospace Exploration Agency, ²National Institute of Information and Communications Technology, ³Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, ⁴Nara Women's University, ⁵CCSR, The University of Tokyo

対流圏オゾンは短寿命気候汚染物質 (SLCPs) として、二酸化炭素、メタン等の長寿命の大気分子とともに温室効果をもたらす。特に圏界面付近でその影響は顕著であり、正確な温暖化予測のためには、こうした SLCPs の定量的理解が必要不可欠である。一方境界層では、光化学スモッグとして健康・農作物被害をもたらしており、越境汚染による地球規模の大気汚染の主要因として知られている。さらに紫外線の下で水蒸気と反応して OH ラジカルを生成し、メタンや二酸化炭素の除去等、対流圏化学に大きな影響力を持っている。

宇宙からの対流圏オゾン観測は、主に紫外波長による反射太陽光観測や熱赤外波長による熱放射観測によって行われてきた。しかし従来の観測手法では、対流圏を高度分離することは原理的に難しく、対流圏オゾン総量のうちの程度が温暖化や大気汚染に寄与するのかを定量的に見積もるためには、新たな観測手法による対流圏オゾンの高度分離がまず第一歩となる。

我々は、国際宇宙ステーション (ISS) からの地球観測「大気汚染と気候変動ミッション APOLLO」を提案しており、対流圏オゾンの高度分離は主要ターゲットの1つである。本ミッションでは、2種類 (紫外可視、熱赤外) のナディア観測測器と1種類 (マイクロ波) のリム観測測器による同時観測とこれらのデータのシナジーリトリバルにより、ISSの低軌道を生かした「高空間分解能観測 (~2 km)」と「対流圏オゾンの3層分離」の両立を目指している。

本研究では、多波長同時観測がもたらす対流圏オゾンの高度分解能の向上を定量的に評価するため、Optimal Estimation Method (OEM) [Rodgers, 2000] を用いてアベレーシングカーネル、Degree of Freedom for Signal (DOFS) 及びリトリバル誤差を算出した。今回の感度計算では、2009年6月と12月の中国中東部と東シナ海の領域化学輸送モデルの出力値を大気プロファイル (気温、オゾン、水蒸気: 計20種類) の真値として行った。全プロファイルに共通する事項として、まず紫外と赤外を同時観測することにより、境界層における情報量が増すことが明らかとなった。またマイクロ波を加えることにより、上部対流圏での感度が増すことも分かった。特筆すべきは、本来境界層に感度がないマイクロ波を加えることによって境界層の情報量が増す点である。これはマイクロ波を加えることにより、紫外・赤外がもつ上部対流圏・成層圏でのリトリバル誤差が軽減され、結果的に紫外・赤外によって境界層をよりよく決められるようになる、ということを示している。

本発表では、シナジーリトリバルの概要と評価手法及び得られた結果について詳細な報告を行う。

キーワード: 国際宇宙ステーション, 対流圏オゾン, 多波長観測

Keywords: International Space Station, Tropospheric ozone, Multispectral observations

GOSAT/TANSO-FTS の TIR バンド CO₂ および CH₄ プロファイル導出アルゴリズムの改良

Improvement of retrieval algorithm of CO₂ and CH₄ profiles from GOSAT/TANSO-FTS TIR band

齋藤 尚子^{1*}, 今須良一²

Naoko Saitoh^{1*}, IMASU, Ryoichi²

¹ 千葉大学環境リモートセンシング研究センター, ² 東京大学大気海洋研究所

¹Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, ²Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo

国立環境研究所、環境省、宇宙航空研究開発機構が共同で開発した温室効果ガス観測技術衛星 GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) は、2009年1月23日の打ち上げから約4年間継続して観測を行っている。GOSAT/TANSO (Thermal And Near-infrared Sensor for carbon Observation) -FTS は、短波長赤外波長領域 (SWIR) の3バンドと熱赤外波長領域 (TIR) の1バンドの計4バンドから構成されており、SWIR から CO₂ および CH₄ の気柱平均濃度、TIR から鉛直プロファイルを導出することができる。TIR Level 2 (L2) データについては、過去のバージョンの Level 1 (L1) スペクトルデータ (V100.100) を用いて処理された Version 00.01 (V00.01) データが一般に公開されている。V00.01 L2 CH₄ データは、鉛直プロファイルのデータ質はまだ十分ではないものの、カラム平均濃度では航空機データと0.5%以内で一致している [Saitoh et al., 2012]。一方、V00.01 L2 CO₂ データは、個々のデータのバラツキが大きく、低緯度の中部対流圏に明らかな正バイアスが存在するなど、データ質にはまだ問題があった。本研究では、前バージョンの TIR L2 データのデータ質の向上を目的として、TIR の CO₂ および CH₄ プロファイル導出アルゴリズムの改良を行った。ターゲットガスである CO₂ や CH₄ 以外のパラメータについても同時算出を試みた。また、今回の TIR L2 リトリバル処理には、最新のバージョンの L1 データを用いており、L1 スペクトルのバイアスに起因する L2 データのバイアスの軽減も期待される。

キーワード: 温室効果ガス, 衛星リモートセンシング, リトリバルアルゴリズム

Keywords: greenhouse gas, satellite remote sensing, retrieval algorithm

フーリエ変換型赤外分光計を用いたポーカーフラットにおけるメタン高度分布の経年変化

The temporal variation of vertical profile of methane at Poker Flat observed by Fourier transform spectrometer

丸野 浩市¹, 村田 功^{2*}, 笠井 康子³, 香川 晶子⁴, 笠羽 康正¹

Koichi Maruno¹, Isao Murata^{2*}, YASUKO KASAI³, Kagwa Akiko⁴, Yasumasa Kasaba¹

¹ 東北大学大学院理学研究科地球物理学専攻, ² 東北大学大学院環境科学研究科, ³ 独立行政法人 情報通信研究機構, ⁴ 富士通エフ・アイ・ピー

¹ Graduate school of science, Tohoku University, ² Graduate school of environmental studies Tohoku University, ³ National Institute of Information and Communications Technology, ⁴ FUJITSU FIP CORPORATION

メタン(CH₄)は二酸化炭素(CO₂)に次ぎ2番目に地球温暖化に寄与する物質であり、地球温暖化予測のためにはその時空間変動を詳細に調べる必要がある。そのなかでも北極域は湿地や永久凍土・天然ガス田が存在していて、CH₄の地球大気への大きな供給源となっている。この北極域でのCH₄の季節変化や年々変化を把握することは近年重要性が増してきている。

本研究では、北極域におけるCH₄のトレンドに注目し、情報通信研究機構(NICT)がアラスカ・ポーカーフラット(北緯65.11度、西経147.42度)に設置しているFTIR(Fourier Transform Infrared Spectrometer)の観測データを用いてCH₄高度分布の変動を解析した。ポーカーフラットFTIRは2000-2010年に観測を行っており、北極域で10年以上観測している数少ない重要な観測地点である。本研究では観測の無かった2006年を除いた10年間の観測データを用いた。

FTIR観測では太陽光を光源とした吸収スペクトルを得ている。観測で得た吸収スペクトルからSFIT2というスペクトルフィッティングプログラムを用いて高度分布を導出した。フィッティング結果はひとつひとつチェックし、残差の平均が0.5%以上のものは取り除いた。

得られた高度分布から下部成層圏カラム(10-21km)・対流圏カラム(0-10km)・トータルカラム(0-100km)の3つの時系列を作成し、季節変化と経年変化を議論した。季節変化については、下部成層圏カラムでは春と秋に最も低く、夏に最も高いという季節変化が得られた。これは成層圏における夏極から冬極に向かう大気循環によるものと考えられる。対流圏カラムでは、春と秋に最も高く、夏には最も低い値をとる季節変化が得られた。これはCH₄の消滅源であるOHラジカルが夏に大量に生成されるからだと考えられる。トータルカラムは、その80%近くが対流圏カラムであるので、対流圏の季節変化と同じく春と秋に最も高く、夏には最も低い値が得られた。

経年変化については、Digital fitting[Nakazawa et al., 1997]を用いたトレンド解析を行い、評価した。下部成層圏カラムは2000-2010年の間に大きな変化は得られなかった。対流圏カラムでは2007年から2008年にかけて増加傾向が見られ、2008年に最大値となる結果が得られた。その後、2009、2010年は値が低くなり、減少傾向が得られた。2008年に増加し高い値をとったのは、2007年の北極域での気温上昇による湿地からのCH₄発生の増加が考えられる[Dlugokencky et al., 2009]。2009年に減少したのは、リーマンショックによる天然ガスの世界的な消費の減少による影響が考えられる。トータルカラムは、対流圏カラムの占める割合が大きいため対流圏と同じような傾向が得られた。

今回得られたポーカーフラットにおける対流圏CH₄の経年変化は、ドイツや東アジアにおける観測とは2008年以降の傾向が異なっていた。このように経年変化に地域による違いがあることから、多くの場所で観測することはCH₄の生成や消滅の変化を特定するための重要な手段であることが示せた。

キーワード: メタン, フーリエ変換型赤外分光計

Keywords: methane, FTIR(Fourier transform Infra-Red spectrometer)

赤外分光観測におけるメタン高度分布導出のための解析波数領域の最適化 Optimization of wavenumber regions for the retrieval of the vertical profiles of CH₄ from infrared spectra

村田 功^{1*}, 中島 英彰², 森野 勇²

Isao Murata^{1*}, Hideaki Nakajima², Isamu Morino²

¹ 東北大学大学院環境科学研究科, ² 国立環境研究所

¹Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, ²National Institute for Environmental Studies

CH₄ は CO₂ に次ぐ温室効果ガスであるが、発生源である水田、家畜、化石燃料、湿地等のそれぞれからの寄与やその変動に関しては不明な点も多く、地表付近の濃度の増加率が年によって大きく変動する原因もよく分かっていない。一方、成層圏においては CH₄ の化学反応への寄与は増大し、CH₄ の酸化が最終的には水蒸気の供給源であること等からやはり重要な気体である。そのため、CH₄ の高度分布を精度良く導出することは重要な課題である。

東北大学と国立環境研究所では、高分解能フーリエ変換型赤外分光計 (FTIR) を用いて、つくばにおいて 1998 年 12 月より大気微量成分の地上観測データを用いた研究を行っている。フーリエ変換型分光計は赤外領域の広範囲のスペクトルを同時観測可能なため多成分を同時に観測でき、また高分解能 (波数分解能は 0.0035cm⁻¹) なため地上観測から高度分布を導出可能という点に特徴がある。高度分布の導出にはロジャーズ法を用いたスペクトルフィッティングプログラム SFIT2 を使用している。CH₄ の解析では 3 μm 付近の複数の吸収線を同時にフィッティングしているが、現在 FTIR 観測の国際的グループである NDACC/IRWG 内でより精度よく CH₄ 高度分布を導出するための波数領域の選定やパラメータの調整などが議論されている。Sussmann et al. [2011] では、1) 2613.7 - 2615.4 cm⁻¹、2) 2650.6 - 2651.3 cm⁻¹、3) 2835.5 - 2835.8 cm⁻¹、4) 2903.6 - 2904.03 cm⁻¹、5) 2921.0 - 2921.6 cm⁻¹ の 5 つの CH₄ 吸収帯を用いて様々な組み合わせで解析し、そのうち 1), 3), 5) の 3 つを使用した場合がもっとも良いと報告している。そこで我々もいくつかのケースについて比較を行ったところ、冬季の観測ではどの波数帯の組み合わせでも導出されるコラムの値は 1% 以内で一致するのに対し、夏季の観測では場合によって 4% 近い差が認められた。CH₄ 吸収帯には HDO の吸収が重なっている場合があり、そのため水蒸気量の多い夏ではその影響を受けやすいものと思われる。上記の中では特に 4) の波数帯を含む場合に差が大きく出る傾向があった。講演では年間を通じた観測スペクトルに対して比較した結果を紹介する。

キーワード: フーリエ変換型分光計, 大気微量成分, メタン

Keywords: FTIR, Trace Species, Methane

メタン高度分布比較のための衛星および航空機観測と同期したGPS 掩蔽測定による 気温高度分布の整備

Temperature from GPS RO meas. correlative to satellite and airborne obs. for comparing
those CH₄ profiles

杉田 考史^{1*}, 齋藤 尚子², 林田 佐智子³
Takafumi Sugita^{1*}, Naoko Saitoh², Sachiko Hayashida³

¹ 環境研, ² 千葉大, ³ 奈良女大

¹NIES, ²Chiba Univ., ³Nara Women's Univ.

