

AAS021-01

会場:102

時間:5月23日 08:30-08:45

地上観測および CONTRAIL による大気 CO₂ データを用いた炭素収支の逆解析 Carbon budget estimation by inverse modeling with atmospheric CO₂ concentrations from surface and CONTRAIL measurements

丹羽 洋介^{1*}, 町田 敏暢², 澤 庸介¹, 松枝 秀和¹, 今須 良一³, 佐藤 正樹³

Yosuke Niwa^{1*}, Toshinobu Machida², Yousuke Sawa¹, Hidekazu Matsueda¹, Ryoichi Imasu³, Masaki Satoh³

¹ 気象研究所, ² 国立環境研究所, ³ 東京大学大気海洋研究所

¹MRI, ²NIES, ³AORI

A great deal of understanding of the global and regional carbon budget helps us to perform a reliable prediction of future climate with an earth system model. However, the accuracy of CO₂ source/sink estimation by inverse modeling, which is one of the leading methods to estimate regional carbon budget, is not very high because of sparse observational data coverage. The recent evolving aircraft measurements of CO₂ in a three-dimensional view are expected to provide new constraints on the estimation of surface CO₂ fluxes.

In this study, regionally divided carbon budgets are estimated by inverse modeling using surface measurement networks and aircraft measurements from Comprehensive Observation Network for Trace gases by Airliner (CONTRAIL). The CONTRAIL project has started since late 2005 and a huge amount of atmospheric CO₂ data has been obtained covering altitudes between the Earth surface to the upper-troposphere and lower-stratosphere, latitudes between the boreal high-latitudes to the austral mid-latitudes. Monthly mean observational data from GLOBALVIEW-CO₂, which mostly consists of surface measurements, and CONTRAIL are used in this inverse analysis. The CONTRAIL data measured both vertically over each airport and horizontally at the cruising altitude are used. The inversion method is based on the Bayesian statistics and the approach of the TransCom 3 is used. To relate atmospheric concentrations to surface fluxes, a three-dimensional transport model is employed. In this study, Nonhydrostatic ICosahedral Atmosphere Model (NICAM)-based transport model (NICAM-TM) is used with prescribed CO₂ flux data of fossil fuel emission, respiration/photosynthesis in terrestrial biosphere and atmosphere-ocean exchange. The transport simulations of atmospheric CO₂ are performed by low-resolution version of NICAM; the horizontal grid interval is about 240 km. The analyzed period is five years during 2005-2009 and meteorological fields in each year are used to drive the transport model with the nudging method. The inversion setup is similar to TransCom3, but number of flux regions to be estimated is 42. Land regions are divided into 31 according to vegetation types and the same 11 ocean regions as TransCom 3 are used.

A preliminary result of forward simulation with the prescribed fluxes shows that the transport model has good performance for reproducing general features of three-dimensional structure of CO₂ observed by CONTRAIL. However, some discrepancies between the simulation and CONTRAIL are found in horizontal gradient even in the upper-troposphere during summer, indicating that aircraft measurements have significant impacts on flux estimates when vertical transport is efficient. The inversion results will be discussed in the presentation.

キーワード: 炭素循環, 逆解析

Keywords: carbon cycle, inversion

AAS021-02

会場:102

時間:5月23日 08:45-09:00

CONTRAIL 輸送モデル比較実験で再現された上部対流圏/下部成層圏のCO₂濃度分布の季節変化 CO₂ seasonal distributions in the UT/LS region as observed by CONTRAIL and four transport models

澤 庸介^{1*}, 丹羽洋介¹, Prabir K. Patra², 町田敏暢³, 松枝秀和¹, Dmitry Belikov³, 池上雅明⁴, 眞木貴史¹, Shamil Maksyutov³, 小田知宏³, 今須良一⁵, 佐藤正樹⁵

Yousuke Sawa^{1*}, Yosuke Niwa¹, Prabir K. Patra², Toshinobu Machida³, Hidekazu Matsueda¹, Dmitry Belikov³, Masaaki Ikegami⁴, Takashi Maki¹, Shamil Maksyutov³, Tomohiro Oda³, Ryoichi Imasu⁵, Masaki Satoh⁵

¹ 気象研究所, ² 海洋研究開発機構, ³ 国立環境研究所, ⁴ 気象庁環境気象管理官, ⁵ 東京大学大気海洋研究所

¹Meteorological Research Institute, ²JAMSTEC, ³National Inst. for Environmental Studies, ⁴Japan Meteorological Agency,

⁵AORI, The University of Tokyo

In the Comprehensive Observation Network for Trace gases by AirLiner (CONTRAIL) project, high-frequency and wide-ranging CO₂ data in the upper troposphere(UT)/lower stratosphere(LS) region have been obtained by Continuous CO₂ Measuring Equipment (CME) onboard commercial aircraft operated by Japan Airlines (JAL).

The observed distributions in UT/LS region showed that CO₂ isopleths followed the tropopause during the winter and spring. On the other hand, distributions tracked potential temperature surfaces crossing the tropopause in summer, suggesting fast meridional transport of high CO₂ from the tropical troposphere. However, it is difficult to show how the tropospheric air masses intrude into the lower stratosphere across the tropopause due to the limited observational data.

Recently, we conducted CONTRAIL transport model intercomparison to improve our knowledge of three-dimensional structures of atmospheric CO₂. The distributions in UT/LS region simulated by four global chemical transport models (ACTM, MJ98-CDTM, NICAM-TM, NIES) with common CO₂ flux dataset were used to study the transport processes near the tropopause. It was shown that the models reproduced observed CO₂ distributions following the tropopause in winter-spring season, although the CO₂ gradients across the tropopause are underestimated by approximately 2 ppm between 300 and 350 K in potential temperature surfaces. In summer, the isentropic transport of high CO₂ from the upper-troposphere in lower latitudes to the lower-stratosphere in higher latitudes were well simulated by the models. The detailed processes of transport will be analyzed and shown in the meeting.

キーワード: 二酸化炭素, 輸送モデル, 対流圏成層圏交換

Keywords: CO₂, transport model, UT/LS exchange

AAS021-03

会場:102

時間:5月23日 09:00-09:15

気象庁における南鳥島 C-130H 輸送機による温室効果ガスの観測 JMA aircraft observation for greenhouse gases using a cargo aircraft C-130H to Minami-torishima

坪井 一寛^{1*}, 松枝 秀和¹, 澤 庸介¹, 丹羽 洋介¹, 中村 雅道², 久保池 大輔², 斎藤 和幸², 大森 英裕², 西 秀紘², 岩坪 昇平², 花宮 義和², 辻 健太郎²

Kazuhiro Tsuboi^{1*}, Hidekazu Matsueda¹, Yousuke Sawa¹, Yosuke Niwa¹, Masamichi Nakamura², Daisuke Kuboike², Kazuyuki Saito², Hidehiro Ohmori², Hidehiro Nishi², Shohei Iwatsubo², Yoshikazu Hanamiya², Kentaro Tsuji²

¹ 気象研究所, ² 気象庁地球環境・海洋部

¹Meteorological Research Institute, ²Japan Meteorological Agency

Japan Meteorological Agency (JMA) started a long-term aircraft observation of greenhouse gases as one of the operational atmospheric monitoring activities in 2011. In cooperation with the Ministry of Defense, a cargo aircraft C-130H is used for the flask sampling observation during a roundtrip flight to Minamitorishima (MNM) once a month. The air samples are collected during a cruising flight at about 6 km as well as a descending to MNM. After the flight, we measure 4 trace gas concentrations of carbon dioxide (CO₂), methane (CH₄), carbon monoxide (CO), and nitrous oxide (N₂O). Before the regular observations, preliminary observation flights using the C-130H were made in 2010 to evaluate a new flask sampling equipment and a high-precision measuring system with the collaboration of Meteorological Research Institute (MRI). In this presentation, the details of newly developed instrumentations for JMA aircraft observation and their performances are introduced.

Air samples are pressurized into the flasks by a manual diaphragm pump to an absolute pressure of about 0.4MPa. To minimize the drifts of trace gas concentrations in the flasks, we specially prepared a 1.7-L titanium flask of which internal surface is coated by silica. The storage tests for the flask samples during several days were repeated to ensure the stability of trace gases until analyses. To avoid the contamination of cabin air, sample air was taken from an air-conditioning blowing nozzle upstream of the recirculation fan. Specially coordinated flights at a low altitude of 1000ft over MNM were made using the C-130H to compare with the ground-based measurements from the MNM monitoring system operated by JMA. From these comparison experiments, it was confirmed that our aircraft sampling procedure was suitable for the precise measurements of trace gases.

JMA/MRI developed a new automated measuring system consisting of a conventional NDIR analyzer (Licor, LI-7000) for CO₂ as well as recently advanced spectroscopy instruments of WS-CRDS analyzer (Picarro, G2301) for CH₄, VURF analyzer (Aero-Laser, AL5002-AIR) for CO, and off-axis ICOS analyzer (Los Gatos, N₂O/CO Analyzer) for N₂O. A lot of test runs using standard gases and natural air indicated that higher-precision analyses could be easily achieved rather than before, in stead of the complicated GC systems, although relatively larger amount of sample air is required.

キーワード: 航空機観測, 温室効果ガス

Keywords: aircraft observation, greenhouse gas

AAS021-04

会場:102

時間:5月23日 09:15-09:30

気球 CO₂ゾンデによる首都圏 CO₂排出量の測定: 2011年1月の3地点同時観測キャンペーンの結果

Evaluation of CO₂ emission from the Tokyo metropolitan area based on balloon borne measurements: Simultaneous observation

大内麻衣¹, 笹子宏史¹, 松見 豊^{1*}, 中山 智喜¹, 藤原 正智², 清水健作³, 柴田耕志³, 塩谷 雅人⁴, 大橋勝文⁵, 井上元⁶, 今須 良一⁷, 横田達也⁸

Mai Ouchi¹, Hiroshi Sasago¹, Yutaka Matsumi^{1*}, Tomoki Nakayama¹, Masatomo Fujiwara², Kensaku Shimizu³, Kouji Shibata³, Masato Shiotani⁴, Masafumi Ohashi⁵, Gen Inoue⁶, Ryoichi Imasu⁷, Tatsuya Yokota⁸

¹名古屋大学太陽地球環境研究所, ²北海道大学地球環境科学研究所, ³明星電気株式会社, ⁴京都大学生存圏研究所, ⁵鹿児島大学工学部, ⁶総合地球環境学研究所, ⁷東京大学大気海洋研究所, ⁸国立環境研究所

¹Nagoya University, ²Hokkaido University, ³Meisei Electric, ⁴Kyoto University, ⁵Kagoshima University, ⁶RIHN, ⁷The University of Tokyo, ⁸NIES

産業活動の拡大による化石燃料消費の増大の結果、二酸化炭素 (CO₂) の大気への放出量は急激に増加しており、大気中 CO₂ 濃度の増加を引き起こしている。CO₂ の放出源の中でも、人間活動による都市域からの CO₂ の排出は、CO₂ の収支を評価するうえで重要なファクターの1つである。その推定は主に化石燃料消費や交通量などからもとづいてなされているが、より正確な CO₂ 排出の見積りのためには、CO₂ 濃度や鉛直分布の詳細な測定が重要である。

そこで本研究では、首都圏からの CO₂ 排出量を推定するために、独自に開発した気球搭載 CO₂ 計測器 (CO₂ ゾンデ) を3地点で同時に放球し、CO₂ 鉛直分布を測定した。放球は、2011年1月7日 13:00-14:00 に、群馬県伊勢崎市、千葉県市原市、千葉県長生郡白子町の3地点で行った。観測時には北西の季節風が卓越しており、これらの3地点はそれぞれ首都圏の工業地域の風上、近傍、風下に位置していた。CO₂ 計測センサは、4.3 μm における非分散赤外吸収分光法に基づいており、混合比が既知の2種類の参照ガスと外気の光吸収を、順番に測定することで、CO₂ 混合比の鉛直分布を得る。また、CO₂ センサからの出力は、GPS レーウィンゾンデを介して、外気温、相対湿度、位置の情報と共に地上に送信した。

3地点での CO₂ 鉛直分布の観測の結果、上部対流圏においては、3地点の CO₂ 混合比の鉛直分布が概ね一致した。一方、高度 1km 以下においては、千葉県市原市での CO₂ 混合比の計測結果が、他の2地点に比べて 2-7ppmv 程度高い傾向が見られた。今後、得られた CO₂ の鉛直分布データを CO₂ 輸送モデルに適用し、首都圏からの CO₂ 排出量の推定を行う予定である。また、GOSAT 搭載フーリエ変換分光計やファイバーエタロン分光計 (地球研) による CO₂ のカラム濃度の測定結果との比較を行う予定である。

キーワード: 二酸化炭素排出, 気球観測, 首都圏, 衛星検証

Keywords: Carbon dioxide emission, Balloon-borne measurement, Tokyo metropolitan area, Satellite validation

AAS021-05

会場:102

時間:5月23日 09:30-09:45

波長変調吸収分光法による大気中の二酸化炭素安定炭素同位体比のリアルタイム計測

Real-time measurements of CO₂ stable carbon isotope ratio in the atmosphere using wavelength modulation spectroscopy

田中 光太郎^{1*}, 高橋 けんし², 戸野倉 賢一¹
Kotaro Tanaka^{1*}, Kenshi Takahashi², Kenichi Tonokura¹

¹ 東京大学環境安全研究センター, ² 京都大学生存圏研究所
¹ESC, Univ. of Tokyo, ²RISH, Kyoto Univ.

1. 緒言

温室効果ガスである二酸化炭素の安定同位体比は排出起源により異なることから、発生源の特定には安定同位体比のリアルタイム計測が有効である。二酸化炭素安定同位体比の計測には、同位体比質量分析計が汎用されており、精度は高いものの(約0.01~0.1 per mill) 同じ質量の同位体分子種の識別が困難であること(¹³CH₄と¹²CH₃D)や、前処理が必要で扱いが難しいといった問題から、リアルタイム計測には適していない。近年、レーザー吸収分光法を応用した安定同位体比の計測が行われてきている。この手法では、計測対象化学種の吸収振動回転線を適切に選択することにより、他の化学種の干渉なしに計測することができる。そのため、サンプルガスを直接計測部に導入できることから、連続計測が可能になる。これまで、中赤外域での直接吸収分光法や、吸収断面積が約一桁落ちる近赤外域では、キャビティリングダウン吸収分光法や波長変調吸収分光法(WMS)といった高感度吸収分光法を用いた計測が行われている。しかし、計測精度は質量分析計ほどまでは達しておらず、さらなる改良が必要である。そこで、本研究では、二酸化炭素安定炭素同位体比に焦点を当て、高精度リアルタイム計測が可能な装置を構築し、大気中の二酸化炭素安定炭素同位体比を計測することを目的とした。

2. 実験

二酸化炭素の安定炭素同位体比の計測はヘリオット型長光路多重反射セル(光路長約30m)とWMSを用いて行った。光源には2008nm帯のDFBレーザーを用いて、安定炭素同位体比の計測を行った。ヘリオット型のセルに導入したビームは、InGaAsフォトダイオード検出器で計測した。用いたセルの体積は0.9L、セル長は50cmで、有効光路長は約29.9mである。セルの温度は一般的な大気最高温度よりも高い313Kとし、計測圧力は10kPaとした。レーザーの波長挿引は0.77Hzで行い、変調周波数は11kHzとした。フォトダイオードで検出したシグナルはロックインアンプで位相敏感検出し、変調周波数の2倍の成分を検出した。得られたシグナルはAD変換ボードによりPCに取得した。計測には区別可能で近接した吸収線を選択し、¹²CO₂は4978.205cm⁻¹、¹³CO₂は4978.023cm⁻¹を用いて行った。吸収断面積はそれぞれ4.47×10⁻²³、7.07×10⁻²⁴cm²molecule⁻¹cm⁻¹である。安定炭素同位体比は検出したシグナルの強度比と国際標準試料値(¹³C/¹²C=0.011237)を比較して求めた。

3. 結果と考察

濃度379ppm、安定炭素同位体比-30.1per millの二酸化炭素サンプルガスをを用いて、安定炭素同位体比の計測を行った。選択したピークにおける¹²CO₂及び¹³CO₂のWMSスペクトルを計測し、大気存在比の低い¹³CO₂においても、S/N=66でシグナルを得ることができた。このことから、本装置が大気混合比レベルでの二酸化炭素安定炭素同位体比を計測できる十分な感度を持つことが確認された。同じピークを用いて約10時間の連続計測を行い、装置の計測安定性を確認した。連続計測は約5分間隔で行った。このとき、セルの温度・圧力も、それぞれ±0.1K、±0.01kPaの精度で制御した。その結果、二酸化炭素サンプルガスをを用いて、精度0.1per millを達成した。次に、野外大気中の二酸化炭素安定炭素同位体比の連続計測を試みた。二酸化炭素濃度は市販の非分散型赤外分析計(NDIR)の結果と比較した。本装置とNDIRで得られた濃度変動はよく一致した。また、二酸化炭素濃度の急激な変動と呼応して、安定炭素同位体比の急激な変化が観測され、気塊の輸送に伴う大気質変動をトレースできていることが示された。