熱赤外領域 (TIR) を天底測定する衛星搭載センサからのデータを利用した対流圏成層圏の層平均メタン濃度の導出・データ質評価が近年行われている (e.g., Clerbaux et al., ACP, 2003; Xiong et al., Remote Sens., 2010; Wecht et al., ACP, 2012; Razavi et al., ACP, 2009)。利用されるセンサとしては 1996-97 年に観測を行った日本の ADEOS 搭載 IMG をはじめ、最近では欧州 MetOp-A 搭載の IASI (2007 年から観測) などが挙げられる。2009 年からは GOSAT 搭載の TANSO-FTS が観測をはじめており、この分野での貢献が期待される。メタン濃度分布の導出には外部パラメータとして、気温および水蒸気の高高度分布、地表面気温、地表面射出率等が必要となる。本発表では GOSAT/TANSO-FTS の TIR バンド (5.5 から 14.3 micron の波長範囲) からのメタンの導出において、用いる気温高度分布がどの程度導出結果に影響を及ぼし得るのかを定量的に把握することを目的として、そのデータ整備を行う。Saitoh et al. (SOLA, 2012) では亜熱帯域の太平洋上において、GOSAT/TIR と航空機観測からのメタン濃度を比較し、カラム平均濃度として航空機観測よりも 5 ppbv (+/-15 ppbv) 低いことを示した。また、気温高度分布を定常処理に利用している JMA/GPV から NCEP/NCAR 再解析データに置き換えた場合には 2 ppbv の違いが生じることも指摘した。我々はさらに GPS による radio 掩蔽 (RO) 観測からの気温分布を用いた場合についても同様の感度解析を試みたが、観測の一致度が不十分であったために定量的な結論には至っていない。そのため亜熱帯とは大気の静的安定度が異なり、かつ GPS 観測がより高頻度な高緯度域に焦点をあてて気温高度分布がメタン導出に与える影響を調査する。初期解析として、2009 年 1 月以降の露国における航空機観測と同期した GOSAT 観測に焦点をあてる。この航空機観測は国立環境研究所が Russian Academy of Science (RAS) の協力を得て Surgut (61N, 73E), Novosibirsk (55N, 83E), Yakutsk (62N, 130E) において展開している (Machida et al., ICDC, 2001)。本発表では Surgut での 37 観測、Novosibirsk での 30 観測に同期した GOSAT 観測を抽出し、それらに対応した GPS RO データを整備し、また各種の気象データ等との比較を行ったのでその結果を報告する。

キーワード: 気温, メタン, GPS, GOSAT, 航空機

Keywords: temperature, methane, GPS, GOSAT, aircraft

「みらい」MR12-E03航海における大気中CH₄、CO₂、CO濃度の船上観測 Shipboard measurements of atmospheric CH₄, CO₂ and CO mixing ratios during the MR12-E03 cruise of the R/V Mirai

遠嶋 康徳^{1*}, 笹野大輔², 石戸谷重之³, 勝又啓一¹, 松下隼士¹, 石島 健太郎⁴, Patra Prabir⁴

Yasunori Tohjima^{1*}, SASANO, Daisuke², ISHIDOYA, Shigeyuki³, KATSUMATA, Keiichi¹, MATSUSHITA, Junji¹, Kentaro Ishijima⁴, Prabir Patra⁴

¹ 国立環境研究所, ² 気象研究所, ³ 産業技術総合研究所, ⁴ 海洋研究開発機構

¹National Institute for Environmental Studies, ²Meteorological Research Institute, ³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ⁴Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

In order to investigate the potential sources of methane (CH₄) in the Arctic region, continuous measurements of the atmospheric CH₄ were carried out during a R/V Mirai Arctic Ocean cruise from September 3 to October 17, 2012. A cavity ring-down spectroscopy (CRDS) analyzer was used for the shipboard measurements of the atmospheric CH₄, carbon dioxide (CO₂) and carbon monoxide (CO). The analytical precisions evaluated from the measurements of the standard gases at a 24-hour interval during the cruise were 0.02 ppm, 0.3 ppb, and 0.9 ppb for the 5-min averages of CO₂, CH₄, and CO mixing ratios, respectively. When the wind blew from the relative direction of 200 +/- 20 degrees (rear left of the vessel), the contamination caused by its own exhaust fumes affected the CO₂ and CO mixing ratios with a tight correlation ($\Delta_{CO}/\Delta_{CO_2}=3.8$ ppb/ppm), while there was no significant influence from the exhaust fumes on the CH₄ mixing ratio. Such pollution events are easily distinguishable by the characteristics of the relative wind direction, the tight correlation of CO vs. CO₂, and large short-term (~a few second) variability. The observed CH₄ mixing ratios showed larger variations with elevated peaks of several tens ppb in the Bering Strait, Chukchi Sea, and Arctic Ocean (65-75°N, 155-175°W) in comparison with in the western North Pacific. The largest CH₄ peaks of about 50 ppb were observed off the northern Alaskan coast. Since these CH₄ peaks were associated with similar CO₂ peaks but not with CO peaks, it is unlikely that the combustion processes or ocean were the sources of the elevated CH₄. The backward trajectory analysis suggests that the North Slope of Alaska is the most probable CH₄ source region. The simulated CH₄ variations based on an atmospheric transport model and given flux maps well capture the observed CH₄ variations, also suggesting that the most of elevated CH₄ were derived from the land sources.

キーワード: 大気メタン, 北極海, キャビティーリングダウン分光計, 船上観測

Keywords: atmospheric CH₄, the Arctic Ocean, cavity ring down spectroscopy analyzer (CRDS), shipboard measurements

富士山頂での夏季の一酸化炭素およびオゾンの測定

Carbon monoxide and ozone measurements during summertime at the summit of Mt. Fuji

加藤 俊吾^{1*}
Shungo Kato^{1*}

¹ 首都大学東京

¹Tokyo Metropolitan University

富士山頂は高度 3776m で、自由対流圏に位置している。富士山頂にある富士山測候所は自由対流圏の大気観測を行うことができる貴重な固定観測点であるが、現在は夏季に限って利用することができる。富士山頂において 2007 年からオゾンを、2008 年から一酸化炭素の測定を行っている。

一酸化炭素は Thermo Environmental Instrument 社の Model 48C, オゾンは Model 49i にて測定を行い、観測の前後で標準ガス(ボンベおよび標準濃度生成装置)で校正を行った。一酸化炭素計の測定値は温度や水蒸気量で変動をしまうため、加熱した Pt 触媒で生成したゼロガスを定期的に測定した。

測定された一酸化炭素およびオゾンは他のリモート地点に比べ大きな濃度変動を示した。基本的には両物質は同様な濃度変動をし、低濃度の清浄な大気と高濃度の長距離輸送された汚染大気が富士山頂に到達する変化をとらえていると考えられる。一酸化炭素だけ高濃度となる場合は、光化学反応によるオゾン生成が不十分な大気であると予想される。一方、オゾンだけ高濃度となる場合もあり、上部対流圏・成層圏の影響を受けた大気であることが予想される。このような上空からきた大気は露点が低いはずであるため、露点で分けてみると、オゾンのみが高濃度となる場合は露点が低い傾向がきれいに見られた。

しかし、露点が低いにもかかわらず、一酸化炭素とオゾンが高濃度となる事例も観測され、汚染大気が一度上級に日内変動の平均をみると、顕著な日変動はなく、少なくとも一酸化炭素やオゾンにおいては山風谷風による影響は顕著にはみられなかった。

観測期間である夏季の平均濃度には年ごとに差が見られた。海洋性・大陸性の大気の影響をうける期間が夏季に同程度あるかによって違いがでると考えられる。

キーワード: 自由対流圏, 長距離輸送, 山岳サイト, 高高度

Keywords: free troposphere, longrange transport, mountain site, high altitude

GELCA 結合モデルを利用した二酸化炭素の10年間インバージョン A decadal inversion of carbon dioxide using the Global Eulerian-Lagrangian Coupled Atmospheric model (GELCA)

白井 知子^{1*}, 石澤みさ¹, Ruslan Zhuravlev², Alexander Ganshin², 佐伯田鶴¹, Belikov Dmitry¹, 小田知宏³, 齊藤誠⁴, Vinu Valsala⁵, Maksyutov Shamil¹
Tomoko Shirai^{1*}, Misa Ishizawa¹, Ruslan Zhuravlev², Alexander Ganshin², Tazu Saeki¹, Dmitry Belikov¹, Tomohiro Oda³, Makoto Saito⁴, Vinu Valsala⁵, Shamil Maksyutov¹

¹ 国立環境研究所, ² ロシア中央高層気象台, ³ 国立環境研究所 (現所属: 米 CSU/NOAA ESRL), ⁴ 国立環境研究所 (現所属: 仏 LSCU), ⁵ 国立環境研究所 (現所属: インド熱帯気象学研究所)

¹National Institute for Environmental Studies, ²Central Aerological Observatory, ³NIES, now at CSU/NOAA ESRL, ⁴NIES, now at LSCU, ⁵NIES, now at ITTM

A decadal estimate of global CO₂ flux distribution for the period of 2001-2010 was conducted using an atmospheric inversion modeling system called GELCA (Global Eulerian-Lagrangian Coupled Atmospheric model) with Kalman smoother inversion technique. The use of Lagrangian particle dispersion model (LPDM) to simulate the transport in the vicinity of the observation points enables us to avoid numerical diffusion from which Eulerian models suffer, and is suitable to represent observations at high spatial and temporal resolutions. An Eulerian model is run to generate the global background concentrations to be used as the boundary conditions for an LPDM that performs backward simulations from each receptor point (observation location). In GELCA, National Institute for Environmental Studies-Transport Model (NIES-TM) version 8.1i was used as an Eulerian global transport model coupled with FLEXPART version 8.0 as a LPDM. Two-day backward transport by FLEXPART was combined with the background CO₂ levels 2 days prior to the observations simulated by NIES-TM. The meteorological data for driving both models was taken from JMA Climate Data Assimilation System (JCDAS) with a spatial resolution of 1.25° x 1.25° and a temporal resolution of 6 hours. Our prior CO₂ fluxes consist of the following four types: daily terrestrial biospheric fluxes generated by the VISIT model (Vegetation Integrative Simulator for Trace gases); monthly oceanic fluxes generated by an ocean pCO₂ data assimilation system; monthly biomass burning emissions taken from the Global Fire Emissions Database (GFED), version 3.1; and monthly fossil fuel emissions combining the high-resolution Open source Data Inventory of Anthropogenic CO₂ emission (ODIAC) version 3.0 dataset. We employed a Kalman Smoother inversion technique with fixed lag of 3 months, solving for 42 land and 22 ocean regions.

The purpose of the present study is to evaluate the performance of the GELCA inversion system with rather long period (10 years) CO₂ flux estimation and to examine the impact of observation network. We tested several different sets of observation datasets starting by using the NOAA flask network ground based observations as a control case. The sensitivity of the inversion to the choice of CO₂ observation dataset was discussed using the footprint of each observation dataset. The CO₂ flux estimate was examined in terms of observation network/coverage and also compared with previous studies.

キーワード: CO₂, 炭素循環, 逆計算, 結合モデル

Keywords: CO₂, sources/sinks, inverse modeling, coupled model

波照間島で観測された放射性炭素同位体比のトレンドと季節変動 Trends and seasonal cycle of atmospheric radiocarbon in carbon dioxide observed at Hateruma Island

寺尾 有希夫^{1*}, 向井人史¹
Yukio Terao^{1*}, Hitoshi Mukai¹

¹ 国立環境研究所 地球環境研究センター

¹Center for Global Environmental Research, National Institute for Environmental Studies

We have been conducted monthly air samplings for measurements of atmospheric radiocarbon in carbon dioxide ($^{14}\text{CO}_2$) at Hateruma Island (HAT, 24.05N, 123.80E, 47 m a.s.l.), Japan since 2004. We collected whole air samples using 2.0L glass flasks pressurized to 3 atm, and 5L air was used for radiocarbon analysis. The values of $\Delta^{14}\text{C}$ were measured using compact Carbon Accelerator Mass Spectrometry (CAMS, NEC 1.5SDH). Uncertainty in $\Delta^{14}\text{C}$ measured by CAMS is less than 2 per mil, which is based on the number of ^{14}C counts and the scatter of $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios during measurements. The reproducibility of CAMS measurements is ± 1.4 per mil (standard deviation of $\Delta^{14}\text{C}$ values in a reference air cylinder).

Here we show the $\Delta^{14}\text{C}$ values of background maritime air observed at HAT from 2004 to 2012. The seasonal cycle of $\Delta^{14}\text{C}$ was observed: minimum in winter-spring and maximum in summer, with amplitude of 10 per mil. Decreasing trends in $\Delta^{14}\text{C}$ were from -5 to -6 per mil/year, however, higher growth rates (less decreasing trends) of -2 per mil/year were observed in 2008-2009. The reason for the IAV in $\Delta^{14}\text{C}$ will be discussed.

Keywords: carbon cycle, carbon isotope measurements, accelerator mass spectrometry

沖縄県辺戸岬における大気中・雨水中のブラックカーボン濃度の測定 Long-term measurements of black carbon concentrations in rainwater at a remote site in East Asia

森 樹大^{1*}, 大畑 祥¹, 近藤 豊¹, 茂木 信宏¹, 松井 仁志¹, 岩崎 綾², 友寄 喜貴², 嘉手納 恒²

Tatsuhiko Mori^{1*}, Sho Ohata¹, Yutaka Kondo¹, Nobuhiro Moteki¹, Hitoshi Matsui¹, Aya Iwasaki², Nobutaka Tomoyose², Hisashi Kadena²

¹ 東京大学大学院理学研究科, ² 沖縄県衛生環境研究所

¹ Graduate School of Science, University of Tokyo, ² Okinawa Prefectural Institute of Health and Environment

ブラックカーボンエアロゾル(BC)は、化石燃料やバイオマスの不完全燃焼によって大気中に放出される。大気中に放出されたBCは、親水性成分に被覆されることで雲凝結核として働くようになり、降水とともに大気中から除去される。BCの湿性沈着過程を定量的に理解するためには、大気中と雨水中のBCの質量濃度を同時に測定し、それらの関係性や変動を理解することが重要である。大気中と雨水中のBC濃度を同時に観測した例は、これまでもいくつか報告されているが¹⁾、BCの排出量が多い東アジア域で長期にわたって同時に観測した例はない。そこで、我々は中国大陸起源の汚染大気の下流域にあたる沖縄県辺戸岬において、大気中と雨水中のBC質量濃度の同時観測を2年間にわたって行い、両者の濃度や湿性沈着量の季節変化について調べた。

観測は、沖縄県辺戸岬 大気・エアロゾル観測ステーション(26.87°N, 128.26°E)において2010年4月から2012年3月までの2年間にわたって行われた。大気中のBC濃度はブラックカーボンモニタ(COSMOS)を用いて時間分解能1分で連続観測した。また、1日ごとに降水サンプルを採取し、超音波式ネブライザー(U-5000AT)とレーザー白熱ブラックカーボン測定装置(SP2)を組み合わせることで各サンプルのBC濃度を測定した²⁾。

結果と考察

大気中と雨水中のBC濃度はともに、冬季(12月~2月)から春季(3月~5月)にかけて増加し、春季にもっとも高くなることがわかった。春季の月平均濃度はそれぞれ、 $0.37 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $62.2 \mu\text{g L}^{-1}$ であった。また、夏季(6月~8月)に大気中と雨水中のBC濃度はもっとも低くなり、月平均濃度はそれぞれ、 $0.07 \mu\text{g m}^{-3}$ 、 $5.82 \mu\text{g L}^{-1}$ であった。大気中と雨水中のBC濃度の月平均値の間に、比較的良好な相関が見られた($r^2 = 0.67$)。また、雨水中のBC濃度と降水量の積から算出した各月の湿性沈着量にも明瞭な季節変化が見られた。沈着量の年平均値は 39.6mg m^{-2} であり、総沈着量のうち春季が74.4%を占めることがわかった。大気中と雨水中のBC濃度が冬季から春季にかけて増加する理由は、中国大陸由来の汚染空気塊が冬の季節風や春の移動性擾乱に伴う北西風によって多く輸送されたためである。春季は雨水中のBC濃度が高く、更に梅雨前線や低気圧の影響によって降水量も増加するため、沈着量も増加する。一方、夏季は太平洋高気圧の影響によって南から清浄な空気塊が多く輸送され、大気中と雨水中のBC濃度がともに減少する。夏季から秋季(9月~11月)にかけては、台風や秋雨前線の影響により降水量は増加するが、雨水中のBC濃度が相対的に低いままであるため、結果として沈着量も少ない。冬季は雨水中のBC濃度が徐々に増加するが、北西から乾燥した空気塊が運ばれてくるため、降水量が少なく、沈着量は春に比べて少ない。

参考文献

1) Ogren J. A., Groblicki P. J. and Charlson R. J. (1984). Measurement of the removal rate of elemental carbon from the atmosphere. *Sci. Total. Environ.*, 36 :329-338.

2) Ohata, S., Moteki, N., and Kondo, Y.: Evaluation of a method for measurement of the concentration and size distribution of black carbon particles suspended in rainwater, *Aerosol Sci. Technol.*, 45,1326-1336, 2011.

キーワード: ブラックカーボン, 湿性沈着

Keywords: Black Carbon, wet deposition

太平洋広域で観測されたエアロゾル粒子の個数粒径分布：海洋生物活動および気象条件との関係

Number-size distribution of maritime aerosol particles over the Pacific Ocean

上田 紗也子^{1*}, 三浦 和彦¹, 河田 綾², 古谷 浩志², 植松 光夫²

Sayako Ueda^{1*}, Kazuhiko Miura¹, Ryou Kawata², Hiroshi Furutani², Mitsuo Uematsu²

¹ 東京理科大学理学部, ² 東京大学大気海洋研究所

¹Tokyo University of Science, ²AORI, University of Tokyo

大気エアロゾル粒子のサイズと個数濃度は、エアロゾル粒子の光学特性や雲形成、物質輸送による気候影響の評価する上で、最も基礎的なパラメータである。本研究では、太平洋広域での船舶観測によりエアロゾル粒子個数粒径分布を測定した。連続的に測定したエアロゾル個数粒径分布について、その地理的な傾向を示し、海域ごとの輸送経路や気象条件、海洋生物活動との関係を明らかにする。

観測は、学術研究船白鳳丸のKH-11-10およびKH-12-01航海の日本 - ハワイ - ペルー間を往復する航路(2011/12/1~2012/3/7)において行った。この航路では、生物生産の低い北緯10~30度付近の太平洋東部(2011年12月と2012年2月と3月)や南緯10~30度付近の太平洋東部の海域(2012年1月)、海洋生物活動が盛んな太平洋東部の赤道域(2012年2月)を含む。エアロゾル個数粒径分布は、SMPS(3034, TSI社製、10~500 nm)とOPC(KC01D、リオン社製、測定粒径0.3 μm以上、5ch)を用いて測定した。各測器は最上甲板の前方に設置したコンテナ内に配管した。コンテナ前方天井のインレットからサンプル空気を取り込み、拡散乾燥器で相対湿度30%以下にした後に、粒径別個数濃度を測定した。船の排気の影響を受けたデータについては、0.5 μm以下の粒子個数濃度を参考に間引いた。日平均したエアロゾル粒径分布について対数正規分布の足し合わせによるフィッティングを行った。ここでは、モード粒径が28 nm以下のモードを核形成モード、28-80 nmをエイトケンモード、80 nm以上を蓄積モードとする。フィッティングから得られた各モードの粒子数濃度とモード粒径をについて、海域や気塊の履歴(5日間後方流跡線と流跡線沿いの気象条件)との比較を行った。

太平洋上の気塊は、100~200 nm付近に最頻値をもつ蓄積モードと、30~80 nm付近に最頻値を持つエイトケンモードの二山分布であることが多かった。各モードのモード粒径と濃度は、海域と後方流跡線による気塊の輸送履歴に応じて類似した傾向を示した。北緯20~40度では、エイトケンモードと蓄積モード粒子のモード粒径が小さく、濃度も低いことが多かったが、大陸側から殆ど降水を経験せずに飛来した気塊であれば、蓄積モード粒子の濃度が比較的高い傾向にあった。赤道周辺の気塊は降水を3日以上経験せずに富栄養域の対流圏に留まっており、このような場合は蓄積モードおよびエイトケンモードのモード粒径が大きい傾向にあった。南太平洋東部の気塊は陸を通過せずかつ3日間で弱い降水を経験している場合が多かった。日の出時間頃に、20 nm以下の核形成モード粒子が出現し、エイトケンモードのサイズまで徐々に成長するイベント(新粒子生成イベント)がしばしば観測された。新粒子生成イベントは、蓄積モードの粒子数濃度が少ない際に観測された。本航海では比較的貧栄養な海域で新粒子生成イベントは観測された。一方、海洋生物活動の排出によるエアロゾル前駆気体物質の影響が期待された赤道周辺では、核形成モードの粒子は観測されなかった。気体が粒子化するには前駆気体物質が必要であるが、既存する粒子表面への気体物質の沈着が多い場合、新しい凝結核は形成され難い。赤道域ではよりagingされたとみられる大粒径の粒子が主であり、粒径分布から見積もられた気体物質の沈着速度(Condensation Sink)は高い値であった。以上の結果は、生物生産による影響に加えて降水による除去過程の有無が、海域ごとの粒子生成や成長の起こり易さに違いを与えていることを示唆した。

キーワード: 海洋大気エアロゾル, 個数 粒径分布, 新粒子生成

Keywords: Maritime aerosol, Number-size distribution, New particle formation

屋久島におけるPM粒子を含むアジア大陸からの大気汚染 Atmospheric pollutants originated Asian Continent included PM in Yakushima Island.