4. 結論

2008nmDFBレーザーを用いて、ヘリオット型長光路多重反射セルと波長変調吸収分光法により、二酸化炭素の安定炭素同位体比計測装置を新たに構築した。安定同位体比を得ることができ十分な感度を持ち、長時間計測において、精度0.1per millを達成した。本装置により、実大気中の二酸化炭素安定炭素同位体比のリアルタイム計測ができることを示した。

キーワード: 安定炭素同位体計測, 二酸化炭素, 波長変調吸収分光法, 多重反射, DFB レーザー

Keywords: Measurements of carbon isotope ratio, Carbon dioxide, Wavelength modulation spectroscopy, Multi-pass cell, DFB laser

AAS021-06

会場:102

時間:5月23日 09:45-10:00

つくばにおけるフーリエ変換型分光計を用いたメタン高度分布観測 The vertical profiles of CH₄ observed at Tsukuba with a Fourier transform spectrometer

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

¹Environmental Studies, Tohoku University, ²NIES

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 月よりオゾンをはじめとする大気微量成分の地上観測を行っている。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。今回は CH₄ の高度分布解析を行っているのでその結果について報告する。

CH₄ は対流圏では化学的に比較的安定であり、CO₂ に次ぐ温室効果ガスとして注目されている。しかし、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。近年は ENVISAT や GOSAT など衛星による対流圏 CH₄ の観測も始まっているが、これらも発生源の分布や変動を詳しく調べることが目的である。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。しかし、これまで成層圏における CH₄ 濃度の変動を長期間にわたり解析した例は少なく、定量的理解は不十分である。

つくばでの FTIR 観測は 1998 年より Bruker 120M を用いて行い、2001 年からは 120HR、さらに 2010 年からは 125HR を用いた観測を行っているが、120M は高度分布解析の際に重要となる装置関数に問題があったため、現在は 120HR、125HR の観測データの解析を進めている。観測時の波数分解能は 0.0035cm⁻¹ で、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 内でより精度のよい波数領域の選定やパラメータの調整などが議論されており、我々もそれを用いた解析を進めている。

これまでの解析からは、下部成層圏における CH₄ の季節変動の位相が対流圏とはずれている様子や、全量の経年変化を見たときに 2007 年にステップ的に増加している様子が見られているが、講演では新しい解析結果を基にこれらを報告する。

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

AAS021-07

会場:102

時間:5月23日 10:00-10:15

日本上空の成層圏下部におけるメタン長期トレンド Long-term trend of methane concentration in the lower stratosphere over Japan

菅原 敏^{1*}, 中澤 高清², 青木 周司², 森本 真司³, 石戸谷 重之⁴

Satoshi Sugawara^{1*}, Takakiyo Nakazawa², Shuji Aoki², Shinji Morimoto³, Shigeyuki Ishidoya⁴

¹ 宮城教育大, ² 東北大院理大気海洋センター, ³ 国立極地研究所, ⁴ 産業技術総合研究所

¹Miyagi Univ. of Education, ²CAOS, Tohoku Univ., ³NIPR, ⁴AIST

Stratospheric methane acts as an important source of stratospheric water vapor and also a sink for chlorine radical. For predicting the future of the stratospheric chemistry and dynamics, as well as for evaluating strategies for limiting or reducing future emission of methane into the atmosphere, it is indispensable to figure out the past methane trend in both of stratosphere and troposphere accurately. Systematic collections of stratospheric air samples have been carried out over Japan since 1985, using a balloon-borne cryogenic sampler. The air samples collected were analyzed for the CH₄ and N₂O concentrations since 1988. Almost linear and compact relationship between CH₄ and N₂O concentrations was found for all observations. It is well known that tropospheric N₂O has been secularly increasing quite monotonously in recent decades. On the other hand, increase rate of tropospheric CH₄ has been varied complicatedly. Despite the fact that both concentrations have been increased independently in troposphere, there is no significant difference between the correlations of stratospheric CH₄ and N₂O concentrations in each year, at first glance. Considering this fact, the compact relationship obtained over Japan suggests that both CH₄ and N₂O are destroyed at similar rate in the lower stratosphere during the poleward transport of stratospheric air, although the chemical destruction processes of the two gases are quite different. Therefore, we employed N₂O-depressions, instead of N₂O concentrations, for examining correlations with CH₄ concentrations. This method cancels the effects of secular N₂O increase in stratosphere and enables us to detect possible change in stratospheric CH₄. Thus we found that stratospheric CH₄ shows a significant increase before 2000 and clear stagnation after 2000. We categorized CH₄ concentration data into different N₂O depression ranges, and calculated increase rates by applying the curve fitting procedure, taking into account the age of stratospheric air. Average increase rates were calculated to be about 0.4 and 0.1%/year before and after 2000, respectively, in the lower stratosphere. This rate is comparable with the results of 207 ppbv increase in the period of 1978 to 2003 in the lower stratosphere reported by Rohs et al.(2006). However, increase rate before 2000 obtained in this study is much smaller than the result of 1.95 and 0.87 %/year in 1985 and 1994, respectively, by ATMOS/ACE-FTS measurements (Rinsland et al., 2009).

キーワード: メタン, 成層圏, テレンド

Keywords: methane, stratosphere, trend

AAS021-08

会場:102

時間:5月23日 10:15-10:30

APOの季節変動の緯度分布と下部対流圏における子午面循環との関係 Latitudinal distribution of APO seasonal cycles and its relation to the meridional circulation in the lower troposphere

遠嶋 康徳^{1*}, 峰島 知芳¹, 向井人史¹, 町田 敏暢¹, 山岸 洋明¹, 野尻幸宏¹

Yasunori Tohjima^{1*}, Chika Minejima¹, Hitoshi Mukai¹, Toshinobu Machida¹, Hiroaki Yamagishi¹, Yukihiro Nojiri¹

¹ 国立環境研究所

¹ NIES

We examine the latitudinal differences in the phasing of the average seasonal cycles of the atmospheric potential oxygen ($\text{APO} = \text{O}_2 + 1.1 \times \text{CO}_2$), which is based on the atmospheric O_2 and CO_2 observations in the western Pacific region. Because APO is invariable with respect to the terrestrial biotic exchanges, its seasonal variations mainly reflect air-sea exchanges of O_2 . Investigating on the APO gives new insights into the meridional circulation because APO is a tracer from the ocean, which has very different flux distribution from those of land tracers. The seasonal minimum occurs in March and September in the Northern and Southern Hemispheres, respectively, and the latitudinal distribution of the date of the seasonal minimum shows discontinuous change at the equator. Contrary to this, the date of the seasonal maximum smoothly changes across the equator from March at 35 deg. S to July at 15 deg. N and levels off between 15 deg. N and 50 deg. N. The seasonal variation in APO is predominantly driven by the air-sea O_2 fluxes between 30-60 deg. in both hemispheres because seasonal variation in the air-sea O_2 fluxes in the equatorial regions are relatively small. Therefore, the seasonal cycles of APO in the tropics depend mainly on the meridional propagation of the atmospheric signals in the lower troposphere. The observational results indicate that the seasonal minima propagate equatorward with little phase lags in both hemispheres and the seasonal maximum propagate equatorward with a substantial phase lag in the Southern Hemisphere. These seasonal differences in the propagation speed could be explained by the strong and weak meridional circulation in winter and summer, respectively, in the lower troposphere. The latitudinal distribution of the date of the seasonal maximum in the Northern Hemisphere may be attributed to the influence of the propagation of the seasonal maximum in the Southern Hemisphere because the seasonal variations in the air-sea O_2 fluxes is about 2 times larger in the Southern Hemisphere than in the Northern Hemisphere.

キーワード: APO, 季節変動, 子午面循環, 大気酸素, 大気 海洋ガス交換

Keywords: APO, seasonal cycle, meridional circulation, atmospheric oxygen, air-sea gas exchange

Japan Geoscience Union Meeting 2011

(May 22-27 2011 at Makuhari, Chiba, Japan)

©2011. Japan Geoscience Union. All Rights Reserved.



AAS021-09

会場:102

時間:5月23日 10:45-11:00

札幌で採取したエアロゾル中の全炭素・水溶性炭素の ^{14}C 測定: 春・夏における Modern Carbon の増加

^{14}C measurements in suburban aerosols from northern Japan: An enhanced production of biogenic organic aerosols in spring

河村 公隆^{1*}, チャンドラ・モーリー・パブルリ¹, 内田昌男²
Kimitaka Kawamura^{1*}, Chandra Mouli Pavuluri¹, Masao Uchida²

¹ 北海道大学低温科学研究所, ² 国立環境研究所
¹Hokkaido University, ²NIES

札幌にて、大気エアロゾル試料を通年で採取し、エアロゾル炭素および水溶性炭素の放射性炭素を測定した。冬には、Dead Carbon の割合が増加し（最大で 60 %）たのにたいし、春には、Modern Carbon の割合が大きく増加し、植物からの影響が大きくなることがわかった。その傾向は、WSOC でより顕著であり、春の季節には、植物からの VOC の放出とその光化学的酸化による水溶性得有機エアロゾルの生成が活発に起こっていることを示唆した。

キーワード: エアロゾル, 放射性炭素, 全炭素, 水溶性炭素

Keywords: aerosols, radiocarbon, total carbon, water-soluble organic carbon

AAS021-10

会場:102

時間:5月23日 11:00-11:15

Significant contribution of isoprene oxidation products in summertime organic aerosols at the summit of Mt. Fuji, Japan

Significant contribution of isoprene oxidation products in summertime organic aerosols at the summit of Mt. Fuji, Japan

Pingqing Fu^{1*}, Kimitaka Kawamura¹, Shintaro Fujiwara¹, Yuzo Miyazaki¹
Pingqing Fu^{1*}, Kimitaka Kawamura¹, Shintaro Fujiwara¹, Yuzo Miyazaki¹

¹ILTS, Hokkaido University

¹ILTS, Hokkaido University

We investigated the organic molecular compositions and size distributions of the summertime aerosols collected at the summit of Mt. Fuji (3776 m, a.s.l.) using gas chromatography/mass spectrometry. More than 120 organic species were detected in the aerosols and grouped into different compound classes such as aliphatic lipids, sugars, phthalate esters, sterols, hydroxy/polyacids, and biogenic secondary organic aerosol (SOA) tracers for the photooxidation of isoprene (e.g., 2-methyltetrols), alpha/beta-pinene (e.g., pinic acid), and beta-caryophyllene (beta-caryophyllinic acid). Total concentrations of the identified organics were 76.1-325 ng m⁻³ (average 183 ng m⁻³) for the whole-day samples, which are more than 10 times higher than those in nighttime samples (9.28-19.2 ng m⁻³, average 15.6 ng m⁻³). Higher concentrations of both primary and secondary organic marker compounds were observed in the whole-day samples, indicating that the mountain venting at Mt. Fuji should act as an efficient pump that uplifts the ground-surface aerosols and their precursors to the free troposphere. Interestingly, isoprene SOA tracers (2.87 ng m⁻³ in nighttime and 69.2 ng m⁻³ in whole day) were found to be the most abundant compound class. 2-Methylerythritol and 2-methylthreitol, the well-known isoprene SOA tracers, were detected as the dominant single compounds. Using a tracer-based method, we estimated the concentrations of secondary organic carbon (SOC) derived from isoprene, alpha/beta-pinene, and beta-caryophyllene to be 2.16-51.2 ngC m⁻³ (15.5 ngC m⁻³) during the nighttime and 183-954 ngC m⁻³ (465 ngC m⁻³) during the whole day. These values correspond to 0.80-31.8% (12.5%) and 21.6-48.9% (31.9%) of the organic carbon (OC) concentrations in nighttime and the whole-day samples, in which isoprene-derived SOC accounts for 80% and 72% of total SOC, respectively. This indicates that a large amount of organic aerosols in the free troposphere should be derived from the oxidation of isoprene emitted from the forest areas on the foothills. Size distributions of the identified organics were unimodal in most cases. Biogenic SOA tracers (e.g., 2-methyltetrols and 3-hydroxyglutaric acid), levoglucosan and malic acid were detected in the fine mode, while sucrose and trehalose that are abundant in airborne pollen and dust aerosols peaked in the coarse mode. This study provides useful information to understand the sources and abundances of organic aerosols over high mountains in East Asia.

キーワード: organic aerosols, Mt. Fuji, levoglucosan, 2-methyltetrols, biogenic VOCs, isoprene

Keywords: organic aerosols, Mt. Fuji, levoglucosan, 2-methyltetrols, biogenic VOCs, isoprene

AAS021-11

会場:102

時間:5月23日 11:15-11:30

自然海水から生成する一次海洋エアロゾルの雲凝結核活性の野外実験による測定 A field experiment to determine the CCN activity of primary marine aerosols generated from natural seawater

岩本 洋子^{1*}, 持田 陸宏¹

Yoko Iwamoto^{1*}, Michihiro Mochida¹

¹ 名古屋大学高等研究院

¹IAR, Nagoya University

Oceanic surface waters contain a large amount of organic substances produced by marine biota, which are transferred to the atmosphere as primary marine aerosols (PMA) by bubble bursting processes. The organics potentially play an important role in regulating the physico-chemical properties of the PMA, including the cloud condensation nuclei (CCN) activity. Our current knowledge on the relationship of the organics in PMA and the particle properties is, however, still limited despite recent laboratory/field studies on PMA. To better characterize the CCN activity of PMA associated with the organics, we performed an experiment of particle production by the bubble bursting of natural seawater.

The experiment was conducted in Maizuru Bay, the Japan Sea, onboard R/V Ryokuyo-Maru, Maizuru Fishery Research Station, Kyoto University. The PMA generator, which floats on the sea, was prepared to produce aerosols by the bursting of air bubbles in natural seawater. The generator is equipped with a bubble-producing glass ball filter, through which compressed dry air was passed, at 30 to 40 cm below the air-sea interface. The bubbles rose to the sea surface and burst inside a 30 L PTFE dome. The generated PMA were transferred to the instruments onboard through PTFE tubing. Dried PMA was introduced to a differential mobility analyzer (DMA) for size selection, and the resulting monodisperse aerosol was transferred to a condensation particle counter and a continuous flow thermal gradient CCN counter to measure the number concentrations of condensation nuclei (CN) and CCN, respectively. The activation diameters (D_{act}) of the PMA at supersaturations ranging from 0.1% to 0.5% were calculated from the CCN to CN ratios. Surface seawater samples were also collected, which were used for the determination of chlorophyll-a (chl-a) concentrations.

The chl-a concentrations inside Maizuru Bay (IMB) were much higher than that outside Maizuru Bay (OMB). The D_{act} of the generated PMA at IMB and OMB were clearly different in particular at higher supersaturations (0.3% and 0.5%); D_{act} of PMA at IMB were larger than that of PMA at OMB. The hygroscopicity parameter kappa (Peters and Kreidenweis, 2007) calculated for the PMA at the highest supersaturation were lower than that of sodium chloride, suggesting that the PMA were the mixture of less hygroscopic organics and sea salts. The results suggest that organics in seawater transferred to the atmosphere as PMA are enriched especially in the ultrafine mode and affect the particle CCN activity.

Reference: Petters, M. D., and S. M. Kreidenweis (2007), A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos. Chem. Phys.*, 7(8), 1961-1971.