永淵 修^{1*}, 横田久里子², 手塚賢至³, 地下まゆみ⁴, 中澤 暦⁵
Osamu Nagafuchi^{1*}, Kuriko Yokota², Kenshi Tezuka³, Mayumi Jige⁴, Koyomi Nakazawa⁵

¹ 滋賀県立大学, ² 豊橋技術科学大学, ³ ヤッタネゴヨウ調査隊, ⁴ 大谷大学, ⁵ 大阪大学

¹The University of Shiga Prefecture, ²Toyohashi University of Technology, ³Yattane goyou team, ⁴Ootani University, ⁵Osaka University

Airborne particulate matter (PM) is a complex mixture of particles that are very different in size, chemical composition, physical state and morphology. Moreover, PM has a variety of emission sources which range from natural to anthropogenic and stationary to mobile. It also has a variety of physical and chemical properties. Therefore, not only the size distribution of particles but also information related to their chemical composition will play an important role in elucidation of the behavior and major emission sources of PM and their effect on human health and the ecosystem.

The samples of size-resolved PM were collected using a 3-stage NLAS impactor (Tokyo Dyrec Co., Ltd., particle cut size of stage is 10mm, 2.5 mm and 1.0mm for a flow rate of 3 L/min) with one day or three days sampling interval on the poly-carbonate filter (25mmf) and a polycarbonate filter (back-up filter 47mmf). Sampling of the PM was conducted at Yakushima Island, from 13 to 26 Jan., 2013. Elemental compositions of these samples were determined by ICP/MS, and ionic species were analyzed by IC. In addition, we observed a morphology by SEM. Moreover ATR-FT-IR imaging measurements of individual particles were performed using a Perkin-Elmer Spectrum 100 FT-IR spectrometer interfaced to a Spectrum Spotlight 400 FT-IR microscope.

キーワード: 粒子状物質, 長距離越境汚染, イオン成分, 重金属

Keywords: particulate matter, long-range transport, major ion, heavy metal

北太平洋における海洋大気中の鉄含有粒子：水溶性物質との混合状態 Atmospheric Fe-containing particles over the North Pacific Ocean : the mixing states with water-soluble materials

三木 裕介^{1*}, 上田 紗也子¹, 三浦 和彦¹, 古谷 浩志², 植松 光夫²

Yusuke Miki^{1*}, Sayako Ueda¹, Kazuhiko Miura¹, Hiroshi Furutani², Mitsuo Uematsu²

¹ 東京理科大学, ² 東京大学

¹Tokyo University of Science, ²University of Tokyo

鉄は海洋植物プランクトンの生育に必須な元素であり、鉄の欠乏はその生育や増殖を制限する。太平洋外洋域において、大陸からのエアロゾル粒子の輸送は、鉄を供給する重要なプロセスである。エアロゾル粒子の沈着しやすさは粒子サイズや水溶性物質との混合状態に依存する。鉄含有粒子の水溶性物質との混合状態を調べるために、東大大気海洋研の白鳳丸のKH-12-1 (EqPOS) の Leg 2 航海において、北太平洋の中緯度域を西に向かう船の上でエアロゾル粒子の捕集を行った。この航海は2012年2月21日にハワイを出港して、2012年3月7日に東京に入港した。粒子の捕集には低圧カスケードインパクターを用いた。捕集した粒子について透過型電子顕微鏡 (TEM) および水透析法による個別粒子の分析を行った。海洋大気エアロゾル粒子は、海塩粒子や硫酸塩など水溶性物質で構成される粒子が多い。一方、鉄の主な供給源としては、鉱物や工業起源の金属などが挙げられ、これらは水不溶性物質を母体としている。そこで、本研究では水不溶性物質を中心にエネルギー分散型 X 線分析器 (EDX) を用いて元素分析を行った。

流跡線解析と光散乱式粒子計数器 (OPC) で測定したエアロゾル個数粒径分布の測定結果から、気塊の由来を海洋と大陸に分類した。ダストイベント時と非イベント時 (海洋由来、大陸由来) のサンプルについて、直径 0.5 μm 以上の粒子を分析した。水不溶性物質を含む粒子は、直径 0.5 ~ 1.0 μm で 5 ~ 20 %、直径 1.0 μm 以上で 15 ~ 50 %であった。ほとんどの水不溶性物質が水溶性物質と混合した粒子 (混合粒子) として存在していた。混合粒子に対して水溶性物質の体積割合を調べた。海洋由来の気塊では粒子体積の 90% 以上を、大陸由来およびダストイベント時では 60 ~ 80% を水溶性物質が占めていた。水不溶性物質に対して元素分析を行ったところ、鉄含有粒子の個数割合はそれぞれ 2% (海洋)、2% (大陸)、8% (ダストイベント) であった。観測された水不溶性鉄は鉱物成分 (Si or Al) とともに検出された。また、水不溶性鉄はほとんどが水溶性物質と内部混合していた。

植物プランクトンの増殖に寄与するためには、鉄は海水に溶ける必要がある。水溶性鉄について考察するため、同じ粒子に対して水透析前後で元素分析を行った。水透析後の鉄の量は、水透析前に比べ減少していた。このことから、水溶性鉄の存在が示された。また、水溶性鉄は水不溶性鉄と内部混合していた。

キーワード: 鉄, 水溶性物質, 水不溶性物質, ダスト, エアロゾル

Keywords: Fe, water-soluble materials, water-insoluble materials, dust, aerosol

雨水・雪サンプル中のブラックカーボンの測定法の開発

Evaluation of the method to measure black carbon particles suspended in rainwater and snow samples

大畑 祥^{1*}, 茂木 信宏¹, シュワルツ ジョシュア², フェーフィー デイビット², 近藤 豊¹
Sho Ohata^{1*}, MOTEKI, Nobuhiro¹, SCHWARZ, Joshua P.², FAHEY, David W.², Yutaka Kondo¹

¹ 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻, ²Earth System Research Laboratory, National Oceanic and Atmospheric Administration

¹Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo, ²Earth System Research Laboratory, National Oceanic and Atmospheric Administration

雨や雪に含まれるブラックカーボン (BC) 粒子の質量濃度と粒径分布は、BC の湿性沈着を定量的に理解するために重要なパラメータである。本研究では、これらのパラメータを測定する測定法の詳細な評価を行った。本測定法は、超音波式ネブライザー (USN) と Single Particle Soot Photometer (SP2) で構成される。USN は水サンプルを一定の割合で微小な液滴に変化させ、その液滴を蒸発させることにより液滴に含まれていた粒子を大気中に取り出す。大気中の個々の BC 粒子の質量は、レーザー誘起白熱法に基づき SP2 により測定される。SP2 は体積等価粒径で 70-850 nm の BC 粒子を測定可能である。本測定法による測定の不確定性の一つは、USN が BC 粒子を水サンプルから大気中に抽出する効率の不確定性に起因する。本測定法を用いた先行研究のほとんどが、他のパラメータに依存しない一定の粒子抽出効率を仮定しているが、実際には抽出効率は粒子のサイズに依存する。本研究において我々は、12 種類の異なる粒径のポリスチレンラテックス (PSL) 粒子 (107-1025 nm) を用い、サイズ依存性を考慮した抽出効率を決定した。それぞれの PSL 粒子の水中の数濃度は、532 nm のレーザー光の減衰の測定から Mie 理論に基づき決定した。USN の粒子抽出効率は粒径 200-500 nm の粒子に対して約 10% と最も高く、それより大きな粒子に対して著しく減少することが分かった。本測定法により測定される水サンプル中の BC 質量濃度の確度と再現性はそれぞれ $\pm 40\%$ と $\pm 35\%$ である。東京・沖縄・札幌で採取された雨水・雪サンプル中の BC の質量粒径分布は本測定法の粒径測定範囲 (70-850 nm) 内に収まっており、600 nm 以上の粒径の BC の質量割合は無視できた。一方、グリーンランドの雪サンプル中の BC の質量粒径分布は、サンプルによっては 600 nm 以上の粒径を持つ BC の割合が無視できず、本測定法の粒径測定範囲を超えた BC 粒子の存在が示唆された。

キーワード: 黒色炭素粒子, ブラックカーボン, 湿性沈着

Keywords: black carbon, wet deposition

常緑広葉樹による生物起源有機ガス放出：モノテルペン組成の個体間差 Emission of biogenic VOCs from evergreen broadleaf tree: variation in composition of monoterpenes

松永 壮^{1*}, 高木 正博², 楠本 大³, 日浦 勉¹

Sou Matsunaga^{1*}, TAKAGI, Masahiro², KUSUMOTO, Dai³, HIURA, Tsutomu¹

¹ 北海道大学苫小牧研究林, ² 宮崎大学農学部, ³ 東京大学田無演習林

¹Tomakomai Research Station, Hokkaido University, ²Faculty of Agriculture, University of Miyazaki, ³The University of Tokyo Tanashi Forest, the University of Tokyo

【研究の背景】

生物起源の有機ガス (Biogenic VOC: BVOC) は、リージョナルあるいはグローバルスケールの大気化学、大気質および気候に重大な影響力を持っていると考えられている。BVOC は、イソプレン (C_5H_8) やモノテルペン類 ($C_{10}H_{16}$) など、様々な種類の有機化合物からなる。多くの研究により、BVOC の中で最大の放出量を持つイソプレンについては、その放出量や放出源の分布が比較的良好に分かってきているが、イソプレンに次いで重要な BVOC であるモノテルペン類については、まだ不明な点が多いのが現状である。植物は無視できないコストを払って BVOC を放出していることから、植物が BVOC を合成し、大気へ放出するには何か合理的な理由があると考えられる。しかしながら、BVOC 放出やその支配要因については、まだ統一的理解がされていない。単一の化合物であるイソプレンと違って多くの異性体を持ち、その化学組成から情報が得られる可能性のあるモノテルペン類の放出について、「本当の自然環境」の中で測定を行うことで、この謎を解くカギに近づける可能性があると考えられる。すなわち、植物が自然環境中にある何らかの理由によって、コストを払いながら BVOC を放出するのなら、その理由 (植食性昆虫の忌避など) が存在する自然環境での測定が有効である。モノテルペン類は、主に針葉樹から放出されるが、いくつかの常緑広葉樹もモノテルペン類を放出する。しかし、常緑広葉樹による BVOC 放出の研究例はまだ非常に限られている。常緑広葉樹は様々な樹種が同じ群落に生育していることが多いが、BVOC を放出するものはごく一部の樹種にすぎないと考えられている。つまり、常緑広葉樹は同じような環境で生育しているながら、互いに大きく異なる BVOC 放出をする。このような常緑広葉樹からの BVOC 放出に注目することで、実際の自然環境で植物が「なぜ」BVOC を放出するのかという根源的要因に迫ることができる可能性がある。本発表では、国内に多く生育する常緑広葉樹からの BVOC 放出について予備的成果を報告する。