キーワード: 一次海洋エアロゾル, 雲凝結核, 有機物, 自然海水

Keywords: primary marine aerosols, cloud condensation nuclei, organics, natural seawater

2010年春季中国江蘇省 Rudong における大気成分総合集中観測：目的と初期成果 Intensive field observations of trace gases/aerosols in Rudong, China in spring 2010: Objectives and initial results

金谷 有剛^{1*}, Xiaole Pan¹, 竹谷 文一¹, 入江 仁士¹, 高島 久洋¹, 駒崎 雄一¹, 齊藤 伸治², 猪俣 敏², 谷本 浩志², Huabin Dong³, Jie Li³, Xiquan Wang³, Hongyan Chen³, Meigen Zhang³, Qingli Wang³, Guoshun Zhuang⁴, Bin Zhu⁵, Zifa Wang³, Yugo Kanaya^{1*}, Xiaole Pan¹, Fumikazu Taketani¹, Hitoshi Irie¹, Hisahiro Takashima¹, Yuichi Komazaki¹, Shinji Saito², Satoshi Inomata², Hiroshi Tanimoto², Huabin Dong³, Jie Li³, Xiquan Wang³, Hongyan Chen³, Meigen Zhang³, Qingli Wang³, Guoshun Zhuang⁴, Bin Zhu⁵, Zifa Wang³

¹ 海洋研究開発機構, ² 国立環境研究所, ³ 中国科学院大気物理研究所, ⁴ 復旦大学, ⁵ 南京信息工程大学
¹JAMSTEC, ²NIES, ³IAP/CAS, ⁴Fudan Univ, ⁵NUIST

中国中東部はオゾン・エアロゾルの前駆物質の排出量が大きく、また近年の発展による上昇が著しい地域と考えられ、国境を越えた地域規模汚染も懸念されているが、近年現地から入手できる観測データは限られている。我々は2010年5-6月、中国江蘇省如東（Rudong, 32.26N, 121.37E）にて、オゾンと前駆物質、エアロゾル化学成分・重量濃度・サイズ分布・光学パラメータを測定する集中観測を中国科学院大気物理研究所ほかと共同で実施した。観測場所は黄海の西に位置し、上海からは北へ100km、Rudong市街からは15km南東に離れている。本観測の主な目的は、上海方面からの大都市・バイオマス燃焼などの華中地域の発生源について、一次起源物質の濃度比などから特徴づけること、エアロゾルに関してPM2.5のマスクロージャーや化学特性と光学特性の整合性について解析し、対流圏化学輸送モデルによるPM2.5シミュレーションの評価や改良に資する情報を得ること、オゾン生成速度や制限因子などを解析し、その際にエアロゾルの影響を検討すること、その他各種装置の比較を通じて大気微量成分等の観測技術を向上させることである。得られた観測データから、観測期間は、5/15-28の都市的な汚染が見られた期間、5/29-6/9の東風が卓越し清浄な期間、6/10-24の冬小麦収穫後のバイオマス野外燃焼の影響が見られた期間に大別されることがわかった。BC/CO比はバイオマス燃焼により増大する傾向が見られ、エミッションインベントリや過去の泰山観測と整合的な結果が得られた。観測期間中、Rudongから福江島（32.75N, 128.68E）へ大気が輸送されるイベントを複数回捉え、両地点で観測されたブラックカーボン濃度等を対応づけることができた。Rudongではオゾン光化学に重要なJ値（光解離速度定数）がエアロゾルの存在によって顕著に弱められていることが確認された。エアロゾル散乱係数の湿度依存性とエアロゾル化学成分との関係を解析し、前年に福江で観測した結果と比較した。また複数の方法によるブラックカーボン濃度測定比較の結果では、過去に他点（福江、泰山など）で得られたものと同様の大小関係が見られ、測定の不確かさを減少させ整合性を向上させるために重要なデータが得られた。

キーワード: 中国, オゾン, エアロゾル, 集中観測

Keywords: China, ozone, aerosol, intensive field observation

AAS021-13

会場:102

時間:5月23日 11:45-12:00

2010年春季における福江島および中国如東でのPM2.5濃度変動 PM2.5 variation in Rudong, China and Fukue Island, Japan in spring 2010

竹谷 文一^{1*}, 金谷 有剛¹, Xiaole Pan¹, 高島 久洋¹, 入江 仁士¹, 駒崎雄一¹, 斉藤伸治², 猪俣 敏², 谷本 浩志², Huabin Dong³, Baozhu Ge³, Jie Li³, Xiquan Wang³, Hongyan Chen³, Meigen Zhang³, Zifa Wang³
Fumikazu Taketani^{1*}, Yugo Kanaya¹, Xiaole Pan¹, Hisahiro Takashima¹, Hitoshi Irie¹, Yuichi Komazaki¹, Shinji Saito², Satoshi Inomata², Hiroshi Tanimoto², Huabin Dong³, Baozhu Ge³, Jie Li³, Xiquan Wang³, Hongyan Chen³, Meigen Zhang³, Zifa Wang³

¹ 海洋研究開発機構, ² 国立環境研究所, ³ 中国科学院大气物理研究所

¹JAMSTEC, ²NIES, ³IAP

We carried out an intensive field campaign observing ozone and its precursors and chemical components/physical and optical parameters of aerosol particles at Rudong (32.26N, 121.37E), Jiangsu, China in May/June 2010. In this presentation, to investigate the PM2.5 mass concentration, their composition and correlation in both Rudong and Fukue Island(32.75N, 128.68E), we observed PM2.5 mass concentration using SHARP monitor and sampled PM2.5 on the quartz filter by high volume air sampler. PM2.5 total mass concentration is monitored every 1 min for both sites. At the Rudong site(May16-June23), 9 or 14-hours PM2.5 samples were collected on the quartz filters using High-volume(500L/min) sampler, while 22-hours PM2.5 samples were collected at the Fukue Island site(May18-25). In the end of May, high PM2.5 mass concentrations were observed in both Rudong and Fukue Island. We are going to discuss mass closure and correlation of the PM2.5 for Rudong and Fukue Island results.

Keywords: PM2.5, aerosol, composition, transportation, mass closure

AAS021-14

会場:102

時間:5月23日 12:00-12:15

新粒子生成のエアロゾル数濃度および雲凝結核濃度への影響：北京域における数値モデル計算

Impact of new particle formation on the concentrations of aerosol number and cloud condensation nuclei around Beijing

松井 仁志^{1*}, 小池 真², 近藤 豊¹, 竹川 暢之¹

Hitoshi Matsui^{1*}, Makoto Koike², Yutaka Kondo¹, Nobuyuki Takegawa¹

¹ 東京大学先端科学技術研究センター, ² 東京大学大学院理学系研究科

¹ RCAST, The University of Tokyo, ² The University of Tokyo

新粒子生成 (New particle formation, NPF) は大気中のエアロゾル数濃度 (CN 数) および雲凝結核濃度 (CCN 数) を決定する上で最も重要なプロセスの 1 つである。本研究では、新粒子の生成と成長を理論的に計算する領域 3 次元モデル (NPF-explicit WRF-chem モデル) を開発した。本モデルはエアロゾルの粒径を直径 1 nm から 10 μ m まで 20 のビンにわけて表現し、近年提唱された粒子生成メカニズム (Activation-type nucleation mechanism, Kulmala et al., 2006) を用いている。

NPF-explicit WRF-chem モデルを 2006 年の 8~9 月に北京で行われた地上集中観測 (CARE-Beijing 2006 キャンペーン) の期間に適用した。モデル計算は観測の新粒子生成イベントのタイミングと新粒子の 100 nm 付近までの急速な成長を概ね良く再現した。新粒子生成イベントは、北京周辺域を寒冷前線が通過し北から清浄大気が流入する期間 (sweeping periods) に頻りに観測・計算された。一方で、北京周辺域が高気圧におおわれ微量気体成分やエアロゾルが蓄積し高濃度になる期間 (stagnant periods) にはあまり観測・計算されなかった。この気象条件による新粒子生成イベントの頻度の違いは、各期間の新粒子の凝縮成長 (硫酸ガス濃度に比例) と凝集除去 (既存粒子の表面積に比例) の速度の違いによって説明できる。本研究の結果は、1 nm 付近での現実的な粒子生成量が与えられれば、新粒子生成イベントのタイミング (新粒子生成が起こった日と起こらなかった日の違い) と新粒子の成長を、凝縮・凝集過程の計算によって表現可能であることを示している。

北京における計算期間中の CN 数 (10 nm 以上) に対する新粒子生成の寄与は 20% 程度であると見積もられた。この寄与は新粒子生成が起こる日中 (12~16 時) に最大となり、新粒子生成が起こった日では 73%、起こらなかった日は 17% と見積もられた。新粒子生成の CCN 数への影響は、過飽和度 (S) に依存して異なり、高過飽和度 ($S > 0.2\%$) では CCN 数を増加させる効果 (最大 100~200%) を持つのに対し、低過飽和度 ($S < 0.1\%$) では CCN 数を減少させる効果 (最大 50%) を持っていた。低過飽和度で CCN 数を減少させる主要な要因としては、新粒子生成に伴って新粒子と既存粒子との間で気体の凝縮過程の競合が起こり、既存粒子の成長およびその吸湿特性パラメータの増加が抑制されることが考えられる。

また、一次粒子 (ブラックカーボン、一次有機エアロゾル) の排出量の変化に対する新粒子生成および CN・CCN 数の感度を見積もる感度実験を行った。本発表では、それらの結果についても紹介する予定である。

キーワード: 新粒子生成, エアロゾル数濃度, 雲凝結核濃度, 領域 3 次元モデル, メガシティ

Keywords: New particle formation, Aerosol number concentration, Cloud condensation nuclei, Regional three-dimensional model, Mega city

AAS021-15

会場:102

時間:5月23日 12:15-12:30

大気エアロゾルの地上観測とCALIOPデータ及びSPRINTARSモデルとの比較(その1): ピマイの雨期のダスト

Comparison of aerosols among surface measurements, CALIOP data, and the SPRINTARS model(I): Sources of dust at Phimai

鶴田 治雄^{1*}, 及川栄治¹, 渡辺周吾¹, 井上豊志郎¹, 五藤大輔¹, 竹村俊彦², 杉本伸夫³, 世良耕一郎⁴, 須藤重人⁵, 米村正一郎⁵, 白砂裕一郎⁶, 平野耕一郎⁶, 早坂忠裕⁷, 中島映至¹

Haruo Tsuruta^{1*}, Eiji Oikawa¹, Syugo Watanabe¹, Toshio Inoue¹, Daisuke Goto¹, Toshihiko Takemura², Nobuo Sugimoto³, Koichiro Sera⁴, Shigeto Sudo⁵, Seiichiro Yonemura⁵, Yuichiro Shirasuna⁶, Koichiro Hirano⁶, Tadahiro Hayasaka⁷, Teruyuki Nakajima¹

¹ 東京大学大気海洋研究所, ² 九州大学応用力学研究所, ³ 国立環境研究所, ⁴ 岩手医科大学サイクロトンセンター, ⁵ 農業環境技術研究所, ⁶ 横浜市環境科学研究所, ⁷ 東北大学大気海洋変動観測研究センター

¹AORI, University of Tokyo, ²RIAM, Kyusyu University, ³NIES, ⁴CRC, Iwate Medical University, ⁵NIAES, ⁶Yokohama Environment Research Institute, ⁷CAOS, Tohoku University

タイのピマイでの大気エアロゾルについて、今回は、1年間の地上観測結果とSPRINTARSモデル結果との比較を報告した。土壌系粒子(以後、ダストと記す)については、地上測定データの解析から、乾期の前半は東アジア特に中国東部からの、後半はバイオマス燃焼に伴うインドシナ半島のダストが輸送されたが、雨期のダストは、乾期に比べて低濃度だったが、時々高濃度が測定された。本研究の目的は、その高濃度のダストの発生源が、その地域周辺なのかあるいは長距離輸送によるものかを明らかにすることである。そこで、衛星搭載ライダーCALIOPのダストエアロゾル(<http://www-calipso.larc.nasa.gov/data/BROWSE/production/V3-01/>)を、国環研のLIDARデータ(<http://www-lidar.nies.go.jp/Phimai/archives/>)、地上測定結果およびSPRINTARSモデル結果(<http://sprintars.riam.kyushu-u.ac.jp/archivej.html>)と比較した。地上測定によれば、2008年6月17-6月20日の大気エアロゾル中には、Si、Al、Feなどの土壌系粒子が、乾期の3月初旬に黄砂の一部が飛来した時に匹敵する高濃度になった。一方、6月中旬(6月14-20日)のCALIOPによるダストは、サウジアラビアからソマリア付近、パキスタンからアラビア海、バングラディッシュからベンガル湾にかけての南北方向に常時観測され、鉛直方向の高さは最大7kmにも達した。また、LIDARデータによれば、6月15-17日に地表付近から高度2-3kmまで高濃度のダストが観測された(6月18日以後欠測)。なお、NOAAのHYSPLIT MODELの後方流跡線解析結果(<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>)によれば、6月17-20日にピマイに到達した大気塊は、下層ではベンガル湾上空から数日後に、また高度2-4kmでは真西のアフリカ東岸上空から約1週間かけて到達した。一方、SPRINTARSモデルによれば、6月14日以後地表から高度2-3kmまで高濃度のダスト層が存在し、水平方向には、北アフリカ東岸から西アジア、インドおよびベンガル湾上空にかけて広範囲に存在し、その東端はインドシナ半島上空にまで達していた。これらから、ピマイでの雨期には、局地的なダストだけでなく、西アジア付近の砂漠地帯で発生したダストが、長距離輸送されていたことが強く示唆された。

キーワード: 大気エアロゾル, ダスト, CALIOP, ライダー, 長距離輸送, SPRINTARS モデル

Keywords: atmospheric aerosol, dust, CALIOP, LIDAR, long range transport, SPRINTARS model

AAS021-16

会場:102

時間:5月23日 12:30-12:45

南極昭和基地への黒色炭素の長距離輸送と起源の推定

Simulating black carbon at Syowa station, Antarctica: long-range transport from various source regions

須藤 健悟^{1*}, 遠藤寛也¹, 竹村 俊彦²

Kengo Sudo^{1*}, Hiroya Endo¹, Toshihiko Takemura²

¹名古屋大学環境学研究科, ²九州大学応用力学研究所

¹Nagoya University, ²Kyushu University

本研究では、全球化学・エアロゾル気候モデル CHASER-SPRINTARS を用いて、黒色炭素 (BC) 粒子の南極域への長距離輸送を詳しく評価した。BC は、化石燃料の燃焼や森林火災によって放出される、すすと呼ばれるエアロゾル粒子であり、大気汚染物質としてだけでなく、温室効果や雪氷の融解に寄与する気候影響物質として、重要性が指摘されている。南極での BC 濃度としては、昭和基地 (69.0°S, 39.6°E) における連続観測によるデータを対象として、検討を行った。BC の輸送評価にあたって、既存のモデルは特に極域での BC 濃度を通年で顕著に過小評価する傾向にあることがわかり、モデル内で BC の長距離輸送過程が適切に表現されていない可能性が示唆された。この原因としては、BC の地表からの放出過程や降水による除去過程についてのモデル不確定性が考えられる。そこで、本研究ではまず、南極域での BC の過小評価傾向を低減させるため、疎水性 BC の CCN (雲凝結核) 活性度を小さくしたり、BC 放出時点での、全 BC に対する疎水性 BC の比率を増加させたりするなどの感度実験を行い、モデル内での BC 長距離輸送の再現性の向上を試みた。その結果、南極・昭和基地における BC の濃度レベルは観測と一致させることができたが、観測で見られるような、冬季に増加し夏季に減少するという BC 濃度の季節性を再現することはできなかった。遠隔地での BC の季節性には、aging 効果 (疎水性の BC が、長距離輸送の過程で硫酸塩などの水溶性エアロゾルによって周囲を被覆され、親水性の BC に変質する効果) の重要性が他の研究により指摘されている。そこで、本研究でも BC の aging 過程を新たにモデルに導入し実験を行った。これにより、BC の濃度レベルだけでなく、季節性も再現することができた。以上より、BC の遠隔地への長距離輸送過程には、大気輸送場だけでなく、BC の混合状態や降水による除去、さらに aging 効果がそれぞれ重要な役割を果たしていることが判明した。次に、本モデルを用いてタグ付きトレーサー実験を行い、南極・昭和基地へ輸送される BC の起源およびその輸送経路を推定した。昭和基地での BC は、年間平均では、南米起源 (約 50%)、南アフリカ起源 (約 20%)、オーストラリア起源 (15~20%) の順に寄与が大きいことが分かった。それぞれの発生源からの輸送経路に関しては、地表から高度 3 km までの下部対流圏を経由して南極・昭和基地に輸送される事例と、対流圏界面付近まで上昇した後、上部対流圏~下部成層圏を経由して南極大陸上空まで運ばれ、カタバ風によって南極・昭和基地に輸送される事例が確認された。

キーワード: 黒色炭素, 南極, 長距離輸送, 化学輸送モデル

Keywords: Black Carbon, Antarctic, Long-range Transport, Chemical Transport Model

AAS021-17

会場:102

時間:5月23日 14:15-14:30

PTR-MSを用いた海洋表層における揮発性有機化合物のプロセス研究 Process study of volatile organic compounds in surface seawater using PTR-MS

谷本 浩志^{1*}, 亀山 宗彦², 猪俣 敏¹, 角皆 潤², 岩田 徹³, 奥沢 和浩¹, 植松 光夫⁴

Hiroshi Tanimoto^{1*}, Sohiko Kameyama², Satoshi Inomata¹, Urumu Tsunogai², Toru Iwata³, Kazuhiro Okuzawa¹, Mitsuo Uematsu⁴

¹ 国立環境研究所, ² 北海道大学, ³ 岡山大学, ⁴ 東京大学

¹Natl Inst Environ Studies, ²Hokkaido Univ, ³Okayama Univ, ⁴Univ Tokyo

We developed an equilibrator inlet-proton transfer reaction-mass spectrometry (EI-PTR-MS) method for fast detection of dimethyl sulfide (DMS) and volatile organic compounds (VOCs) dissolved in seawater. Dissolved DMS and VOCs extracted by bubbling pure nitrogen through the sample were continuously directed to the PTR-MS. DMS and several other VOCs reached equilibrium with an overall response time of minutes. The detection limit for DMS was 50 pmol L⁻¹ at 5-s integration. The EI-PTR-MS instrument was deployed during a research cruise in the western North Pacific Ocean. For DMS and VOCs, comparison of the EI-PTR-MS results with results obtained by means of membrane tube equilibrator-gas chromatography/mass spectrometry agreed reasonably well on average. EI-PTR-MS captured temporal variations of dissolved DMS and VOCs concentrations, including elevated peaks associated with patches of high biogenic activity. These results demonstrate that EI-PTR-MS was effective for highly time-resolved measurements of DMS and VOCs in the open ocean. Further measurements will improve our understanding of the biogeochemical mechanisms of the production, consumption, and distribution of DMS and VOCs in the ocean surface.

キーワード: 揮発性有機化合物, 硫化ジメチル, 海洋表層, PTR-MS, SOLAS, 生物地球化学

Keywords: volatile organic compounds, DMS, surface seawater, PTR-MS, SOLAS, biogeochemistry

AAS021-18

会場:102

時間:5月23日 14:30-14:45

MAX-DOAS 法による 8 成分導出手法の開発 Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations

入江 仁士^{1*}, 高島 久洋¹, 金谷 有剛¹, Folkert Boersma², Lou Gast³, Folkard Wittrock⁴, Dominik Brunner⁵, Yipin Zhou⁵, Michel Van Roozendaal⁶

Hitoshi Irie^{1*}, Hisahiro Takashima¹, Yugo Kanaya¹, Folkert Boersma², Lou Gast³, Folkard Wittrock⁴, Dominik Brunner⁵, Yipin Zhou⁵, Michel Van Roozendaal⁶

¹ 海洋研究開発機構, ²KNMI, ³RIVM, ⁴University of Bremen, ⁵Empa, ⁶BIRA

¹JAMSTEC, ²KNMI, ³RIVM, ⁴University of Bremen, ⁵Empa, ⁶BIRA

We attempt for the first time to retrieve lower-tropospheric vertical profile information for 8 quantities from ground-based Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) observations. The components retrieved are the aerosol extinction coefficients at two wavelengths, 357 and 476 nm, and NO₂, HCHO, CHOCHO, H₂O, SO₂, and O₃ volume mixing ratios. A Japanese MAX-DOAS profile retrieval algorithm, version 1 (JM1), is applied to observations performed at Cabauw, the Netherlands (51.97N, 4.93E), in June-July 2009 during the Cabauw Intercomparison campaign of Nitrogen Dioxide measuring Instruments (CINDI). Of the retrieved profiles, we focus here on the lowest-layer data (mean values at altitudes 0-1 km), where the sensitivity is usually highest owing to the longest light path. In support of the capability of the multi-component retrievals, we find reasonable overall agreement with independent data sets, including a regional chemical transport model (CHIMERE) and in situ observations performed at the 3- and 200-m height levels of the tall tower in Cabauw. Plumes of enhanced HCHO and SO₂ were likely affected by biogenic and ship emissions, respectively, and an improvement in their emission strengths is suggested for better agreement between CHIMERE simulations and MAX-DOAS observations. Analysis of air mass factors indicates that the horizontal spatial representativeness of MAX-DOAS observations is about 3-15 km (depending mainly on aerosol extinction), comparable to or better than the spatial resolution of current UV-visible satellite observations and model calculations. These demonstrate that MAX-DOAS provides multi-component data useful for the evaluation of satellite observations and model calculations and can play an important role in bridging different data sets having different spatial resolutions.

キーワード: MAX-DOAS, リトリバル, 多成分, エアロゾル, オゾン

Keywords: MAX-DOAS, retrieval, multi-component, aerosol, ozone

AAS021-19

会場:102

時間:5月23日 14:45-15:00

東アジアにおける近年の排出量変化に対するオゾントレンドと線形性 Regional O₃ trend and its chemical linearity in recent anthropogenic emissions change over East Asia

山地 一代^{1*}, 入江 仁士¹, 鶴野 伊津志²
Kazuyo Yamaji^{1*}, Hitoshi Irie¹, Itsushi Uno²

¹ 独立行政法人海洋研究開発機構地球環境, ² 九州大学
¹JAMSTEC, ²Kyushu University

Regional O₃ response to perturbations of Chinese anthropogenic emissions is investigated using the brute force method by a regional chemical transport model. Both springtime and summertime ozone responses are unlikely to show nonlinearly in the emissions perturbation of 70%?200% over East Asia. Observed NO₂ in the east central China in 2003?2008 is ranging within a factor of 0.82?1.35 of the 2004 level, and that explains recent O₃ change stays within the linear O₃ response range. As for observed O₃ at Japanese remote sites, the O₃ response is 11.7 ppbv with respect to a 100% increase at the east central China from NO₂ level in 2004. The simulated relationship between O₃ and NO₂ shows 5.9 ppbv of O₃ growth is caused by doubled NO₂ from the 2004 level.

キーワード: 対流圏オゾン, 化学線形性, 排出量, 東アジア
Keywords: tropospheric O₃, chemical linearity, emissions, East Asia

2006年エルニーニョ時に東南アジアのバイオマス燃焼から放出された一酸化炭素の挙動解析

CO emissions from biomass burning in Southeast Asia in the 2006 El Nino year: Shipboard and AIRS satellite observations

奈良 英樹^{1*}, 谷本浩志¹, 野尻幸宏¹, 向井人史¹, 曾繼業¹, 遠嶋康德¹, 町田敏暢¹

Hideki Nara^{1*}, Hiroshi Tanimoto¹, Yukihiro Nojiri¹, Hitoshi Mukai¹, Jiye Zeng¹, Yasunori Tohjima¹, Toshinobu Machida¹

¹ 国立環境研究所

¹NIES

[Introduction]

During the dry season (October-November) in the 2006 ENSO year, we observed substantial CO enhancement over the western tropical Pacific by shipboard observations routinely operated between Japan and Australia/New Zealand. In this presentation, we present evidence of CO pollution episodes over the tropical Pacific due to intensive biomass fires in Southeast Asia and north Australia during 2006 El Nino year. We discuss locations of CO emissions from fires followed by long-range transport by combination of in-situ ship measurements, Atmospheric Infrared Sounder (AIRS) satellite observations, and Lagrangian particle dispersion model (FLEXPART).

[Method]

Beginning in November 2005, continuous monitoring of atmospheric trace gases has been initiated by using a commercial cargo vessel, M/V Transfuture 5 (TF5) (owned by Toyofuji Shipping Co. Ltd.). The ship takes regular service among ports of Japan, Australia and New Zealand with the 6 weeks interval, covering subtropical latitudinal region over North and South Pacific. The shipping route of TF5 is shown in Figure. Automated instruments were installed into an observation room for in situ measurements of CO, CO₂ and O₃.

[Result & Discussion]

Abnormal enhancements in CO were observed between 15N and the Equator during the southbound voyage (Episode 1), and around the Equator (Episode 2) during the northbound voyage, which had large impact on the seasonal variations of CO in the tropical Pacific. During Episode 1, AIRS satellite images and Global Fire Emissions Database version 2.1 (GFEDv2.1) suggested that the CO plume originated from biomass burning in Borneo and Sumatra followed by long-range transport to the tropical Pacific region. The amplitude of observed CO enhancement during Episode 2 was much smaller than that during Episode 1. Simulations by FLEXPART showed well consistent results with our analysis, which provides a reasonable interpretation of the data, complimenting in situ and satellite observations.

Correlations of CO to CO₂ and of O₃ to CO observed during two episodes were also examined. Scatter plots of CO versus CO₂ during Episode 1 showed significant correlation ($R^2 = 0.60$) with a steep dCO/dCO_2 slope (171 ± 31 ppbv/ppmv at the 95% confidence interval). The dCO/dCO_2 ratio observed was higher than previously reported for savanna and grassland (63 ± 20 ppbv/ppmv), tropical forest (103 ± 21 ppbv/ppmv), and slightly higher than Indonesian peatland fires 142.7 ppbv/ppmv, indicating that Indonesian fires including peat soil burning are a dominant factor during Episode 1. Comparison between the dCO/dCO_2 ratio and CO/CO₂ emission ratios from GFEDv2.1 suggests the uncertainty in CO emissions of GFEDv2.1 in Southeast Asia region associated with peatland fires. Significant O₃-versus-CO correlation was observed only for Episode 1 ($R^2 = 0.68$). The dO_3/dCO ratio (0.05 ± 0.01 ppbv/ppbv) was considerably smaller than values reported in previous observations in this region, which suggests that net O₃ production was not efficient in the burning plumes transported in the lower troposphere over the western tropical north Pacific. The reason for low dO_3/dCO ratio is not clear, but is likely associated with combustion properties of the peat and/or meteorological condition during the transport, both of which are specific to Southeast Asia region. Further research is needed to understand the low dO_3/dCO ratio in the long-range transport of the burning plumes over western tropical north Pacific in the lower troposphere.

Keywords: Carbon monoxide, Voluntary observing ship, AIRS, Southeast Asia, Biomass burning

AAS021-21

会場:102

時間:5月23日 15:15-15:30

長期的物質輸送モデルの開発及びチェルノブイリ原発事故と桜島火山の事例による検証

Development of the long-term mass transport model and verification by Chernobyl accident and Sakurajima volcano

佐藤 真登^{1*}

Masato Sato^{1*}

¹ 筑波大学大学院システム情報工学研究科

¹ Graduate School University of Tsukuba

近年、環境汚染問題が社会問題として数多く取り上げられている。大気汚染はその代表的な一つである。大気汚染の事例は世界各地で確認されており、著しく健康被害を被る事例も存在する。なかにはチェルノブイリ原発事故による放射性核種による汚染や、火山周辺地域での火山ガス暴露など、長期的な予測や動向の把握が必要な事例も存在する。さらに現在、大気環境の予測事例として最も関心が高いと思われるCO₂の濃度変化については数十年先の動向まで予測することが求められており、長期的な予測が求められてきているといえる。

大気汚染状況の予測や現状の把握のために、大気中の物質拡散を表すモデルは今まで研究されている。最も広く用いられているものとしてガウシアンブルームモデルが挙げられる。しかしながら、ガウシアンブルームモデルをはじめとする多くのモデルが長期的な予測を行うことを前提としていない。

本研究では今まで十分な研究がされてこなかったといえる長期的な予測ができるモデルを提案し、実際に観測された大気中濃度とのフィッティングを行い、モデルの適用可能性を検証する。

本研究で提案する長期予測モデルは、移流方程式を基とした支配方程式に対して、数学的な手法を用いて解析解を導出したモデルである。基となる支配方程式は以下の式である。

$$dC/dt + \{(v_x)d/dx + (v_y)d/dy\}C + \text{env}C + \text{decay}C = P(x, y, t)$$

C は大気中の濃度、 t は基準となる時点からの経過日数、 v はそれぞれの方向の風による移流速度、 env は環境による取り込み、 decay は物理崩壊による減少をしめしている。 P が物質の放出を表す項であり、 P によってモデルの解析解は大きく異なる。

本研究では、 P の特徴によって大気汚染事例を4つに大別した。汚染源の形状が点源であるか面源であるか、さらにその放出の特徴が瞬間的なものか継続的なものであるかで分類した。

フィッティングを行う事例によって P を決定し、解析解を導出する。フィッティングを行ったのは、チェルノブイリ原発事故によって放出された放射性核種の大気中濃度と、桜島火山から放出されたSO₂の大気中濃度についてである。

チェルノブイリ原発事故の事例は点源瞬間放出に分類し、桜島の事例は点源継続放出と分類をしたので、モデルの導出はその2つの事例について行った。点源瞬間放出の場合は $P = P(x, y, t)$ と定義し、解析解の導出を行った。その結果、最終的に得られる解は

$$C(t) = A \exp(-\text{decay} \cdot t)$$

と導出でき、 A と t はフィッティングパラメータとなる。

また点源継続放出の場合は $P = P(x, y) \{P_1(t) + \dots + P_n(t)\}$ という噴火の時間によって関数を足し合わせるという形で定義した。この場合は最終的に得られる解はフーリエ変換を含んだ形となっており、パラメータの決定のみでは計算ができないため、Mathematicaによる計算を行い、結果を算出した。

チェルノブイリ原発事故とのフィッティング結果は、汚染源40 km圏内における21地点でのCs-137の大気中濃度データとのフィッティングに成功した。5000日程度の年間平均濃度の変化を再現することができ、モデルの長期予測に対する適応性を示すことができた。さらにその他の放射性核種、Sr-90、Ru-106、Ce-144についても汚染源3 km圏内の4地点でのフィッティングに成功し、3000?5000日程度の年間平均濃度の変化を再現することができ、核種によらずモデルの有効性が示された。

また桜島から放出されたSO₂との比較結果は、桜島による影響を最も大きく受けている有村観測局の観測データにおいて2002年から2008年の期間でフィッティングに成功した。火山口でのSO₂の継続的な観測は行われていない上、誤差も大きいと考えられるが、データが充分にあると判断した上記の期間でフィッティングを行った。その結果、±0.005の誤差で年間平均濃度の変化を再現することができた。

以上の2つの事例によって、今回提案したモデルが長期的な濃度変化の再現に適用できたことから、さらに複雑な事

例 (面源での継続的放出) での使用も可能である可能性が高いといえる。

キーワード: 長期物質輸送モデル, チェルノブイリ, 桜島火山, 大気汚染, 拡散予測

Keywords: long-term mass transport model, Chernobyl, Sakurajima volcano, air pollution, dispersion predicting

AAS021-22

会場:102

時間:5月23日 15:30-15:45

Variations of atmospheric radon-222 at Rishiri Island, Japan and traced fetch regions Variations of atmospheric radon-222 at Rishiri Island, Japan and traced fetch regions

Chunmao Zhu^{1*}, Hisayuki Yoshikawa¹, Hidekadzu Matsueda², Yosuke Sawa², Yosuke Niwa², akira WADA³, Hiroshi Tanimoto⁴
Chunmao Zhu^{1*}, Hisayuki Yoshikawa¹, Hidekadzu Matsueda², Yosuke Sawa², Yosuke Niwa², akira WADA³, Hiroshi Tanimoto⁴

¹Grad. School Env. Sci., Hokkaido Univ., ²Geochem. Res. Div., Meteor. Res. Inst., ³Meteor. College, ⁴National Inst. Env. Studies

¹Grad. School Env. Sci., Hokkaido Univ., ²Geochem. Res. Div., Meteor. Res. Inst., ³Meteor. College, ⁴National Inst. Env. Studies

Measurements of atmospheric ²²²Rn were made on Rishiri Island (45.1°N, 141.2°E) over the period from December 2008 to December 2010, in order to discuss the fetch regions affecting atmospheric ²²²Rn concentration and some other gases related to climate change. Atmospheric ²²²Rn data showed variability of a diurnal, synoptic, and seasonal time scales, which will allow us to evaluate transport and mixing schemes of atmospheric and chemical transport models.

Atmospheric ²²²Rn concentration indicated a clear diurnal variation in summer, which was characterized of a maximum appearing before the dawn and a minimum in the afternoon, with amplitude of 0.64 Bq m⁻³. This could be caused by the accumulation of ²²²Rn emitted from the soil (Rishiri Island) in the stable nocturnal boundary layer, and vertical mixing of surface air with upper air due to convection (Zahorowski *et al.*, 2008). The amplitude of diurnal variation is relatively lower than that of the synoptic influence. No clear diurnal variation occurred during the remaining seasons.

Atmospheric ²²²Rn concentration in daytime, selected to remove effects of local source on ²²²Rn concentration, showed a broad minimum in winter and a maximum in summer, with an accompanying significant short-term variability. In February monthly mean of atmospheric ²²²Rn concentration was 3.23 Bq m⁻³, and in July 0.95 Bq m⁻³. In Rishiri Island, short-term variations corresponding to the synoptic influence were large in February as compared with those in July. The amplitude of the seasonal variation (2.28 Bq m⁻³) was somewhat larger than that of Sado Island located in the Sea of Japan. At Sado Island, maximum ²²²Rn concentration occurred in winter and minimum in summer, which was the pattern attributable to the onshore-offshore pattern of the Asian monsoons (Chambers *et al.*, 2009).