【試料採取と分析】

BVOC 放出種を特定するためのスクリーニング試料採取と放出量決定のための本試料採取を、それぞれ東京大学田無演習林および宮崎大学田野演習林 (31°51'8"N 131°18'23"E) で行った。本試料採取は、田野演習林の林冠タワー上 (地上約 15m) で 2012 年 9 月 25 日~28 日に行った。BVOC は、個葉キュベットを用いて 20 枚のスタジイ (*Castanopsis sieboldii*) の葉から採取され、吸着剤を充填したガラス管に捕集した。これを研究室に持ち帰り、クライオフォーカス加熱脱着法によって試料導入し、ガスクロマトグラフ-水素炎イオン化検出器 (GC-FID) によって同定・定量した。

【結果と考察】

スクリーニング測定を行った常緑広葉樹 7 種のうちスタジイだけがモノテルペン類を放出することが分かった。スタジイは主に 8 種類のモノテルペン類を放出しており、その放出量は、 $0.04\text{--}30 \mu\text{gC g}^{-1} \text{h}^{-1}$ (最大値は α -pinene) であり、総モノテルペン放出量の平均は、 $19 \mu\text{gC g}^{-1} \text{h}^{-1}$ であった。これは、主要なモノテルペン類放出樹種として知られるマツ類のそれに匹敵するものである。スタジイからのモノテルペン放出には、明確な光依存性はみられなかった。そのため、スタジイのモノテルペン放出を温度依存と仮定し、モノテルペンの放出活性を得る目的で基礎放出量を算出した。この計算は、経験定数 α を 0.10 とし G93 モデルを用いて行った。Figure 1 にスタジイから放出されたモノテルペン類の組成を基礎放出量として示した。モノテルペン類の基礎放出量は個体間で比較的似通っていたのに対して、個体 1 と個体 2 および 3 ではモノテルペンの組成がはっきりと異なっていた。個体 1 は sabinene を多く放出していたが、ocimene はほとんど放出していなかった。これに対して、個体 2 および 3 では、sabinene をほとんど放出せず、ocimene を多く放出していた。これらのスタジイ 3 個体は同じ群落に生育しており、互いに 1-2m ほどしか離れていない。すなわち、同じ樹種であり樹齢もほぼ同様、なおかつほとんど同じ環境に生育しているにもかかわらず、放出している BVOC にははっきりとした違いが見られた。このように、似通った環境下で生育する同樹種間の BVOC 放出や異樹種間での BVOC 放出を、それらの樹木の分布や外的要因 (食害や感染など) と合わせて総合的に解析することで、未だ解明されていない BVOC 放出の根源的要因に迫れる可能性があるかもしれない。

キーワード: 生物起源有機ガス, 大気化学, 大気圏生物圏相互作用, 生物地球化学, 物質循環, 常緑広葉樹

AAS21-P17

会場:コンベンションホール

時間:5月19日 18:15-19:30

Keywords: Biogenic Volatile Organic Compound, Atmospheric Chemistry, Biosphere Atmosphere Interaction, Biogeoscience, Material Cycle, Evergreen Broadleaf Tree

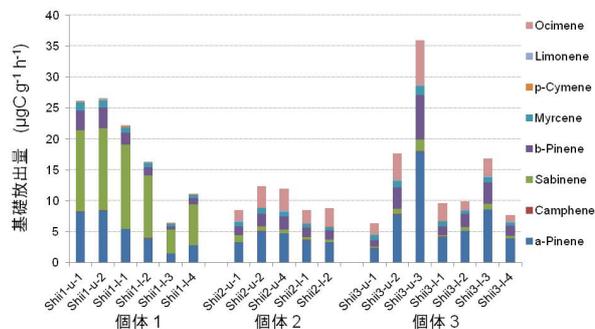


Figure 1 スダジイ (*Castanopsis sieboldii*) から放出されたモノテルペン類の個葉レベル基礎放出量

エアロゾル中のシュウ酸と不溶性シュウ酸錯体の濃度および光反応性の比較 Comparison of concentrations and photoreactivities of oxalic acid and metal-oxalate complexes in aerosols

山川 庸芝明^{1*}, 坂田 昂平², 坂口 綾², 高橋 嘉夫²

Yoshiaki Yamakawa^{1*}, Kohei Sakata², Aya Sakaguchi², Yoshio Takahashi²

¹ 広島大学理学部, ² 広島大学大学院理学研究科

¹Faculty of Science, Hiroshima University, ²Graduate School of Science, Hiroshima University

Aerosols have cooling effect to the earth, which is divided into direct and indirect effects. The direct effect is reflection of sunlight directly by aerosols, whereas the indirect effect is the reflection by clouds formed by the aid of aerosols working as cloud condensation nuclei (CCN). Oxalic acid is a main component of secondary organic aerosols (SOA) and abundant in the atmosphere, which is formed by degradation of organic components with longer carbon chain such as malonic acid. Oxalic acid is hygroscopic, which works as CCN with indirect cooling effect. It has been estimated that the degree of cooling effect by the aerosols are equal to that of the warming effect of carbon dioxide. However, there is large uncertainty in the estimation. In fact, if oxalic acid forms insoluble metal-oxalate complexes in the atmosphere, it is possible that the indirect effect can be smaller than the estimation. In addition, in the presence of metal-complex, it is also important to understand the formation processes. Therefore, this study was aimed (i) to decide the ratio of insoluble metal-oxalate complexes to oxalic acid in the aerosols by X-ray absorption fine structure (XAFS) spectroscopy to contribute to precise prediction of global warming and (ii) to evaluate stabilities of oxalic acid and metal-oxalate complex in the atmosphere during the photoreactions. The latter factor can be related to the dominance of metal-oxalate complexes in the atmosphere, if we can show that the photodegradation reactivity of oxalic acid is much larger than that of metal-oxalate complex by ultraviolet light.

We collected size-fractionated aerosols at Higashi-Hiroshima to determine chemical species of oxalic acid. As a result, (i) zinc (Zn) oxalate complex was found in fine particles (< 2.1 micron) and (ii) calcium (Ca) complex was present in all the particle sizes except for the 4.2 to 10.2 micron particles. Oxalic acid is SOA that is formed by degradation of organic matters, whereas oxalic acid can be distributed to the particle size from 0.5 to 1.0 micron known as droplet mode, where metal-oxalate complexes can be formed.

To estimate the stabilities of oxalic acid and its metal-oxalate complex with Mg^{2+} , their photodegradations by ultraviolet lights in water were determined by measuring their concentrations at various elapsed time using total organic carbon analyzer. As a result, there was no appreciable difference between the two systems up to 8 hours, but the concentration of the complex was kept larger than that of oxalic acid after 8 hours. Therefore, it is possible that oxalic acid actually exists as metal-oxalate complex in the atmosphere possibly by preferential photodegradation of oxalic acid.

We will also analyze chemical species employing XAFS analysis on other metal ions such as lead and copper to measure precisely the ratio of metal-oxalate complex to total oxalate species. We will also conduct photodegradation experiments by ultraviolet light not only for Mg^{2+} complex but also for Zn^{2+} and Ca^{2+} complexes to confirm the difference of photodegradation caused by chemical species.

キーワード: エアロゾル, シュウ酸錯体, 間接的冷却効果, 光反応性, X線吸収微細構造

Keywords: aerosol, metal-oxalate complex, indirect cooling effect, photoreactivity, X-ray absorption fine structure

接地境界層内におけるエアロゾル粒径分布の鉛直プロファイル観測 Vertical profiles of aerosol size distributions near the surface boundary layer

矢吹 正教^{1*}, 高橋 けんし¹, 松田 真¹, 津田 敏隆¹
Masanori Yabuki^{1*}, Kenshi Takahashi¹, Makoto Matsuda¹, Toshitaka Tsuda¹

¹ 京都大学生存圏研究所

¹ Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

人為起源および自然起源で放出された微量物質（ガス状および粒子状）は、その放射強制力を通じた気候変動や雲過程への関与など多岐にわたって影響を及ぼすことが知られている。とりわけ、人間生活圏に近い地表付近に分布する微量物質は、呼吸器疾患に代表される人体の健康影響と密接な関係があり、その動態を正しく把握することは重要な課題である。これらの大気微量物質の時空間変動は、拡散、輸送などに寄与する大気力学過程や熱力学過程に大きく依存する。また、その輸送過程で、ガス粒子変換による新粒子生成や、物理・化学的な変質、湿性沈着や慣性沈着による大気からの除去等の効果を受けるため、大気微量物質の分布特性は複雑なものとなっている。

本研究グループでは、下層大気ของガス状および粒子状物質の動態を詳細に調べることを目的とした、接地境界層におけるエアロゾル・微量気体プロファイル観測（AEROGAP）を提案している。AEROGAPは、大気微量物質の化学・物理成分と気象要素を計測するための直接計測装置とリモートセンシング装置を融合的に用いたキャンペーン観測であり、直接計測には係留気球をプラットフォームとして活用している。本研究では、2011年と2012年の夏季に京都大学生存圏研究所 MU レーダー観測所（34.9 N, 136.1 E）で行われた観測のうち、係留気球に搭載した粒子計数器によるナノ粒子とサブミクロン粒子の鉛直分布特性の時間変動に着目した解析を行った。また、これらの直接計測とライダー計測から得られたエアロゾル特性の比較についても議論する。

キーワード: エアロゾル, 粒径分布, 係留気球, ライダー

Keywords: Aerosol, Size distribution, Tethered balloon, Lidar

熱分解 / キャビティ減衰位相シフト分光法を用いた大気中有機硝酸塩の測定 Measurement of organic nitrates in the atmosphere using thermal dissociation/cavity attenuated phase shift spectroscopy

定永 靖宗^{1*}, 高治 諒¹, 中嶋 一夫¹, 鈴木 一成¹, 松木 篤², 佐藤 啓市³, 坂東 博¹

Yasuhiro Sadanaga^{1*}, Ryo Takaji¹, Kazuo Nakajima¹, Kazunari Suzuki¹, Atsushi Matsuki², Keiichi Sato³, Hiroshi Bandow¹

¹大阪府立大学, ²金沢大学, ³アジア大気汚染研究センター

¹Osaka Prefecture University, ²Kanazawa University, ³Asia Center for Air Pollution Research

Peroxyacyl nitrates (PANs) and alkyl nitrates (ANs) act as one of the reservoirs of nitrogen oxides (NO_x) in the atmosphere. Since their lifetime is longer than that of NO_x , they can be transported over a long-distance and would be important as trans-boundary pollutants. PANs and ANs are generally observed using GC/ECD (gas chromatograph / electron capture detector) or GC/NICI-MS (gas chromatograph / negative ion chemical ionization-mass spectrometry) method. While these GC methods can measure concentrations of each constituent in PANs and ANs, they have low time resolution. Measurements by GC/ECD which has radioisotope are very difficult in Japan because of laws and regulations. On the other hand, frequent maintenances are required for measurements using GC/NICI-MS. Thus observation data of PANs and ANs in Japan are quite low.

In this research, continuous measurement system of total PANs and ANs in the troposphere has been developed by using a thermal dissociation / cavity attenuated phase shift spectroscopy (TD/CAPS) method. Both PANs and ANs are thermally decomposed to produce NO_2 and then NO_2 is measured by CAPS method. This system can observe PANs and ANs with high time resolution while this system cannot separate constituents of PANs and ANs.

This system has three lines; (1) NO_2 line, (2) PANs line, and (3) ANs line. The NO_2 line consists of a quartz tube without heating. The PANs and ANs lines have quartz tubes heated at 433 K and 633 K, respectively. Concentrations of NO_2 , $\text{NO}_2 + \text{PANs}$ and $\text{NO}_2 + \text{PANs} + \text{ANs}$ can be obtained from the NO_2 , PANs and ANs lines, respectively. These concentrations are sequentially measured by switching solenoid valves and then NO_2 , PANs and ANs concentrations are obtained. Since a part of HNO_3 is pyrolyzed in the ANs line, annular denuder coated with NaCl to remove HNO_3 is set before the heated quartz tube in the ANs line.

The decomposition efficiencies of PANs and ANs were investigated and obtained to be 100 and 90%, respectively, for all kinds of PANs and ANs examined.

Continuous field observations of PANs and ANs concentrations have been being carried out at NOTOGRO supersite at Suzu, Noto Peninsula, since November 2012. In this presentation, the observational results and preliminary analyses of PANs and ANs concentration variations with NO_x , NO_y , total inorganic nitrate, O_3 and CO concentrations simultaneously observed are introduced.

キーワード: 反応性総窒素酸化物, 有機硝酸エステル, キャビティ減衰位相シフト分光法

Keywords: total odd nitrogen species, organic nitrates, cavity attenuated phase shift spectroscopy

東アジア工業都市の堆積物中の SCPs(化石燃料燃焼由来粒子)の化学組成と西日本離島への長距離輸送

Chemical composition of the SCPs derived from fossil-fuel combustion in East Asia and their long transportation

井上 淳^{1*}, 百瀬あずさ¹, 奥平 敬元¹, 北瀬(村上) 晶子², 山崎秀夫³, 香村一夫², 吉川周作¹

INOUE, Jun^{1*}, MOMOSE, Azusa¹, OKUDAIRA, Takamoto¹, KITASE, Akiko M.², YAMAZAKI, Hideo³, KAMURA, Kazuo², YOSHIKAWA, Shusaku¹

¹ 大阪市立大学理学部, ² 早稲田大学創造理工学部, ³ 近畿大学理工学部

¹Osaka City University, ²Waseda University, ³Kindai University

SCPs (spheroidal carbonaceous particles; 球状炭化粒子) は, 火力発電所などで化石燃料を高温燃焼させる際に排出される 1-数十 μm の粒子である。SCPs は球状・多孔質な特徴的な形態のため, 他の粒子と明確に区別できる。このため, 化石燃料燃焼を伴う工業活動の指標粒子となる。SCPs は, 燃焼物によって化学組成が大きく異なることが報告されている。ここでは, 東アジア各国(日本・中国・韓国・台湾)の池や湖などの表層堆積物に大気降下物として含まれる SCPs についてその元素組成を調べ, 各国で排出される SCPs の化学的特性を明らかにした。さらに, 西日本の日本海側の離島などの堆積物に含まれる SCPs についても元素組成を調べ, 工業都市で排出された SCPs の化学組成と比較することにより, その供給域の推定を試みた。

試料は, 日本の都市域において9ヶ所, 中国において6ヶ所, 韓国において6ヶ所, 台湾において5ヶ所で採取した。元素組成分析はEDS(エネルギー分散X線分光法)を用いて18元素(Na, Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn)について分析を行った。その結果, 日本と韓国の SCPs の元素組成は Si と S が優占するのに対し, 中国のものは Si と Ti が, 台湾のものは Si と S と Ti がそれぞれ優先することが明らかになった。それぞれの国で検出された全ての SCPs を対象に二カ国ごとの判別分析を行ったところ, 日本と韓国間の判別分析を除いて, それぞれ約90%で判別される結果が得られた。このことは, 日本と韓国の粒子の判別を除いて, 元素組成に基づいて各国の粒子が高い確度で判別できることを意味する。

判別分析から得られた判別式から, 隠岐, 壱岐, 五島列島の堆積物から採取した SCPs の元素組成に基づき, 日本-韓国タイプ, 中国タイプ, 台湾タイプの3つのタイプに分類した。隠岐, 壱岐, 五島列島では約30%以上の中国タイプが認められ, これらの粒子は中国で排出された可能性が高いものと考えられる。

キーワード: 化石燃料燃焼由来粒子, 化学組成, 東アジア, 長距離輸送

Keywords: spheroidal carbonaceous particles, fossil-fuel combustion, chemical composition, East Asia, long transportation

春季東アジアのエアロゾルの雲物理への影響評価 : WRF-Chem 数値モデルの A-FORCE 観測による比較検証 Simulation of aerosol-cloud interactions in spring over East Asia using WRF-chem model : Comparison with aircraft obs.

高谷 怜^{1*}, 小池 真¹, 松井 仁志¹
Ray Takatani^{1*}, Makoto Koike¹, Hitoshi MATSUI¹

¹ 東京大学大学院・理学系研究科

¹ University of Tokyo

1. はじめに

エアロゾルは雲凝結核として働き雲粒数を増減させることにより、放射強制力や雲のフィードバックを引き起こす重要な要素である。近年、東太平洋（カリフォルニア沖、チリ沖）の下層雲については大規模な観測プロジェクトと詳細なモデル計算によりエアロゾルと雲の関係に関する研究が進展している。しかし東アジアは世界的にみてもエアロゾルの多い地域であるにもかかわらず、エアロゾルの雲物理量への影響を評価した研究は十分ではない。

本研究では、エアロゾルの雲物理量への影響を陽に表現した領域3次元モデル WRF-Chem を用いて、東アジアのエアロゾル数・雲粒数を計算した。本研究の目的は、この計算結果を A-FORCE 航空機観測により得られたエアロゾル・雲粒数濃度により検証し、その妥当性を評価することである。

2. A-FORCE 航空機観測

2009年3月から4月に東シナ海で、雲頂高度2km以下の非降水性の下層雲を対象として、雲粒数と雲直下のエアロゾル数の航空機観測を9回実施した [Koike et al., 2012]。本研究ではこの9例について比較を行った。

3. WRF-Chem モデル計算

本研究の数値計算には WRF-Chemv3.4 を用いた。計算期間は A-FORCE 観測に合わせ、2009年3月21日~2009年4月26日とした。水平解像度はそれぞれ108km格子、36km格子、12km格子の3ドメインを用い、一番外側のドメインがアジア全体を含み、一番内側のドメインが A-FORCE 観測領域を含むように設定した。鉛直は46層、最下層は30mとした。化学成分のエミッションは人為起源・バイオマス燃焼を考慮し、エアロゾルの数・粒径分布や化学反応の計算には CBMZ/MOSAIC 8 ピンスキームを、雲微物理には Morrison の 2 モーメントスキームをそれぞれ用いた。観測との比較においては、観測された場所・時間でのモデル計算値を用いた。

4. 結果

まず下層雲において雲粒へと活性化すると期待される乾燥直径130nm以上のエアロゾルの数濃度に注目してみると、モデル計算はエアロゾル数濃度を平均して27%過小評価していた。ただしエアロゾル数濃度の観測値とモデル計算値は正の相関を示しており ($r_2=0.32$)、エアロゾル数濃度の時空間変動を引き起こす基本的なメカニズム(大陸からの人為起源エアロゾルの輸送など)は再現していると考えられる。一方、雲粒数濃度についても観測値とモデル計算値は正の相関を示しているものの ($r_2=0.83$)、その絶対値は約1.9倍過大評価していた。特にエアロゾル数の多いイベントでの過大評価が大きい傾向にある。

次にエアロゾルの雲物理量への影響を定量化するために、乾燥直径130nm以上のエアロゾル数濃度と雲粒数濃度の関係を比較した。この結果、観測されたエアロゾル数と雲粒数の正相関はモデルでも再現することができた。具体的には、人為起源エアロゾルの増大により雲粒数濃度が比較的高くなっていったケース(フライト10など)とエアロゾル・雲粒数濃度が共に相対的に低いイベント(フライト18など)のコントラストを再現することに成功した。しかし、エアロゾル数に対する雲粒数の比率は約2.7倍過大評価している。これらの原因はまだ解析中であるが、エントレインメントの過小評価やエアロゾルから雲粒への活性化の過大評価などの可能性が考えられる。

キーワード: エアロゾル, 雲, 間接効果, 数値モデル計算

Keywords: aerosol, cloud, indirect effect, numerical simulation

東アジア域大気汚染物質の発生源感度評価のためのモデル間相互比較 Model inter-comparison for evaluation on source sensitivities of atmospheric pollutants over East Asia

山地 一代^{1*}, 池田 恒平¹, 滝川 雅之¹, 永島 達也², 金谷 有剛¹

Kazuyo Yamaji^{1*}, Kohei Ikeda¹, Masayuki Takigawa¹, Tatsuya Nagashima², Yugo Kanaya¹

¹ 海洋研究開発機構, ² 国立環境研究所

¹Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, ²National Institute for Environmental Studies

Atmospheric pollutants were simulated by using two regional CTMs, WRF-Chem and WRF/CMAQ and a global CTM, CHASER over East Asia for the year 2005. Simulated surface O₃ over Japan by WRF/CMAQ was higher than that by CHASER especially in summer, and overestimated observed O₃ at EANET monitoring sites. Contributions from 5 source regions; north China(CHN), central China(CHC), and south China(CHS), Korea(KRE), and Japan(JPN) on 6 areas on these regions were evaluated based on sensitivity simulations with 20% reduction in anthropogenic emissions. These models resulted that the 20% emission reductions on CHC would gain 0.8% decrease of surface O₃ over Central Japan in spring, and that was comparable to the O₃ decrease of 0.8-0.9% over Central Japan by the 20% emission reductions on JPN. As for the summer case by using CHASER, the O₃ decreases of 0.6% and 1.6% over Central Japan by 20% emission reductions over CHC and JPN, respectively. On the other hand, the regional CTMs, WRF-Chem and WRF/CMAQ, resulted 0.9% (CHC emission reduction) and 3.1% (JPN) O₃ decreases and 0.7%(CHC) and 2.4% (JPN) O₃ decreases, respectively, and that were 1.2-1.9 times higher than those by CHASER.