Backward trajectory analysis of air fetch regions was conducted using extremely low and high radon events. In the annual basis, most (76.7%) of high radon events was observed in winter, of which the air masses originated predominately from 40°N to 60°N of Eurasian continent. 41.7% of low radon events were observed in summer, of which air masses usually originated from the relatively lower latitude of the western North Pacific, and 48.3% of low radon events were observed in spring, most in May. In May, back trajectory analysis showed a pattern that the origin of air masses was in the west North Pacific, and air mass moved westward en route the southernmost of Sea of Okhotsk to the RIO.

キーワード: atmospheric tracer, back trajectory analysis, fetch regions, radon

Keywords: atmospheric tracer, back trajectory analysis, fetch regions, radon

Japan Geoscience Union Meeting 2011

(May 22-27 2011 at Makuhari, Chiba, Japan)

©2011. Japan Geoscience Union. All Rights Reserved.



AAS021-23

会場:102

時間:5月23日 15:45-16:00

SMILES で観測した中層大気の夜間ラジカル化学 Night time radical chemistry observed by SMILES

笠井 康子¹, バロン フィリップ^{1*}, 佐川 英夫¹, 村田道成², ジョーウルバン², BrO team in SMILES Algorithm team¹
YASUKO KASAI¹, Philippe Baron^{1*}, Hideo Sagawa¹, Donal Murtagh², Joachim Urban², BrO team in SMILES Algorithm team¹

¹ 情報通信研究機構, ² チャルマス工科大学

¹NICT, ²Chalmers Institute of Technology

A new generation of super-sensitive submillimeter-wave receivers, employing SIS (Superconductor-Insulator- Superconductor) technology, will provide new opportunities for precise remote sensing observation of minor constituents in the atmosphere. SMILES had been launched at 11/09/2009, and installed on the Japanese Experiment Module (JEM) in the International Space Station (ISS). SMILES is a collaboration project between NICT and JAXA.

Mission objectives of SMILES are:

- i) Space demonstration of super-sensitive SIS mixer and 4-K mechanical cooler technology
- ii) Demonstration of super-sensitive global observation of atmospheric minor constituents

JEM/SMILES observes the atmospheric species such as O₃, H₃₅Cl, H₃₇Cl, ClO, HO₂, BrO, HOCl, HOBr, HNO₃, CH₃CN, Ozone isotope species, H₂O, and Ice Cloud with the precisions in a few to several tens percents. We will present the diurnal variation of the minor radical such as BrO, HO₂.

キーワード: サブミリ波, SMILES, BrO

Keywords: SMILES, BrO

Japan Geoscience Union Meeting 2011

(May 22-27 2011 at Makuhari, Chiba, Japan)

©2011. Japan Geoscience Union. All Rights Reserved.



AAS021-24

会場:102

時間:5月23日 16:00-16:15

SMILESによる一酸化塩素ラジカルの日変化観測 Diurnal variation of ClO observed with SMILES

小野寺 悠^{1*}, 佐藤 知紘³, バロン フィリップ², 笠井 康子², Eric Dupuy², 北 和之¹, Joachim Urban⁴, Donal Murtagh⁴, Nathaniel Livesey⁵

Yu Onodera^{1*}, Tomohiro Sato³, Philippe Baron², YASUKO KASAI², Eric Dupuy², Kazuyuki Kita¹, Joachim Urban⁴, Donal Murtagh⁴, Nathaniel Livesey⁵

¹ 茨城大学, ² 情報通信研究機構, ³ 東京工業大学, ⁴ Chalmers U. of Technology, ⁵ NASA/JPL

¹ Ibaraki University, ² NICT, ³ Tokyo Institute of Technology, ⁴ Chalmers U. of Technology, ⁵ NASA/JPL

A new generation of super-sensitive submillimeter-wave receivers, employing SIS (Superconductor-Insulator- Superconductor) technology, will provide new opportunities for precise remote sensing observation of minor constituents in the atmosphere. SMILES had been launched at 11/09/2009, and installed on the Japanese Experiment Module (JEM) in the International Space Station (ISS). SMILES is a collaboration project between NICT and JAXA.

SMILES has observed the diurnal observation of ClO, HOCl, HO₂, and HCl from October 12, 2009 to April 21, 2010. We will present 1) the result of the evaluation of ClO data quality, including inter-comparison between other satellites measurements and error analysis, and 2) the first simultaneous observations of ClO, HOCl, HO₂, and HCl.

AAS021-P01

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

Constraints on CO₂ flux emissions: reconstructions of in-situ measurements from Lagrangian stochastic inversion

Constraints on CO₂ flux emissions: reconstructions of in-situ measurements from Lagrangian stochastic inversion

Ignacio Pisco^{1*}, Prabir Patra¹, Masayuki Takigawa¹, Takakiyo Nakazawa², Yousuke Sawa³, Toshinobu Machida⁴, Hidekazu Matsueda³

Ignacio Pisco^{1*}, Prabir Patra¹, Masayuki Takigawa¹, Takakiyo Nakazawa², Yousuke Sawa³, Toshinobu Machida⁴, Hidekazu Matsueda³

¹JAMSTEC, ²Tohoku University, ³MRI, ⁴NIES

¹JAMSTEC, ²Tohoku University, ³MRI, ⁴NIES

In order to use high resolution in-situ measurements to constrain regional emissions of carbon dioxide ($\mathbf{CO_2}$) we use a Lagrangian methodology based on diffusive backward trajectory tracer reconstructions. We use aircraft, ground and tower sites for $\mathbf{CO_2}$ data, collected during the CONTRAIL campaign, from the MRI/JMA Tsukuba tall tower, nearby the $\mathbf{CO_2}$ emission hot spot of the Tokyo Bay area and from the World Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG). Advective transport based on ECMWF analyzed meteorological winds and the WRF mesoscale model is characterized by the sensitivity/transition probability (Green's function) allowing direct comparison with observations via the reconstruction of the volume mixing ratio of $\mathbf{CO_2}$. Sensitivity to simplified boundary layer representations, turbulent mixing representations and meteorological fields was studied and applied to the assessment of publicly available inventory data. Longer time series in remote sites (e.g. the Yonagunijima island) are used to constrain the influence of far field/continental East Asia emissions. Estimated fluxes for the Tokyo Bay Area for the analyzed period in 2007 range between 4.8×10^{-7} to 3.45×10^{-7} $\text{kg}_{\text{chem}\{CO_2\}} \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ with significant time variations. We assess the uncertainties in terms of errors associated with the transport and mixing processes in the vicinity of the emission sources.

AAS021-P02

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

光スペクトラムアナライザを使った大気中の二酸化炭素の高精度測定法の開発・実用化

Development of the precise measurement of carbon dioxide in the atmosphere with optical spectrum analyzer

草薙 聡^{1*}

Satoshi Kusakari^{1*}

¹ 名古屋大学太陽地球環境研究所

¹Solar-Terrestrial Environment Laboratory

二酸化炭素は地球温暖化に最も大きな影響を与える温室効果ガスであり、地球大気中における二酸化炭素濃度の変動を正確に把握することが地球温暖化を理解する上で必要である。地上からは、上空の大気中二酸化炭素濃度を高精度に測定することのできる装置の一つである大型で高価な高分解能フーリエ変換型赤外分光器により、世界の約20箇所で測定が行われている。しかし、二酸化炭素の排出・吸収には局所性があり、世界中の様々な場所で大気中の二酸化炭素を測定することが二酸化炭素の排出と吸収量を理解するために必要である。そのためには、小型で持ち運び可能で精度良く測定出来る装置が望まれている。そこで、本研究では光スペクトラムアナライザ (Optical Spectrum Analyzer: OSA) を用いた小型かつ高精度な測定手法の開発を行った。装置は太陽追尾装置を用いて望遠鏡で太陽光を導入し、光ファイバーを通して OSA に太陽光を入射し、太陽光の 1.6 μm 帯での二酸化炭素吸収スペクトルを測定することにより大気中の二酸化炭素のカラム平均混合比を測定する。OSA の設定は波数領域 1.569 μm - 1.576 μm の範囲を、分解能 0.07nm、サンプリングポイント数 5001 で測定する。一回の測定には 2 分 15 秒かかる。また OSA は PC 上の LabVIEW で制御プログラムを作成し、自動で連続的に測定が可能である。今回は実際の二酸化炭素の試験観測結果を示し、精度改善の方策を議論する。

キーワード: 二酸化炭素, 高精度測定, 光スペクトラムアナライザ

Keywords: carbon dioxide, precise measurement, optical spectrum analyzer

AAS021-P03

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

都市における CO₂、H₂O 同位体の同時観測 Observation of isotopic compositions of CO₂ and H₂O in an urban region

竹村 匡弘^{1*}, 和田 龍一¹, 中山 智喜¹, 松見 豊¹, 檜山 哲哉², 井上元², 栗田 直幸³, 藤吉 康志⁴, 村本健一郎⁵, 高梨 聡⁶
Masahiro Takemura^{1*}, Ryuichi Wada¹, Tomoki Nakayama¹, Yutaka Matsumi¹, Tetsuya Hiyama², Gen Inoue², Naoyuki Kurita³,
Yasushi Fujiyoshi⁴, Kenichiro Muramoto⁵, Satoru Takanashi⁶

¹名古屋大学太陽地球環境研究所, ²総合地球環境学研究所, ³海洋研究開発機構, ⁴北海道大学低温科学研究所, ⁵金沢大学理工学域, ⁶森林総合研究所

¹STE laboratory, Nagoya Univ., ²Research Inst. For Humanity and Nature, ³JAMSTEC, ⁴Inst. Low Temp. Sci., Hokkaido Univ.,
⁵College of Sci. and Eng., Kanazawa Univ., ⁶FFPRI

大気、土壌、生態系を通じた陸域における二酸化炭素の循環は、地球環境を考えるうえで重要であり、陸域における二酸化炭素循環の変化は地球温暖化といった気候の変化に影響を及ぼすと考えられている。陸域二酸化炭素循環を解明する方法の一つとして、発生源により同位体比が異なる性質を利用する手法が挙げられる。

今回私達は、二酸化炭素と水蒸気の酸素原子が交換反応を起こす可能性について知見を得るべく、2010年9月1日から30日間、名古屋大学構内にて、レーザー分光法の装置を用いて、大気中の三種類の二酸化炭素安定同位体比 (¹²C¹⁶O¹⁶O、¹³C¹⁶O¹⁶O、¹²C¹⁸O¹⁶O) および水蒸気同位体比 (D₂O、H₂¹⁸O) を同時観測した。CO₂ のレーザー同位体計測装置は Aerodyne 社の製品を基にしたもので、リアルタイムで大気中の CO₂ の同位体比 (デルタ ¹³C, デルタ ¹⁸O) を 10 秒の積分時間で 0.1 パーミル以上の精度で計測することができる。水蒸気同位体計は Los Gatos Research 社の製品であり、同社製の同位体較正器と組み合わせて使用した。風向風速や、降雨といった気象データと、二酸化炭素、水蒸気同位体比の変化の関係について考察した結果を報告する。

キーワード: 二酸化炭素同位体, 水蒸気同位体, レーザー分光, 生態系, 大気 CO₂, 都市大気

Keywords: CO₂ isotopes, H₂O isotopes, laser spectroscopy, ecosystem, atmospheric CO₂, urban atmosphere

AAS021-P04

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

成田上空 CO₂ 濃度の短周期変動に対する領域スケールの地表面フラックスの影響 Sensitivity of short timescale variability of CO₂ over Narita Airport to the magnitude of regional surface fluxes

白井 知子^{1*}, 町田 敏暢¹, Shamil Maksyutov¹, 曾継業¹, 松枝 秀和², 澤 庸介², 丹羽洋介², Kaz Higuchi³
Tomoko Shirai^{1*}, Toshinobu Machida¹, Shamil Maksyutov¹, Jiye Zeng¹, Hidekazu Matsueda², Yousuke Sawa², Yosuke Niwa², Kaz Higuchi³

¹ 国立環境研究所, ² 気象研究所, ³ ヨーク大学

¹NIES, ²MRI, ³York Univ.

The synoptic scale variability of CO₂ over the Narita International Airport (lat 35.8°N, 140.4°E, 43m a.s.l.) was investigated using measurements obtained from frequent observation by commercial aircraft combined with analyses of results from a transport model simulation for the year 2007. The standard deviation (SD) from fitted curves was considered as the metric of synoptic scale variability of CO₂ mixing ratio. Tagged simulation was conducted to evaluate the relative contributions of regional fluxes to the synoptic scale variability over Narita. Tags were put on anthropogenic (FF) and terrestrial biosphere (TB) fluxes from 6 regions (Japan, East Asia, East Russia, Southeast Asia, India, and Himalaya). The result indicated that the major contribution was made by the fluxes in East Asia (mainly China) in the free troposphere (FT) and by those in Japan in the planetary boundary layer (PBL), respectively.

A sensitivity analysis was performed to evaluate the relative influence of transport and flux variations on the CO₂ SD over Narita for 2007. When the FF fluxes from East Asia and those from Japan were doubled, changes in annual mean SD over Narita with height was; 41% and 3% at 9km, 61% and 4% at 5km, 19% and 83% at 0.5km, respectively. This result indicated that SD over Narita was sensitive to transport (synoptic scale meteorological variability) from upwind in FT, but depends largely dependent on the magnitude of local fluxes in the PBL.

Among 12 tagged fluxes, those that made more than 20% difference in monthly CO₂ SD when flux magnitude was doubled were FF fluxes from Japan and East Asia, and TB fluxes from East Asia and East Russia. Throughout the year, CO₂ SD in the PBL and the FT were most sensitive to the FF flux from Japan and East Asia, respectively. In summer, the contribution of the TB flux from East Asia and East Russia to CO₂ SD was increased in the FT, when strong CO₂ uptake makes large negative flux. The TB flux from East Russia affected the most at 2-4km altitude in July, and those from East Asia affected at 8-10km altitude in September. This delay corresponded to the seasonality of the sink magnitude within each tracer region. Meteorological analysis and forward/backward trajectories indicated that low CO₂ air mass affected by TB fluxes in East Russia drifted to the northeast and occasionally transported to Narita by northeasterly behind the cold front whereas those affected by TB fluxes in East Asia were often directly convected to the UT by tropical depression etc., and transported to Narita via UT much more rapidly. These transport mechanisms explained the different altitude ranges that were sensitive to the TB fluxes from East Russia and East Asia in summer 2007.

キーワード: 二酸化炭素, 航空機観測, 短周期変動, 炭素循環, フラックス, 輸送

Keywords: CO₂, aircraft observation, short timescale variation, carbon cycle, flux, transport

AAS021-P05

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

CO₂ 輸送モデル MJ98-CDTM による鉛直拡散及び地表面フラックスの影響評価 Sensitivity experiment of vertical diffusional parameter and CO₂ surface flux on CO₂ transport model MJ98-CDTM

横尾 好朗^{1*}, 眞木貴史², 宮崎和幸³, 山田 和孝⁴, 岩崎俊樹¹

Yoshiaki Yokoo^{1*}, Takashi Maki², Kazuyuki Miyazaki³, Kazutaka Yamada⁴, Toshiki Iwasaki¹

¹ 東北大学大学院理学研究科, ² 気象研究所, ³ 海洋研究開発機構, ⁴ 気象庁

¹Tohoku University, ²MRI, ³JAMSTEC, ⁴JMA

化学輸送モデルを用い、CO₂ データ同化実験を計画している。データ同化結果は、使用する化学輸送モデルの精度に大きく影響される。そこで、本研究では、鉛直拡散と地表面フラックスの影響を、化学輸送モデルによる前方積分で調べる。

使用するモデルは、気象研究所で開発された大気大循環 - 化学輸送結合モデル (MJ98-CDTM) である。このモデルを、再解析 JRA25 でナッジングをかけながら、2006 年の 1 年間前方に積分し、得られた二酸化炭素分布を気象庁の二酸化炭素解析と比較する。

<浅い対流による鉛直拡散>

化学輸送モデルでは、浅い対流が微量成分に及ぼす影響を鉛直拡散で表現している。本研究では、まず、MJ98-CDTM において、鉛直拡散の値を変化させた時の影響を調べた。その結果、二酸化炭素の分布は鉛直拡散のパラメータに大変敏感であることが分かった。以上の結果は、浅い対流に伴う鉛直拡散を注意深く調整する必要性を示唆している。本モデルの場合、拡散係数をデフォルト値より減らすことによって、全球二酸化炭素分布の再現性をある程度改善させることができた。

<地表面フラックスの影響>

前方積分では、二酸化炭素の分布は、地表面フラックスの精度にも大きな影響を受ける。二酸化炭素のフラックスとしてはエコシステムモデルで作成したいわゆる CASA フラックスが広く用いられている。しかし、MRI で使用している CASA フラックスと JAMSTEC で使用している CASA フラックスでは、微妙に異なる。そこで、2つの地表面フラックスを利用し、前方積分でその相違を検証した。その結果、冬期の二酸化炭素分布が大きく異なっていた。ただし、両方とも気象庁の解析データにはあまり一致しなかった。実際の分布に近づけるためには、よりよい気候値を用いることが重要であることがわかった。

今後は局所アンサンブル変換カルマンフィルター (LETKF) を用いて、地表観測や航空機観測、衛星観測 (GOSAT) などの観測データによる同化実験を行い、地表面フラックスを推定する。その場合に、鉛直拡散や地表面フラックスの第 1 推定値の変化が、同化結果に及ぼす影響について調べていく予定である。

キーワード: 二酸化炭素, データ同化

Keywords: CO₂, data assimilation

西シベリアタイガにおける航空機とタワーを用いた大気境界層及び自由対流圏内の二酸化炭素濃度の長期観測 (2002-2010) Aircraft and tower measurements of carbon dioxide in the PBL and FT over taiga in West Siberia (2002-2010)

笹川 基樹^{1*}, 町田 敏暢¹, 津田 憲次², 下山 宏³, Mikhail Arshinov⁴, Denis Davydov⁴, Alexandrov Fofonov⁴, Oleg Krasnov⁴
Motoki Sasakawa^{1*}, Toshinobu Machida¹, Noritsugu Tsuda², Kou Shimoyama³, Mikhail Arshinov⁴, Denis Davydov⁴, Alexandrov Fofonov⁴, Oleg Krasnov⁴

¹ 国立環境研究所, ² 地球環境人間フォーラム, ³ 北海道大学, ⁴ ロシア大気光学研究所
¹NIES, ²GEM, ³Hokkaido University, ⁴IAO, RAS, Russia

Figure. Vertical profiles of CO₂ concentration (ppm) observed over the tower.