キーワード: 大気質モデル, 東アジア, 大気汚染物質, オゾン, PM2.5, 相互比較

Keywords: air quality models, East Asia, atmospheric pollutants, ozone, PM2.5, inter-comparison

大気中の粒子状物質の動態 Dynamics of particulate matter in the atmosphere

池田 佳祐^{1*}, 永淵 修¹, 尾坂 兼一¹
keisuke ikeda^{1*}, Osamu Nagafuchi¹, Ken'ichi Osaka¹

¹ 滋賀県立大学大学院環境科学研究科

¹ Graduate School of Environmental Science, the University of Shiga Prefecture

近年、東アジア地域は急速な経済発展・産業開発により、多くの大気汚染物質が大気中に排出されている。今後この傾向は続くと見られ、日本への越境汚染はより深刻になる可能性がある。本研究では、私たちが住んでいる接地層と、大気が輸送されやすい大気境界層上部の2地点において粒子状物質を採取し、粒子状物質の動態と越境汚染の影響を解明した。

調査地点は、接地層として本学の学内(35°01'30''N, 135°58'07''E, 標高87m)、大気境界層上部として伊吹山山頂(35°25'03''N, 136°24'06''E, 標高1376m)とした。そこに、4段構造のフィルターパックと、4段構造のカスケードインパクターを設置し、粒子状物質の観測を行った。観測した試料は、前処理を行った後、イオンクロマトグラフで主要イオンを、ICP-MSで重金属元素を測定した。

接地層では、春季において黄砂と同時に硝酸イオン、アンモニウムイオン、非海塩性硫酸イオンなどが高濃度で観測された。NOAAのHYSPLITモデルを用いて後方流跡線を引いたところ、大陸由来の気団であった。夏季においては春季と同じ傾向は見られなかった。後方流跡線解析の結果、夏季は海洋性の気団が多くを占めた。沈着の組成は、観測期間中主に硝酸アンモニウム、硫酸アンモニウム、硝酸カルシウム、硫酸カルシウムであった。

大気境界層では、大気境界層と違う傾向が見られた。観測期間中の輸送の形態は主に硝酸ナトリウム、硫酸ナトリウムであった。これは海塩粒子である塩化ナトリウムが硝酸や二酸化硫黄による変質が起きているのではないかと示唆された。

キーワード: 粒子状物質, 越境汚染, 黄砂

Keywords: particulate matter, transboundary pollution, yellow sand

琵琶湖北部における水銀沈着量の算出 Calculated mercury deposition in north of Lake Biwa

菱田 尚子^{1*}, 永淵 修², 尾坂 兼一², 三宅 隆之²

Naoko Hishida^{1*}, NAGAFUCHI, Osamu², OSAKA, Ken'ichi², MIYAKE, Takayuki²

¹ 滋賀県立大学大学院環境科学研究科, ² 滋賀県立大学

¹Environmental Science Graduate School, the University of Shiga Prefecture, ²the University of Shiga Prefecture

大気中水銀の95%以上を占める0価のガス状水銀(GEM)は、水に溶解しにくい性質を持つため沈着しにくく、大気と共に地球全体を循環している。そして、酸化により水に溶解しやすい2価の反応性ガス状水銀(RGM)になり粒子状水銀(p-Hg)と共に、沈着により大気から除去される。そのため、発生源から離れた場所でも降水中水銀濃度が高くなることがある。さらに、沈着により大気から除去された水銀は、水域に入り食物連鎖の過程で生物濃縮する。そこで本研究では、琵琶湖北部において降水中水銀濃度から水銀沈着量を算出することを目的とした。

調査地は、滋賀県北部の摺墨である。ここは平均年降水量2800mmで豪雪地帯に分類される。ここに、一降雨内の水銀濃度の変動を調べるために降水を一定量ごと(5mm毎)に採取するように開発した水銀用自動降雨採水器を設置した。観測期間は、2011年6月~11月、2012年3月~11月である。冬季(12月~2月)は積雪のため観測できなかった。また、年間を通して観測を行うため常時開放型のバルクデポジットサンプラーも設置し、月に1回降水を回収した。2012年7月からは試料回収後、口径0.45μmのPTFEフィルターでろ過をし、還元気化-金アマルガム水銀測定装置マーキュリー-RA-3000FG+を用い、アルカリ還元冷原子蛍光法で測定した。

2012年9月までに採取できたのは29降雨で、降水中総水銀濃度は1.09~25.9ng/Lの間で変動し、平均値は7.15±5.31ng/Lとなった。降り始めに最も濃度が高くなる降雨が多くみられたが、一降雨内での総水銀濃度変動は一定のパターンを示さなかった。9月の台風に伴う降雨では、徐々に降水中水銀濃度が上昇した。雨雲が水銀排出域を通過して摺墨に到達した際に、降水中水銀濃度は上昇しており、雨雲の通過経路と降水中水銀濃度の変動は関連していると考えられる。また、バルクデポジットサンプラーによって回収したサンプルより算出した、水銀沈着量は19.7g/km²/year(2011年9月~2012年8月)となった。

キーワード: 水銀, 沈着量, 琵琶湖

Keywords: mercury, deposition, Lake Biwa

自由対流圏における大気中水銀の濃度変化 Atmospheric mercury in the free troposphere

西田 友規^{1*}, 永淵 修², 尾坂 兼一², 三宅 隆之²
Yuki Nishida^{1*}, Osamu Nagafuchi², Ken'ichi Osaka², Takayuki Miyake²

¹ 滋賀県立大学大学院環境科学研究科, ² 滋賀県立大学環境科学部

¹Environmental Science Graduate School, the University of Shiga Prefecture, ²School of Environmental Science, the University of Shiga Prefecture

In order to clarify the dynamics of atmospheric mercury in the free troposphere (FT), continuous observation of atmospheric mercury were carried out in Norikura Solar Observatory in Japan. The observation period is one week each of Oct 2011 and Oct 2012. Gaseous mercury (TGM) and particulate mercury (PHg) concentration in Norikura Oct 2011 were 0.72 - 1.23 ng m⁻³ and 17.0 - 121.0 pg m⁻³, respectively. TGM concentration in 2012 was 0.2 - 2.4 ng m⁻³, and the mean was 1.6 ng m⁻³. A diel variation of TGM was observed with daytime highs and nighttime lows in almost all of both periods. This diel pattern is considered to be due to upslope wind of boundary layer air resulting from a mountain surface that is warmed up with sunlight in daytime. Therefore such observation of atmosphere in the FT to use mountains, data is collect at night. In addition, the observation of 2012, sharp rise in the TGM concentration has been observed. Almost simultaneously with the concentration increasing of TGM, temperature has dropped drastically, and we saw a half inches of snow. This is thought to be due to cold air mass that flowed into Japan came from the continent, this suggested the possibility of long-distance transport of mercury.

キーワード: 水銀, 大気化学, 自由対流圏, 長距離輸送

Keywords: mercury, atmospheric chemistry, free troposphere, long - range transport

福江島における蛍光性エアロゾル粒子の解析 Measurement of fluorescent particles in Fukue Island

竹谷 文一^{1*}, 潘小楽¹, 金谷 有剛¹
Fumikazu Taketani^{1*}, Xiaole Pan¹, Yugo Kanaya¹

¹ 海洋研究開発機構
¹JAMSTEC

Among various optical techniques applied for the atmospheric particle detection, fluorescence is useful for detecting certain types of organic particles, especially those of biological origin. In this study, we employed a single-particle fluorescence sensor, WIBS-4, for the detection of fluorescent particles, to demonstrate the capability of the classification of organic particles in the ambient air.

We conducted ambient air measurements from Sep 16 to Dec 14, 2011 using the WIBS-4 instrument at Fukue Island (32.75N, 128.68E) in Japan. We detected 36,000,000 particles during the observation period, and the ratio of the fluorescent particles to the total varied in the range of 2 - 65%. In Oct.6, high number concentrations were observed, suggesting transportation from the continent by the trajectory analysis. During this period, the ratio of the fluorescent particles to the total was about 50%, suggesting that transported particles include fluorescent material. In the presentation, we will discuss the comparison of fluorescence pattern from individual particles.

キーワード: エアロゾル粒子, 蛍光
Keywords: aerosol, fluorescence

MAX-DOAS 法による NO₂ 立体観測 ~ 福岡市における空間不均質性 ~ Inhomogeneity of NO₂ over Fukuoka, an urban site in Japan observed by MAX-DOAS

高島 久洋^{1*}, 金谷 有剛², 伊藤宏大¹
Hisahiro Takashima^{1*}, Yugo Kanaya², Kodai Ito¹

¹ 福岡大学理学部, ² 海洋研究開発機構/地球環境変動領域
¹ Faculty of Science, Fukuoka University, ² JAMSTEC/RIGC

2012年8月より福岡大学(33.55N, 130.36E)にて、MAX-DOAS*法と呼ばれる地上からのリモートセンシング手法により、ガス成分の連続観測を実施している。観測装置は大学18号館屋上に設置し、北東方向(天神方向、市街域中心部)と西北西方向(糸島方向、市街方向ではない海)の2方位を交互に観測している。まず解析期間8-11月について、午前中に極大、午後には極小となる日変動が卓越していることを確認した。次に天神・糸島両方向で日変動に違いが顕著にみられた6事例について調べた。これらの事例では、天神方向では午前中濃度が単調に増加し、午後には減少がみられる。一方、糸島方向では朝8-9時ごろに極大、その後極小をとり、その後天神方向と同程度まで増大、それ以降は天神方向と同様に減少する。

NO_xの主な発生源が天神近辺であること[Kannari et al., 2007]、天神方向でのNO₂が鉛直方向に一樣に増大すること、風向が日中に北風に変化する(海陸風循環)ことから、NO₂の変動は、1. 都市中心部(天神方向)での放出、2. 境界層の発達にともなう地表からの鉛直輸送(鉛直混合)、3. 海陸風循環にともなう水平輸送(市街起源の高濃度気塊と海上の低濃度気塊)により支配されていると考えられる。

*Multi Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy

ライダーによる大気中微小粒子の検出法に関する研究 A Study on Detection Methods for Atmospheric Small Particles Based of Lidar Techniques

LIU YUTONG^{1*}, 矢吹 正教¹, 津田 敏隆¹
Yutong Liu^{1*}, Masanori Yabuki¹, Toshitaka Tsuda¹

¹ 京都大学生存圏研究所

¹ Research Institute for Sustainable Humanosphere

大気中には、エアロゾルとよばれる微小粒子が多数存在し、その大きさは、粒子の発生源の種類や生成・変質過程と密接な関係がある。とりわけ、粒径が数 10 nm から 1000 nm の粒子には、化石燃料の使用に伴う人間活動や、植物やプランクトンなど陸上、海洋の生物活動を起源とするエアロゾルを多く含む。この粒径範囲のエアロゾルは、気管支や肺胞への沈着による人への健康被害や、気候変動の要因となる放射収支への作用など、多方面に亘って複雑な影響力を有しており、その動態を正しく理解することが重要である。時間的・空間的不均一性が高いエアロゾルのモニタリングには、光散乱を用いたリモートセンシング手法が有効である。今までに実用化されたエアロゾル計測機器は、気体による光吸収の影響が少ない波長 350 ~ 1500 nm の光を使用しており、その波長と同程度の大きさの粒子検出に対して効果的であった。一方で、粒径分布の形状まで定量的に推定するためには、よりサイズの小さな粒子の情報を取得可能な計測手法の確立が必要となる。