1. Introduction

To understand the difference in CO₂ behavior between planetary boundary layer (PBL) and free troposphere (FT) over Siberian taiga, we have conducted CO₂ measurements using a small aircraft and a tower at the taiga in West Siberia since 2002. Continuous CO₂ time series at 4 levels (5, 20, 40, and 80 m) were monitored with the tower. Up to 3 km vertical CO₂ profiles above the tower in the fine day were frequently obtained with the aircraft.

2. Method

Carbon dioxide concentrations were measured continuously at the tower located in Berezhovka village (56°09N, 84°20E). Sampled air from 4 levels was dehumidified and then introduced into a NDIR (LI-820, LI-COR; LI-7000 was used until September 2008). Measurement precision is ±0.3 ppm. The more detail information of the system was described in *Sasakawa et al.* [2010a]. Small CO₂ measurement device based on a NDIR (LI-800, LI-COR) equipped with flow and pressure regulation system was developed and installed in the small aircraft (Antonov An-2). Two standard gases are introduced into the NDIR every 5 minutes. Overall measurement precision is estimated to be ±0.3 ppm when we use 2 seconds averaged data. An-2 ascended to 2 km (winter) or 3 km (summer) above the tower and then descended to 0.15 km to obtain the vertical profile of CO₂ concentration. The routine aircraft measurement had been conducted basically in the afternoon with the frequency of 2-4 times per month until 2007 March despite low frequency after then.

3. Results and discussions

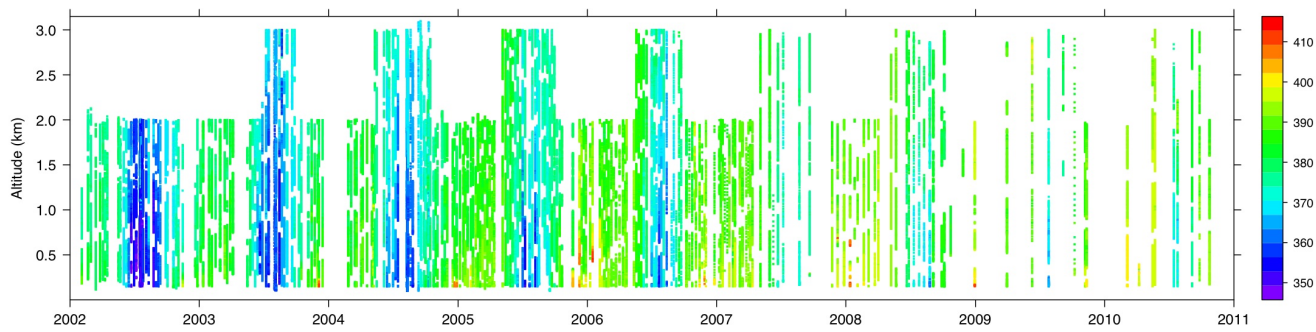
Figure shows the vertical profiles of CO₂ concentration observed by routine flights (261 times) from 2002 to 2010. Carbon dioxide concentrations showed slightly higher in the lower altitude during the dormant season. On the other hand, CO₂ concentration during summer gradually decreased with decrease in the altitude during summer, which implies the effect of photosynthesis by vegetation of the taiga during the growing season. The same tendency was observed in the previous years [*Machida et al.*, 2005]. Unfortunately there was no simultaneous tower data in 2010 due to equipment malfunctions.

To compare the temporal CO₂ variation between in the PBL and FT, we defined the PBL height using vertical profiles of temperature, potential temperature, and specific humidity. We found that seasonal variation of PBL height with maximum during summer (>over 3 km). Annual mean CO₂ in the PBL was always higher (approx. 2 ppm) than that in the lower FT, which is mainly due to rectifier effect. The annual means also showed an increase of 11.6 ppm (PBL) and 11.2 ppm (FT) from 2003 to 2009. We will also present diurnal variation of CO₂ vertical profiles up to 3 km observed in the summer of 2002-2004.

Generally daily minimum at the tower was observed in the afternoon when active vertical mixing occurred [*Sasakawa et al.*, 2010b]. Thus, we calculated daytime mean with averaging the data observed in 13:00-17:00 LST to compare with the data from An-2 observation. Daytime mean concentrations observed in the tower (40 and 80 m) agreed well with those in the PBL observed with An-2, which suggests that daytime tower data can be the representative values in the PBL.

References

- Machida et al. (2005), *ICDC7*, poster presentation.
- Sasakawa et al. (2010a), *Tellus*, 62B, 403-416.
- Sasakawa et al. (2010b), *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 10, 27759-27776.



Keywords: Siberia, taiga, tower, PBL, carbon dioxide, aircraft

AAS021-P07

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

大気ポテンシャル酸素の観測を用いた全球大気輸送モデル (NIES99 TM、NIES08 TM) の比較

Comparison of 2 versions of a global atmospheric transport model (NIES99 TM and NIES08 TM) using APO observations

峰島 知芳^{1*}, 遠嶋 康徳¹, Belikov Dmitry¹, Maksyutov Shamil¹
Chika Minejima^{1*}, Yasunori Tohjima¹, Dmitry Belikov¹, Shamil Maksyutov¹

¹ 国立環境研究所

¹NIES

We show comparisons of two versions of an atmospheric global transport model, NIES99 and NIES08, and observations using Atmospheric Potential Oxygen ($APO = O_2 + 1.1 CO_2$). APO is defined so that it is invariable with the terrestrial biotic exchanges and it is not as sensitive to fossil fuel burning activities as CO_2 or O_2 is. Thus, the main variation is caused by air-sea exchanges of O_2 . Therefore, APO has a unique flux distribution and is able to provide a good test to the transport models from different perspectives.

National Institute for Environmental Studies (NIES) has been making observations of CO_2 and O_2 on cargo ships which have been repeating round-trip cruises between Japan and Canada/the United States and between Japan and Australia/New Zealand since December 2001. With this valuable data set, we compare the observations and model results including annual mean distributions and seasonal amplitudes.

For the NIES99 TM and NIES08 TM, the same flux set was used to make transport difference clearly. We used oceanic fluxes of O_2 , N_2 and CO_2 , and fossil fuel burning anthropogenic fluxes of CO_2 and O_2 . As for the oceanic O_2 and N_2 fluxes, climatological monthly anomalies of Garcia and Keeling [2001] and annual mean oceanic O_2 and N_2 fluxes from the annual-mean ocean inversion studies of Gruber et al. [2001] and Gloor et al. [2001], respectively, are used. As for the oceanic CO_2 fluxes, we use two sets of monthly sea surface CO_2 flux climatology of Takahashi et al. [2002] and Takahashi et al. [2009]. For the anthropogenic CO_2 flux, global fossil fuel CO_2 emission with spatial resolution of 1 deg. x 1 deg. for the year 2006 from CDIAC database is repeatedly used every year in this simulation. The O_2 consumptions associated with the fossil fuel burning is calculated from the fossil fuel CO_2 fluxes and the $-O_2:C$ exchange ratios for the burnings.

In general, NIES99 TM reproduces the seasonal amplitudes, the annual mean values and rectifier effect at northern North Pacific better than NIES08 TM does. NIES08 TM represents APO in the Southern Hemisphere more smoothly because of more balanced tracer transport due to strong mass conservation. We will show the comparisons more in details in this presentation.

キーワード: 酸素, 大気, 季節変動, 輸送モデル

Keywords: atmospheric O_2 , atmospheric potential oxygen (APO), seasonal cycle, global atmospheric transport model

AAS021-P08

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

タグ付きモデル計算から推定される西太平洋上部対流圏における一酸化二窒素およびメタン変動中の放出源の影響

Source signals in N₂O and CH₄ variability in the upper troposphere over the western Pacific derived by model simulations

石島 健太郎^{1*}, Patra Prabir¹, 町田 敏暢², 松枝 秀和³, 澤 庸介³, 梅澤 拓⁴, 青木 周司⁴, 中澤 高清⁴

Kentaro Ishijima^{1*}, Prabir Patra¹, Toshinobu Machida², Hidekazu Matsueda³, Yousuke Sawa³, Taku Umezawa⁴, Shuji Aoki⁴, Takakiyo Nakazawa⁴

¹ 海洋研究開発機構, ² 国立環境研究所, ³ 気象研究所, ⁴ 東北大学

¹JAMSTEC, ²NIES, ³MRI, ⁴Tohoku University

Multiple greenhouse gases simulations with tagged-tracers are performed to mainly understand surface-source influences on latitudinal-temporal variabilities of nitrous oxide (N₂O) and methane (CH₄) in the upper troposphere (UT) over the western Pacific observed by the Automatic air Sampling Equipment (ASE) included in the CONTRAIL project. We use greenhouse gases concentration data, which have been obtained almost fortnightly in the altitude range of 9-11 km between Sydney or Brisbane, Australia and Tokyo, Japan for the period Dec 2005 - Mar 2009. An atmospheric general circulation model-based chemistry transport model (ACTM), which is nudged toward the Japanese 25 year ReAnalysis data from the Japan Meteorological Agency (JMA) (JRA-25), is used in this study. Dynamical structure in the tropical UT region in ACTM is reasonably validated by the fact that ACTM simulation of mean latitudinal SF₆ gradient for the observation period is almost perfectly consistent with the observation within 0.03ppt, which is much smaller than the measurement precision. For tracing the origins of N₂O and CH₄ in model, the globe is separated into more than ten of emission regions so that each region emission affects the corresponding tagged-tracers concentration variation on the globe through the atmospheric transport. The tracers simulation results and observation results are detrended, and their seasonal or shorter eventual concentration variabilities are compared. In case of N₂O, concentration values around 30N and 30S are largely fluctuated by stratospheric intrusions, which lower N₂O concentration in the UT, but some surface source signals can be still detectable especially around 30N by removing data highly affected by the stratosphere. That indicates that N₂O around 20-30N seems to be most affected by Middle East and South Asia region, and secondly by East and Southeast Asia region mainly in summer. It is possible that monsoon and Tibetan Plateau work to transport N₂O emitted from South Asia to this region in the UT over the western Pacific. Around 10S, N₂O seems to be relatively dominated by emissions from Australia, but the degree is not so prominent compared to above two Asian regions for 20-30N. CH₄ shows slightly different features of affecting source regions from those of N₂O. It is indicated that China and India affect 26-30N region in the UT over the western Pacific in summer and fall, respectively. Meanwhile, region around 10S is dominantly affected by Malaysia-Indonesia-Papua New Guinea emission region. It might be necessary to take into account CH₄ loss by OH enhanced in the tropics and transport of CH₄ through the region to the UT for better understanding the different emission region affecting around 10S between N₂O and CH₄.

キーワード: 一酸化二窒素, メタン, 上部対流圏, モデル計算

Keywords: N₂O, CH₄, upper troposphere, model simulation

AAS021-P09

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

JEM/SMILES による UTLS 水蒸気の観測

Distribution of the UT/LS water vapour retrieved from the JEM/SMILES observations

佐川 英夫^{1*}, 笠井 康子¹, バロン フィリップ¹, 落合 啓¹, Mendrok Jana², UT/LS humidity & ice-cloud research team³
Hideo Sagawa^{1*}, YASUKO KASAI¹, Philippe Baron¹, Satoshi Ochiai¹, Jana Mendrok², UT/LS humidity & ice-cloud research team³

¹ 情報通信研究機構, ² ルーレア工科大学, ³NICT, Lulea Univ., Chalmers Univ., JPL 他

¹NICT, ²Lulea University of Technology, Sweden, ³NICT, Lulea Univ., Chalmers Univ., JPL

Water vapour in the upper troposphere and lower stratosphere (UT/LS) region plays an important role in the weather and climate system on Earth. Despite its high importance, we are still lacking thorough understanding of the distribution and climatological roles of UT/LS water vapour because of insufficient temporal observational coverage.

New insight into the UT/LS water vapor can be provided by high sensitivity observations with the Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder, SMILES: a limb emission sounder attached on the Japanese experiment module (JEM) onboard the International Space Station (ISS). One of the unique characteristics of the SMILES observation is the non-sun synchronous orbit of ISS. By accumulating the data from the several ISS evolutions, diurnal variations of the atmospheric constituents can be analyzed. Although SMILES has no water vapour transitions included in its observation spectral range, a significant contribution of the water vapour opacity of the 620 GHz and 557 GHz transitions comes into the SMILES observed spectra.

We will present the first results of the UT/LS humidity retrieval from the JEM/SMILES measurements focusing on its diurnal variation.

AAS021-P10

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

CHASER 光解離反応スキームの改良:対流圏化学反応へのインパクト評価 Evaluation of updated photodissociation scheme on CHASER model: the impact to chemical reaction in troposphere

八代 尚^{1*}, 須藤 健悟², 滝川 雅之¹

Hisashi Yashiro^{1*}, Kengo Sudo², Masayuki Takigawa¹

¹ 海洋研究開発機構 地球環境変動領域, ² 名古屋大学大学院環境学研究科

¹JAMSTEC/RIGC/EBCRP, ²Graduate School of Environmental Studies

To improve the accuracy of calculated photodissociation rates (J-values) in global chemical climate/transport model (CHASER), we updated the scheme for estimation of absorption cross section (ACS) and quantum yield (QY), which is coupled with the broadband radiative transfer model in AGCM. The new scheme used data from NASA-JPL recommendations in 2006 (Sander et al., 2006). Based on the method of Langdrif and Crutzen (1997), ACS and QY were weighted by the attenuated solar spectrum and were averaged into the bins. The average value obtained at each grid point of the model was approximated by multivariable polynomial of temperature, pressure, and a partial ozone column. The comparison between the result of old and new scheme shows that 1) the changes of J-values for ozone photodissociation of both two channels ($O_3 \rightarrow O_2 + O(^1D)$, $O_3 \rightarrow O_2 + O$) are less than 10% in the troposphere but indicate considerable increase in tropics and decrease in polar region, 2) J-values for some ketones increase in free troposphere, reflecting the pressure-dependent variation of quantum yield, and 3) updated ACS of formaldehyde (HCHO) increased the photodissociation rate of both of channels ($HCHO \rightarrow CO + 2HO_2$, $HCHO \rightarrow CO + H_2$), and as a result, the chemical production rate of CO was increased in the tropical region.

キーワード: 大気化学, 光化学反応, 化学気候モデル, 大気放射

Keywords: atmospheric chemistry, photochemical reaction, chemical climate model, atmospheric radiation

AAS021-P11

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

人工衛星により観測された中国大陸からの対流圏二酸化窒素輸送の事例解析 A case study of the transport of tropospheric nitrogen dioxide from China observed from space

野口 克行^{1*}, 鵜野伊津志², 大原利真³, アンドレアス・リヒター⁴, ジョン・パローズ⁴
Katsuyuki Noguchi^{1*}, Itsushi Uno², Toshimasa Ohara³, Andreas Richter⁴, John P. Burrows⁴

¹ ブレーメン大学 / 奈良女子大学, ² 九州大学, ³ 国立環境研究所, ⁴ ブレーメン大学

¹University of Bremen/Nara Women's Univ., ²Kyushu University, ³NIES, ⁴University of Bremen

近年の中国の経済発展により、窒素酸化物をはじめとした大気汚染物質の排出の急速な増加が問題となっている。1990年代半ばから対流圏二酸化窒素 (NO₂) が人工衛星から観測されるようになり、中国の主要都市部で NO₂ 濃度が年々増加していることが観測的に明らかになってきた。日本は中国大陸の風下に位置するため、中国大陸からの汚染物質の輸送を注視する必要がある。

本研究では、中国大陸からの NO₂ 輸送に焦点を当て、人工衛星による対流圏 NO₂ データを利用して、大規模な輸送が生じていると考えられる事例について解析を行なった。着目した事例においては、東シナ海の上海沖及び九州の南西海上に高濃度の対流圏 NO₂ が観測された。九州付近の高濃度域の最大値は $1 \times 10^{16} [\text{cm}^{-2}]$ 程度で、この値は南九州の平均値の2倍程度である。気象データを用いた流跡線解析によると、九州付近に存在した高濃度 NO₂ 空気塊は、およそ24時間前に上海上空を通過していたことが分かった。講演では、領域大気化学数値モデル、並びに環境省及び地方自治体によって設置されている大気汚染常時監視局による地表観測データの解析結果も含めて議論を行なう。

キーワード: 大気汚染, 二酸化窒素, 対流圏, 衛星観測, 輸送

Keywords: air pollution, nitrogen dioxide, troposphere, satellite observation, transport

D-UV LEDを用いた差分吸光方式オゾン計の開発 Development of DOAS O₃ radiometer using D-UV LED

北 和之^{1*}

Kazuyuki Kita^{1*}

¹茨城大学理学部

¹Faculty of Science, Ibaraki University

水銀ランプを光源にした紫外線吸収方式のオゾン計は、大気環境のモニタリング、およびオゾンを利用する水殺菌などの工業プロセスやオゾンが規制値以上に放出されないための製品試験などの目的で、世界中で広く使用されている。

しかし、従来のオゾン計には、下記のような問題点がある。

1) 従来のオゾン濃度計では、連続測定の場合1年ほどで寿命を迎える低圧水銀ランプを光源として使用しているため、その交換費用が発生するとともに環境に有害な水銀を含む廃棄物が発生することになり、その処理が環境負荷となる問題がある。

2) また、従来のオゾン濃度計では低圧水銀ランプから放射される254nmの単一波長のみを利用するため、オゾンによる紫外線の吸収を検出するために、試料セルに測定対象であるオゾンを含む空気と、オゾン分解器を通して作成した参照用のオゾンを含まない空気を数秒程度の短い間隔で交互に切り替えて導入し、両者におけるセルを通過した紫外線強度の比からオゾン濃度を求めていた。そのため、試料セル中の空気交換に要する時間およびオゾンを含まない空気を測定している時間にはオゾン測定が行われなため、完全に連続的な測定ができない問題および時間分解能が制限される問題があった。さらにこの切り替えのため、連続使用の場合1年程度でオゾン分解器や切り替えに使用する電磁弁ダイヤフラムなどの交換が必要となる問題があった。

3) 交互切り替えの間のランプ光強度変動や光学系の熱膨張変化を最小とするため、ランプ付近を約50℃に温度調節しているが、これにより消費電力が大きくなっている。

最初の問題については、最近オゾン吸収の強い250nm付近のDeep UV (D-UV) 領域で実用的な光強度のLEDが開発されたので、それを用いることで解決できると考えた。

2番目、3番目の問題については、発光波長の異なる2種類のLEDを用い差分吸光式にすることで改善することができるとされる。そこで、255nmおよび285nm(半値全幅15nm)のLEDを用い、差分吸光方式のオゾン計を試作した。PASSによるBC測定の較正用という目的のため、濃度0~10ppmの中濃度域を対象とし、吸光セル長は約30cmと短い。結果は、TECO 49iPSで較正が可能だった0-1.5ppmの範囲で良好な直線性が得られ、現在まで±5ppbvの精度が得られている。現在LED個数を増やし、セル長を延長、電気系等も改良した試作機を作成しており、その結果について講演会時に報告する。

謝辞：この差分吸光法オゾン計は(株)ダイレックの協力を得て開発を行っており、この場を借りて感謝します。

キーワード: オゾン, 測定手法, UV LED

Keywords: ozone, measurement technique, UV LED

SP2を用いた雨水中のブラックカーボンの測定法の開発

Evaluation of a method for measurement of black carbon particles suspended in rainwater

大畑 祥^{1*}, 茂木 信宏¹, 宮川 拓真¹, 近藤 豊¹

Sho Ohata^{1*}, Nobuhiro Moteki¹, Takuma Miyakawa¹, Yutaka Kondo¹

¹ 東京大学先端科学技術研究センター

¹ RCAST, The University of Tokyo

ブラックカーボン (BC) は化石燃料やバイオマスの燃焼によって大気中に放出されるエアロゾルである。太陽放射を効果的に吸収するため、BC は地球の放射収支および気候変動に影響を与えられている。大気中の BC の空間分布は「発生源からの放出・気象場における輸送・大気からの除去 (主に降水による)」によって支配されるので、降水に含まれる BC の濃度は一連のプロセスを理解する上で重要なパラメーターとなる。また、BC の湿性沈着フラックスの測定データは、3次元化学輸送モデルの湿性沈着に関するパラメタリゼーションの評価においても有用である。

雨水中の BC を測定する従来の手法においては、雨水試料をフィルターで濾過して、そのフィルター上に残留した BC の質量を熱光学法により分析してきた。しかし、この従来法では雨水 1 サンプルにつき少なくとも 100mL を必要とするため、降水量が少ない場合や、一つの降水イベント中において高い時間分解能の測定データを得ることは困難であった。また、従来法では BC の雲凝結核 (CCN) 特性を知る上で重要となる雨水中の BC の粒径を測定することは原理的に不可能であった。本研究では新たに、超音波式ネブライザーとレーザー誘起白熱法による BC 分析装置 (Single Particle Soot Photometer: SP2) を組み合わせることによって、少量 (数 mL) のサンプルから再現性良く BC の質量濃度を測定し、さらに雨水中の BC のおおよその粒径分布を推定できる手法を考案したので報告する。

測定手法は以下の通りである。

採取された雨水はペリスタルティックポンプにより一定の体積流量で超音波式ネブライザーへと送られ、霧状の微小な液滴が一定の個数濃度で発生する。雨水中の成分は個々の液滴に含まれている。その後 140 °C に加熱した配管内において、個々の液滴中の水と揮発性成分は気流中で蒸発し、不揮発性の核として残った粒子が SP2 へと導入される。SP2 ではレーザー誘起白熱法により、BC が選択的に検出され、個々の粒子に含まれる BC の質量が測定される。

はじめに、BC を一定の質量濃度で分散させた標準溶液である AquaBlack001 と AquaBlack162 (Tokai Carbon, Co. Ltd.) を用いてこの手法の較正を行い、この手法により検出される雨水中の BC の質量割合 R を決定した。この効率 R の値は

$$R = M_{SP2} F_{neb} / (m_{samp} V_{pump})$$

と表される。ここで M_{SP2} は SP2 に送り込まれる気相試料中の BC の質量濃度 ($\mu\text{g cm}^{-3}$)、 F_{neb} はネブライザーの空気流量 ($\text{cm}^3 \text{sec}^{-1}$)、 m_{samp} は雨水中の BC 質量濃度 ($\mu\text{g L}^{-1}$)、 V_{pump} はネブライザーに送り込まれる雨水の流量 (L sec^{-1}) である。雨水中の BC 濃度に近い様々な濃度の AquaBlack 水溶液を用意し測定を行った結果、 R の値は約 9% と求まった。 R は溶液中の BC 濃度には依存せず、また実際の雨水に含まれるような他の溶解物の濃度によっても大きく影響を受けることはなかった。この較正值 R の値を用い、雨水中の BC 濃度を

$$m_{samp} = M_{SP2} F_{neb} / (R V_{pump})$$

で求めることができる。

また、同一の降水サンプルを複数回測定することによって、超音波ネブライザーと SP2 の動作の再現性が良いことを確認した。この結果から測定に必要なサンプルは 5ml 以下であることも示された。また、サンプルを冷蔵庫で 2 カ月程度保管した後の解析でもデータの再現性は $\pm 14\%$ であり、長期間の保存によるサンプルの劣化は重要でないことが分かった。

雨水中の BC の粒径分布は、ネブライザーで作られる各液滴に複数個の BC が含まれている場合、液滴が蒸発する際の凝集効果によって変化してしまう可能性がある。雨水中の BC の数濃度が十分に低く、各液滴に 1 個以下の BC が含まれている状態であれば、SP2 で計測される BC の粒径分布は雨水中の BC の粒径分布と等しいと考えられるが、複数個の BC が含まれている場合は雨水中の BC の粒径を過大評価してしまう。そこで我々は、高濃度の BC を含む降水を純水で希釈して測定を行うことにより、雨水中の BC の粒径分布を推定した。2010 年 12 月に東京で採取された雨水中の BC の粒径分布は対数正規分布によって良く近似され、個数中央値 (CMD) と質量中央値 (MMD) がそれぞれ約 98 nm と 190 nm と求まった。

キーワード: ブラックカーボン, エアロゾル, 湿性沈着

Keywords: black carbon, aerosol, wet deposition

AAS021-P14

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

航空機観測による海上でのBC沈着速度の推定

Estimation of deposition rate of Black Carbon aerosol during the transportation over sea by aircraft observation

矢野 雅大^{1*}, 北 和之², 大島 長³, 茂木 信宏⁴, 竹川 暢之⁴, 小池 真⁵, 近藤 豊⁴

Masahiro Yano^{1*}, Kazuyuki Kita², Naga Oshima³, Nobuhiro Moteki⁴, Nobuyuki Takegawa⁴, Makoto Koike⁵, Yutaka Kondo⁴

¹ 茨城大学大学院理工学研究科, ² 茨城大学理学部, ³ 気象研究所, ⁴ 東京大学先端科学技術研究センター, ⁵ 東京大学大学院理学系研究科

¹ Graduate School, Ibaraki University, ² Faculty of Science, Ibaraki University, ³ Meteorological Research Institute, ⁴ Research Center, University of Tokyo, ⁵ Graduate School, The University of Tokyo

研究背景と研究目的

近年中国での経済発展に伴う大気汚染物質排出量が増加傾向にあり、その広域輸送による越境汚染など環境影響が問題となっているが、その実態は未だ解明されていない部分が多い。

黒色炭素エアロゾル(以下BC)は、太陽光を良く吸収し、その加熱効果はCOの1/3~2/3にも匹敵すると推定されているが、いまだ不確定も大きい。中国はBCの放出量が多いが、その気候等への影響はBCがどのくらいは約沈着するか左右される。

2009年3-4月にかけてA-FORCE(Aerosol Radiative Forcing in East Asia)航空機観測が行われた。観測目的は、主に中国など東アジアからのエアロゾルの輸送過程、この地域で放出されたエアロゾルの組成、特に黒色炭素エアロゾル(BC)の状態とその輸送中の変化過程、エアロゾルと雲との相互作用などである。この観測期間中、BCを含むエアロゾルの増大が高頻度で観測され、その増加は基本的に一酸化炭素(CO)濃度の増大と良く相関している。このCO濃度との相関からBC沈着量が推定でき、大島らは同じA-FORCE観測データを用い、中国の内陸で低気圧に伴い上昇する空気塊でのBC沈着について報告した。本研究では、海上における地表境界層~下部対流圏でのBC沈着速度を推定することを目的とする。

BC沈着率の推定手法

BCの沈着率・沈着速度は、BC濃度の輸送時間(および輸送距離)による変化から推定できるが、空気塊の拡散・希釈による減少分と区別する必要がある。そのためBC同様に不完全燃焼で放出され、沈着および化学変化が考えている時間スケール(数日)では小さいとされるCO濃度のバックグラウンド濃度から増加分d-COとの比の変化により沈着による変化を推定した。輸送時間および輸送距離は、後方流跡線解析によって推定した。この様な手法で、BC数密度/d-CO値を求めたところ、輸送時間(観測された空気塊が海岸線を離れてからの時間で定義)50~60時間経過したと推定される空気塊では、輸送時間0~10時間のものより、中央値が45%近く減少していることがわかった。また、BC以外の散乱性エアロゾル(以下SC)についても、BC程ではないがCO濃度と良く相関していることから、同様にCOとの比から沈着率を推定し、BCと比較することにした。さらに、これらの解析で得た結果とモデルによるBC沈着率を比較することで、現在モデルで仮定されている沈着速度の妥当性について検討できると考えており、講演会時に詳しい結果を報告する。

キーワード: ブラックカーボン, 一酸化炭素

Keywords: Black Carbon aerosol, CO

AAS021-P15

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

中国東部におけるBCとCOの相関

Correlation of BC and CO during biomass burning and urban pollution episodes in eastern China

Xiaole Pan¹, 金谷 有剛¹, Zifa Wang², 谷本 浩志³, 竹谷 文一^{1*}, 秋元 肇⁴, Yu Liu², Huabin Dong², Jie Li², Baozhu Ge², Xiquan Wang²

Xiaole Pan¹, Yugo Kanaya¹, Zifa Wang², Hiroshi Tanimoto³, Fumikazu Taketani^{1*}, Hajime Akimoto⁴, Yu Liu², Huabin Dong², Jie Li², Baozhu Ge², Xiquan Wang²

¹ 海洋研究開発機構, ² 中国科学院大気物理研究所, ³ 国立環境研究所, ⁴ アジア大気汚染研究センター

¹JAMSTEC, ²IAP, ³NIES, ⁴ACAP

Strong emissions of pollutants (e.g., BC and CO) in East China due to ever-quicken industrial development, surging automobile ownership, and intensive seasonal burning of biomass are well known, however, estimation of its emission has large uncertainties. Generally relationship between black carbon (BC) and carbon monoxide (CO) will help improve their emission inventories and the further evaluation of global/regional climate forcing effects. In present work, two field observation studies were performed at background mountain site (Mt.Huangshan 2007~ 2009), and at coast site (Rudong, Jiangsu province 2010) about 100 km northern to Yangtze River Delta Region respectively. Results from Mt.Huangshan show that annual mean BC concentration was 654.6 +/- 633.4 ng/m³ with maxima in spring and autumn, when biomass was burned over a large area in eastern China. The yearly averaged CO concentration was 446.4 +/- 167.6 ppbv, and the increase in the CO concentration was greatest in the cold season, implying that the large-scale domestic coal/biofuel combustion for heating has an effect. The BC-CO relationship was found to have different seasonal features but strong positive correlation ($R > 0.8$). Trajectory cluster study combined with measurements of urban PM10 concentrations and satellite observations demonstrated that the $\Delta BC/\Delta CO$ ratio for a plume of burning biomass was 12.4 ng/m³/ppbv and that for urban plumes in eastern China was 5.3 +/- 0.53 ng/m³/ppbv. The field campaign at Rudong site displayed different results with relatively lower $\Delta BC/\Delta CO$ values of 4.5 +/- 0.2 ng/m³/ppbv for urban plumes and 8.9 +/- 0.3 ng/m³/ppbv in biomass burning influencing episode. This result for urban plumes was quiet similar with value (4.1 ng/m³/ppbv in INTEX-B) from statistical approaches, and transportation and industry were identified as controlling factors of the BC-CO relationship. Large uncertainties still existed for biomass burning smoke, and biomass types (grass, agriculture residues or twigs), combustion condition (inflammation or smoulder) seemed to be essential reasons to explain the discrepancies among the results.

Keywords: Black carbon, carbon monoxide, Emission Inventory, Back trajectory

Japan Geoscience Union Meeting 2011

(May 22-27 2011 at Makuhari, Chiba, Japan)

©2011. Japan Geoscience Union. All Rights Reserved.



AAS021-P16

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

WRF/CHEMを用いた黄砂エアロゾルの放射影響評価 Estimation of radiative impact of soil dust by using WRF/Chem

滝川 雅之^{1*}, 池田 恒平²

Masayuki Takigawa^{1*}, Kohei Ikeda²

¹ 海洋研究開発機構・地球環境変動領域, ² 東京大学大気海洋研究所気候システム研究系

¹RIGC/JAMSTEC, ²AORI/Univ. of Tokyo

We are now trying to include mineral dust aerosols in the model, because mineral dusts have a large impact on the radiation in East Asia in spring. In the present study we use WRF/ARW (Advanced Research WRF) version 3.1.1, and the gaseous and aerosol chemistry is based on RADM2 and MADE/SORGAM, respectively. Dust flux is estimated based on Shaw et al. (2008), and slightly modified to adapt to the East Asia following to Uno et al. (2004). Gravitational settlement of mineral dust is based on GOCART (Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport) model. Landuse is based on the MODIS land-use data. For the evaluation of the model, we conducted calculation for spring 2006 and compared with ground-based observation in Beijing. The model well captured the increase of PM10 during 17-19 April and 22-24 April, and it was estimated the most part of this PM10 particles were soil dust.