本研究では、粒径 100nm 前後の粒子を含むエアロゾル粒径分布の把握を可能とする新たなライダー手法を提案した。この手法は、エアロゾル研究に広く使われてきた単散乱を計測するライダーを用いた解析法と、微小粒子に感度がある短いレーザー波長のライダーにより取得された多重散乱寄与率を用いた解析法の 2 つから構成される。単散乱の解析手法は、観測波長ごとに計測感度が高い粒径範囲が異なることを利用して、粒径分布の形状を推定する。一方、多重散乱を用いる手法は、波長 350 nm 以下のレーザー散乱光に含まれる多重散乱の効果指標とする。多重散乱には、粒子のサイズに関連した位相関数の情報が含まれており、粒径分布の形状推定に有効に利用できる。さらに、これら 2 つの手法を組み合わせて両手法で最も矛盾なく説明できる粒径分布の形状を抽出すると、観測値に誤差が含まれている場合でも、高い精度での推定が可能となる。

ライダー計測に広く利用されている Nd:YAG レーザから発振可能な 4 波長 (266, 355, 532, 1064 nm) を想定したシミュレーション実験では、粒径分布の幾何平均半径が 50 ~ 200 nm の時に精度良く推定できることが分かった。幾何平均半径が 100 nm の粒径分布を仮定して理論的に計算されたエアロゾル物理値や多重散乱信号にランダム誤差を加えたものを観測値として、本手法を適用した際の推定精度を検証した。観測値に誤差 $\pm 5\%$ 、 $\pm 10\%$ 、 $\pm 20\%$ 、 $\pm 50\%$ が与えられた場合、本手法で推定された幾何平均半径 (68% 信頼区間) は、真値となる仮定した 100 nm に対して、それぞれ、103 nm (83-128 nm)、100 nm (69-144 nm)、89 nm (48-163 nm)、and 84 nm (38-186 nm) の範囲内に収まった。

キーワード: ライダー, エアロゾル

Keywords: Lidar, Aerosol

水蒸気量の時空間分布観測のための走査型ラマンライダーの開発

Development of a scanning Raman lidar for observing the spatio-temporal distribution of water vapor

松田 真¹, 矢吹 正教^{1*}, 津田 敏隆¹, 高橋 けんし¹, 吉川 賢一¹

Makoto Matsuda¹, Masanori Yabuki^{1*}, Toshitaka Tsuda¹, Kenshi Takahashi¹, Ken-ichi Yoshikawa¹

¹ 京都大学生存圏研究所

¹ Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

地球大気の水循環を担う水蒸気は、雲・降水過程や大気物質の変質過程を通じて気候変動や環境変動に寄与する重要な因子として知られている。水蒸気やエアロゾルなどの大気微量物質の多くは地表付近の発生源に由来しており、また土地被覆等の地表面状態の影響を受けた複雑な乱流場の中で拡散・輸送される。そのため地表付近では、大気微量物質の時間的・空間的な変動が激しく、その動態を詳細に把握する新たな観測手法の開発が求められていた。本研究では、一点における高度プロファイルを時間連続で計測してきた従来のライダーを基礎に、水蒸気とエアロゾルの鉛直断面分布を同時に計測する走査型ラマンライダーを開発した。走査機能を付加したライダーは、水蒸気の拡散・輸送過程や、粒子の吸湿に関連したエアロゾル変質状態の空間的な不均一性など、現在は十分に理解されていない局所的な大気現象の解明に役立つ観測を可能とする。

市街域でも安全に運用出来る汎用性の高いシステムを目指し、レーザー源には可視光に比べて眼障害に対する安全性が高い波長 355 nm の紫外域レーザーを使用した。走査機構は、ライダーのレーザー射出・望遠鏡視野面に設けた高反射ミラーと、ミラーの角度を自動で制御する回転モーターにより構成される。回転モーターを自動制御することにより、最大 1.8 度/秒の走査速度で任意の角度範囲を鉛直走査させる。1 方向のみを計測する可視ラマンライダーを基準としたときの、開発したライダーの水蒸気混合比の誤差は 2.5 % 以下であり、走査機能を付加したことによる計測精度への影響は限定的であった。

2012 年 8 月および 10 月に、地表面に近い大気の大気微量成分の動態把握を目的とした観測を実施した。観測範囲を仰角 0 - 48 度の鉛直断面とし、動作と停止を繰り返しながら 1.5 度刻みに走査させた。各観測方向あたりの積算時間は 30 秒に設定した。観測期間中は、水平距離 400 m、および高度 400 m 以内の水蒸気混合比が 13.5 - 16.5 g/kg の間で変化している様子が見られ、これは地表面高度や土地被覆の違いを反映した局所的な大気状態の変化を捉えたためであると示唆された。観測範囲を仰角 45 - 135 度の鉛直断面に広げた観測では、大気境界層の厚さが観測方向に応じて 200 m 程度変化していることが確認された。また、レーザーを一定速度で高速走査させた観測では、時空間的な不均一性の高い雲の微細構造を詳細に把握することが出来た。本研究で開発した柔軟に走査可能なシステムは、従来の観測では難しかった、水蒸気混合比およびエアロゾルの空間不均一性の把握に対して有効である。

キーワード: ライダー, 水蒸気, エアロゾル

Keywords: lidar, water vapor, aerosol

多波長分光検出器を用いた気温ライダー開発のための基礎研究 Parametric studies on temperature lidar with a multispectral detector

吉川 賢一^{1*}, 矢吹 正教¹, 津田 敏隆¹

Kenichi Yoshikawa^{1*}, Masanori Yabuki¹, Toshitaka Tsuda¹

¹ 京都大学生存圏研究所

¹ Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

大気擾乱と対流活動が複雑に影響しあう大気境界層において、気温と水蒸気量は大気力学過程や雲・降水過程と密接に関係する重要な気象要素であり、これらの時空間変動の把握には、リモートセンシング手法による連続計測が有効である。本研究グループでは、振動ラマン散乱光や回転ラマン散乱光を検出する気温・水蒸気ラマンライダーを開発し、大気現象の理解に有効に活用してきた。このうち、空気分子の振動ラマン散乱を検出する水蒸気ライダーについては、アイセーフ性の高いレーザー波長への変更や受信・分光装置の高機能化を行った小型で汎用性の高いシステムの構築を進めてきた。近年では、小型のライダーに走査機能を付加することで、水蒸気混合比の鉛直断面構造の把握にも応用されている。一方、気温を測定するライダーはスペクトル幅が狭い空気分子の回転ラマン散乱光を使用するため、高精度の狭帯域干渉フィルタおよび発振波長の揺らぎが小さいレーザーが必要であり、その分光系は複雑でシステム全体のサイズも大型になりがちであった。

本研究では、小型でより汎用性の高い気温ライダー構築のため、回転ラマン散乱成分の検出に多波長分光検出器を適用した受光系を開発することを最終的な目標とする。多波長分光検出器は、光を波長ごとに分解する分光器、光から電流への変換を行う光電子増倍管、および電流のパルス数を計測するパルスカウンタの3つの装置から構成される。従来の干渉フィルタを用いる気温ライダーは、特定の温度依存を示す2波長の回転ラマン散乱光強度を、各々の波長に対して干渉フィルタと検出器を設けて検出し、それら強度の比から気温を推定する。一方、多波長検出器を用いる気温ライダーでは、分光器と一体化された複数波長を同時に計測する光子検出器により、回転ラマン散乱スペクトルの形状を取得することができる。そのため、観測値を良く説明する回転ラマン散乱スペクトルを理論的に計算することで、スペクトル形状を決める温度および観測波長が推定できると考えられる。多波長分光検出器を用いる利点として、分光系が一体のシステムで構成されるためシステムの小型化に適用しやすいことや、分光系の波長選別に関わる部分の単純化を可能とすることなどが挙げられる。加えて、スペクトル形状から観測波長も推定できるため、レーザー発振波長の揺らぎに対して高い精度が要求されず、比較的安価な部品でライダーを構成できる。

回転ラマン散乱スペクトルの形状からの温度推定精度は、スペクトルを測定する多波長検出器の波長分解能と観測波長により決定される。そのため、推定精度が最も高くなるようにこれらの光学パラメータを定める必要がある。本研究では、多波長分光検出器の波長分解能と観測波長が温度推定精度に与える影響を分析し、気温ライダーを設計するうえでの最適な分光系の仕様を提案するとともに、計測誤差に対する温度推定精度を計算機シミュレーションにより求めた。

キーワード: 気温ライダー, 多波長分光検出器

Keywords: temperature lidar, multispectral detector

SOの紫外線スペクトルから見積もられた非質量依存同位体効果 NMD Fractionation Estimated from SO Isotopologues Photolysis UV Spectra

Danielache Sebastian^{1*}, 鈴木 智也¹, 南部 伸孝¹, 上野 雄一郎¹
Sebastian Danielache^{1*}, Tomoya Suzuki¹, Shinkoh NANBU¹, Yuichiro Ueno¹

¹ 上智大学 理工学部 物質生命理工学科, ² 東京工業大学 大学院 理工学研究科 地球惑星科学専攻

¹Department of Materials & Life Sciences, Faculty of Science & Technology, Sophia University, ²Department of Earth and Planetary Sciences, Tokyo Institute of Technology

Understanding the mechanism of sulfur isotopic fractionation phenomena has been used for some time as a tool to the understanding of reducing atmospheres. Sulfur Non-Mass Dependent (NMD) fractionation signals reported for the Archean and Early Proterozoic (>2300 Ma) atmosphere where the photodissociation of sulfur bearing species play a significant role since the concentration of oxygen is estimated to be 10-5 times present atmospheric levels and therefore ultraviolet light permeates throughout the entire atmosphere, however the underlying mechanisms are not fully understood. In order to explain the NMD signal preserved in the geological record other than SO₂ photodissociation chemistry of sulfur compound should be taken into account. In this study we consider isotopic fractionation during photodissociation of SO. Experimental studies are difficult since SO is highly reactive and unstable under most experimental and atmospheric conditions. Consequently, theoretical studies are suitable to evaluate its spectroscopic properties. We report ultraviolet absorption cross sections for ^{32,33,34,36}SO isotopologues. R-matrix theory was employed to compute absorption cross sections. Potential energy curves were calculated at multi-reference correlation interaction (MRCI) method with augmented correlation consistent polarized valence sextuple-z (aug-cc-pV6Z) basis set. The six lower-lying electronic states were explored. Because there are pseudo-crossings between electronic excited states, non-adiabatic effect has been taken into account. Isotopic fractionation constants were theoretically estimated at different temperatures by assuming that the photolysis rates are proportional to the photoabsorption cross sections for each isotopologues. We make the one box model of the atmospheric chemistry where obtained photolysis rates are utilized, and discuss the results of this model.

キーワード: 硫黄循環, 古大気, 安定同位体

Keywords: Sulfur Cycle, Archean Atmosphere, Stable Isotopes