The impact of soil dust on shortwave radiation was also estimated by the model, and found 15W/m² of decrease was caused by the soil dust during the dust event.

キーワード: 大気化学, 黄砂, 東アジア, 短波放射, 物質輸送

Keywords: Atmospheric Chemistry, soil dust, East Asia, shortwave radiation, transport

AAS021-P17

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

2010年夏季名古屋におけるエアロゾル光吸収の波長依存性の観測 Measurements of wavelength dependence of aerosol light absorption at Nagoya during summer 2010

後藤祐樹¹, 鈴木博之¹, 鏡谷聡美¹, 中山 智喜^{1*}, 松見 豊¹

Yuuki Goto¹, Hiroyuki Suzuki¹, Satomi Kagamitani¹, Tomoki Nakayama^{1*}, Yutaka Matsumi¹

¹ 名古屋大学太陽地球環境研究所

¹ STEL, Nagoya University

大気中を浮遊する微粒子・エアロゾルは、太陽光線を散乱・吸収し、地球の放射収支の決定に大きな影響を及ぼしている。光吸収性を持つブラックカーボン (BC) 粒子の場合、これが太陽光を吸収することによる大気加熱効果は、二酸化炭素などの温室効果気体に比べて無視できない寄与を持つことが知られている。しかしながら、BC 粒子は、大気中での反応過程において、硫酸塩や有機物によって被覆されたり、形状が変化したりして、その光吸収特性が複雑に変化すると考えられている。さらに近年、BC 粒子に加え、有機性炭素 "ブラウンカーボン" が、特に短波長領域において放射収支に影響を持つ可能性が指摘されている。しかし、従来のフィルター光吸収法による吸収係数の計測では、フィルター繊維上での変質や多重散乱の影響のため、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、エアロゾルの吸収係数の波長依存性を測定した。観測は、2010年7/25-8/4の期間、名古屋大学東山キャンパスにおいて行った。エアロゾル光学特性については、エアロゾルの吸収係数 (405、532、781nm) を PASS-3 装置、消散係数 (355、532nm) をキャビティリングダウン装置 (CRDS) でそれぞれ測定した (なお、「消散係数」=「吸収係数」+「散乱係数」である)。また、熱分離光学補正法により EC および OC の重量濃度、紫外光吸収法により O₃ 濃度を計測した。得られた観測データをもとに、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ので報告する。

キーワード: エアロゾル, 光学特性, 光音響分光法, レンズ効果, ブラックカーボン, ブラウンカーボン

Keywords: aerosol, optical properties, photoacoustic spectroscopy, lens effect, black carbon, brown carbon

森林域におけるイソプレン由来有機エアロゾルの観測 Characterization of Organic Aerosols from Isoprene at a Forested Site in Japan

奥村 智憲^{1*}, 川本 純平¹, 東野 達¹, 小南 裕志², 深山 貴文²
Motonori Okumura^{1*}, Junpei Kawamoto¹, Susumu Tohno¹, Yuji Kominami², Takafumi Miyama²

¹ 京都大学, ² 森林総合研究所

¹ Kyoto University, ² FFPRI

Figure 1. GC-MS total ion chromatogram

Introduction

Organic compounds are major components of atmospheric aerosols which affect the global radiative balance by directly scattering sunlight and indirectly as cloud condensation nuclei. A significant fraction of atmospheric organic aerosols are formed through gas-to-particle conversion process with oxidation of precursors such as volatile organic compounds (VOCs) in the gas phase. These are referred to as secondary organic aerosols (SOA). Recently, SOA formation from biogenic volatile organic compounds (BVOCs), especially isoprene has been paid attention. Global isoprene emission is far higher than those of biogenic terpenes and anthropogenic VOCs. Claeys et al. (2004) first identified oxidation products of isoprene in the Amazonian rain forest aerosols. Since then, some studies have been conducted to detect the oxidation products in ambient air samples, however, there is little data in Asian regions. We have measured organic compounds in the aerosols collected at a forest with strong isoprene emitters in Japan.

Methods

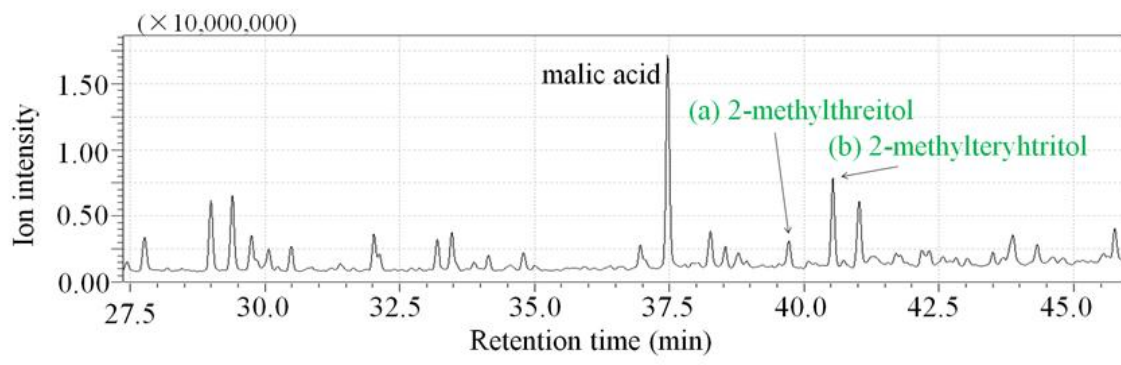
Atmospheric aerosols were collected at a tower above a forest canopy in southern Kyoto, Japan, between 2009 and 2010. YMS is in a mixed temperate forest with *Quercus serrata* (Japanese oak); one of the major tree species in Japan. The oak is a strong isoprene emitter (Okumura et al., 2008). A high-volume sampler with a PTFE filter was installed in a tower (about 30m above ground) to collect aerosol samples. Organic compounds on a part of the PTFE filter were extracted in a 1:1 dichloromethane/methanol mixture under ultrasonic agitation. The extracts were filtered through a Teflon filter and the filtrate was concentrated by reducing the volume with a rotary evaporator. The concentrates were dried under a nitrogen stream. The dry residue was derivatized by adding bis(trimethylsilyl)trifluoroacetamide (BSTFA, with 1% TMCS) and pyridine. Samples were heated for 2h at 70°C to complete the derivatization reaction and then subjected to GC-MS analysis. To determine the quantity of compounds, glycerol and meso-erythritol were used for internal standard substances.

Results and Discussion

We have identified carboxylic acids and tetrol compounds as well as levoglucosan, a tracer of biomass combustion. Based on the retention time data, etc., the detected tetrols were likely to be isoprene SOA tracers (e.g. 2-methyltreitol and 2-methylerythritol), reported in the previous experiments (e.g. Claeys et al., 2004). A strong relationship between temperature and total mass concentration of the tetrols is quite similar to the temperature dependence of isoprene emissions (Okumura et al., 2008), also suggesting that they are isoprene SOA tracers.

Claeys, M. et al., (2004). *Science*, 303, 1173-1176.

Okumura, M. et al., (2008). *J. Agric. Meteorol.*, 64, 49-60.



AAS021-P19

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

エアロゾル質量分析計で得られた有機エアロゾル濃度データのPMF因子解析 Application of Positive Matrix Factorization to Data of Organic Mass Concentration Obtained by Aerosol Mass Spectrometer

伊礼 聡^{1*}, 高見 昭憲¹, 疋田 利秀², 下野 彰夫²
SATOSHI IREI^{1*}, Akinori Takami¹, Toshihide Hikida², Akio Shimono²

¹(独) 国立環境研究所, ²(株) 汀線科学研究所

¹NIES, ²Shoreline Science

近年大陸からの越境輸送によりわが国の大気環境の悪化が懸念されている。汚染物質の中でも、大気浮遊粒子状物質(エアロゾル)は健康影響及び気候変動との関連性が示唆されているため、そのモニタリングは重要となる。これまで、越境してくるエアロゾルの影響を直接受けると考えられる長崎県福江島などにおいて、エアロゾルの化学組成分析(硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩、塩化物、有機物)及びこれら化学種の濃度変動を Aerodyne 社製エアロゾル質量分析計により観測してきた。今回、2009年春に得られた質量スペクトルデータを用いて因子解析(Positive Matrix Factorization (PMF)による解析)を行い、有機エアロゾルのスペクトルパターン及びこれらの定量的評価の見積りを試みた。

PMFによる解析結果が示したのは、因子が2つから5つのときに観測データが説明できるようであった。その内、因子数が2つから5つに増えていけばより計算上の残渣が測定誤差に近づき、計算上5つの因子が最もフィットする結果となった。しかしながら、これらの質量スペクトルパターンの変動を観察すると、因子数が3つ以上だと非常に類似した(重複した)スペクトルパターンの出現、あるいはこれまで多数報告されている質量スペクトルと一致しないスペクトルパターンが出現し始め、説明可能なスペクトルパターンを余計に分解しているように見受けられた。このことから、福江で観測された有機エアロゾルは3つの因子で説明できる可能性が示唆された。レファレンスとなるスペクトルパターンと比較すると、このうち2つの因子は炭化水素を多く含む有機エアロゾル(HOA)と酸素を多く含む有機エアロゾル(OOA)と認識されているスペクトルパターンを示し、これらの濃度データはそれぞれCOとオゾンのMixing Ratioと良い相関が見られた。

キーワード: エアロゾル質量分析計, PMF, エアロゾル, 二次生成有機エアロゾル

Keywords: AMS, PMF, Aerosol, SOA

AAS021-P20

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

ヨウ素滴定法による二次有機エアロゾル中のオキシダントの測定

Measurement of oxidants present in secondary organic aerosol using spectrophotometric Iodometry

佐藤 圭^{1*}, 藤谷 雄二¹, 瀬田 孝将¹, 今村 隆史¹, 高見 昭憲¹
Kei Sato^{1*}, Yuji Fujitani¹, Takamasa Seta¹, Takashi Imamura¹, Akinori Takami¹

¹ 国立環境研究所

¹NIES

エアロゾルやその水溶液中における酸化還元反応はエアロゾルの組成や人の健康に影響を及ぼすと考えられているが、大気エアロゾルの主要成分である二次有機エアロゾル (Secondary Organic Aerosol: SOA) 中のオキシダント量についてはあまり知られていない。本研究では、 α -ピネンのオゾン分解および1,3,5-トリメチルベンゼン (TMB) のNO_x光酸化の室内実験を行ってSOAを生成し、SOA中に存在するオキシダントをヨウ素滴定 (KI) 法によって定量した。ピネンおよびTMBの反応で測定されたオキシダント / SOAの質量比は 0.45 ± 0.08 および 0.17 ± 0.03 であった。ピネンの結果は以前の報告値 (0.47 ± 0.12) を再現し、TMBの結果は以前に測定されたトルエンの結果 (0.16-0.18) に近かった。一方、最近行われたジチオトレイトール (DTT) 法の試験によって、TMBのNO_x酸化で生成するSOAの酸化能はモノテルペンよりも高いと報告された。KI法で測定されるオキシダントは主に有機過酸化物 (ROOHおよびROOR) である。これに対しDTT法では、これら有機過酸化物との反応の他、キノンを触媒とする連鎖反応でDTTが過剰に消費されると考えられる。KI法やDTT法で得られる酸化能を解釈するには、SOAの毒性試験との比較が必要であろう。

参考文献:

K. S. Docherty, W. Wu, Y. B. Lim, and P. J. Ziemann, Contributions of organic peroxides to secondary aerosol formed from reactions of monoterpenes with O₃, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 4049-4059 (2005).

K. Sato, S. Hatakeyama, and T. Imamura, Secondary organic aerosol formation during the photooxidation of toluene: NO_x dependence of chemical composition, *J. Phys. Chem. A*, 39, 9796-9808 (2007).

竹川秀人, 高須施聞, 木崎好美, 大気微粒子中の酸化能, 第51回大気環境学会年会, 予稿集 p. 266, 2010年9月.

キーワード: 二次有機エアロゾル, 酸化ストレス, 雲過程, ヨウ素滴定法, 芳香族炭化水素, モノテルペン

Keywords: secondary organic aerosol, oxidative stress, cloud process, iodometry, aromatic hydrocarbon, monoterpene

AAS021-P21

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

硫化カルボニルの大気中消滅反応における硫黄同位体分別 Sulfur isotope fractionations in carbonyl sulfide sink reactions in atmosphere.

服部 祥平^{1*}, ダニエラチェ セバスチアン¹, ジョンソン S マシュー², Henrik G. Kjaergaard², 上野 雄一郎³, 吉田 尚弘¹
Shohei Hattori^{1*}, Sebastian Danielache¹, Matthew S. Johnson², Henrik G. Kjaergaard², Yuichiro Ueno³, Naohiro Yoshida¹

¹ 東京工業大学総合理工学研究科, ² コペンハーゲン大学, ³ 東京工業大学理工学研究科地球惑星科学専攻
¹Tokyo Institute of Technology, ²University of Copenhagen, ³Tokyo Institute of Technology

Carbonyl sulfide (OCS), a relatively inert tropospheric sulfur compound is thought to play an important role as a source of background stratospheric sulfate aerosols (SSA). The main sink for OCS in the stratosphere is photolysis which reaches 80% of the total chemical sink at above 20 km; other sinks include reactions with O(³P) and OH. In order to investigate isotope fractionation in OCS sink reactions at present atmosphere, we undertook laboratory experiments. First, we investigated wavelength dependence of kinetic isotope effect in OCS photolysis. The absolute ultraviolet (UV) absorption cross sections of OCS isotopologues OC³²S, OC³³S, and OC³⁴S were measured using labeled samples prepared in the laboratory. The observed cross section of OC³²S is consistent with previous reported cross sections of natural abundance samples. The peak positions for labeled samples were shifted in a systematic way. Isotopologue absorptions cross sections were not only shifted in energy but in intensity. In particular, the OC³³S isotopologue had the largest cross section of the measured OCS isotopologues. This finding indicates that OCS photolysis may have a positive mass-independent effect on sulfur in the stratosphere. In addition, relative rate constants of OCS sink reaction with O(³P) and OH were investigated using photochemical chamber.

キーワード: 同位体分別, 光解離, 硫黄循環, 硫化カルボニル, 波長依存

Keywords: isotope fractionation, photolysis, sulfur cycle, carbonyl sulfide, wavelength dependence

Japan Geoscience Union Meeting 2011

(May 22-27 2011 at Makuhari, Chiba, Japan)

©2011. Japan Geoscience Union. All Rights Reserved.



AAS021-P22

会場:コンベンションホール

時間:5月23日 16:15-18:45

SO₂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 SO₂ Isotopologues Photolysis UV Spectra

ダニエラチェ セバスチアン^{1*}

Sebastian Danielache^{1*}

¹ 東工大総理工 環境理工学創造専攻

¹Tokyo Institute of Technology

We report measurements of the ultraviolet absorption cross sections of ³²SO₂, ³³SO₂, ³⁴SO₂ and ³⁶SO₂, recorded using a Bruker vacuum Fourier-transform spectrometer 190 to 220 nm at 293 K with a resolution of 8 cm⁻¹. The samples were produced by combustion of isotopically enriched ³²S, ³³S, ³⁴S and ³⁶S elemental Sulfur. The spectrum of the ³²S, ³³S and ³⁴S samples are in agreement with previously published spectra. We conclude that the main source of error is the standard deviation of the measurements themselves while the root-mean-square of other sources of error is in average 20%. The spectra of the isotopically pure species were corrected based on the isotopic composition of the samples used for the measurements. The absorption spectra show rich vibrational structure and the positions and widths of the peaks change with isotopic substitution in a complex fashion.

We present here the application of the first direct laboratory studies of the absorption cross sections of the ³²SO₂, ³³SO₂, ³⁴SO₂ and ³⁶SO₂ isotopologues. These data, together with extrapolated spectra by red shifting are used to derive the photolytic fractionation factors and the mass independent anomaly at different levels of present atmospheric levels (PAL) of oxygen. By comparison of the employed data sets it is discussed the origin of the mass independency factor during the photolysis in the presence of oxygen. Our results show that the mass independency is a combination of red shifting of the heavier isotopes and the change in the absorption cross section which is independent of the isotopomers. The obtained results give a new insight of the possibilities of mass independent fractionations observed in archean rock samples or stratospheric aerosols.

キーワード: SO₂, 硫黄同位体

Keywords: SO₂, Sulfur isotopes