

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 CO<sub>2</sub> flux emissions: reconstructions of in-situ measurements from Lagrangian stochastic inversion

## Constraints on CO<sub>2</sub> flux emissions: reconstructions of in-situ measurements from Lagrangian stochastic inversion

Ignacio Pisco<sup>1\*</sup>, Prabir Patra<sup>1</sup>, Masayuki Takigawa<sup>1</sup>, Takakiyo Nakazawa<sup>2</sup>, Yousuke Sawa<sup>3</sup>, Toshinobu Machida<sup>4</sup>, Hidekazu Matsueda<sup>3</sup>

Ignacio Pisco<sup>1\*</sup>, Prabir Patra<sup>1</sup>, Masayuki Takigawa<sup>1</sup>, Takakiyo Nakazawa<sup>2</sup>, Yousuke Sawa<sup>3</sup>, Toshinobu Machida<sup>4</sup>, Hidekazu Matsueda<sup>3</sup>

<sup>1</sup>JAMSTEC, <sup>2</sup>Tohoku University, <sup>3</sup>MRI, <sup>4</sup>NIES

<sup>1</sup>JAMSTEC, <sup>2</sup>Tohoku University, <sup>3</sup>MRI, <sup>4</sup>NIES

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  $4.8 \times 10^{-7}$  to  $3.45 \times 10^{-7}$   $\text{kg}_{chem\{CO_2\}} \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$  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<sup>1\*</sup>

Satoshi Kusakari<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 名古屋大学太陽地球環境研究所

<sup>1</sup>Solar-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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  - 1.576  $\mu\text{m}$  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 CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O 同位体の同時観測 Observation of isotopic compositions of CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O in an urban region

竹村 匡弘<sup>1\*</sup>, 和田 龍一<sup>1</sup>, 中山 智喜<sup>1</sup>, 松見 豊<sup>1</sup>, 檜山 哲哉<sup>2</sup>, 井上元<sup>2</sup>, 栗田 直幸<sup>3</sup>, 藤吉 康志<sup>4</sup>, 村本健一郎<sup>5</sup>, 高梨 聡<sup>6</sup>  
Masahiro Takemura<sup>1\*</sup>, Ryuichi Wada<sup>1</sup>, Tomoki Nakayama<sup>1</sup>, Yutaka Matsumi<sup>1</sup>, Tetsuya Hiyama<sup>2</sup>, Gen Inoue<sup>2</sup>, Naoyuki Kurita<sup>3</sup>,  
Yasushi Fujiyoshi<sup>4</sup>, Kenichiro Muramoto<sup>5</sup>, Satoru Takanashi<sup>6</sup>

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

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

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 (<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sup>16</sup>O、<sup>13</sup>C<sup>16</sup>O<sup>16</sup>O、<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O) および水蒸気同位体比 (D<sub>2</sub>O、H<sub>2</sub><sup>18</sup>O) を同時観測した。CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> の同位体比 (デルタ <sup>13</sup>C, デルタ <sup>18</sup>O) 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 CO<sub>2</sub>, 都市大気

Keywords: CO<sub>2</sub> isotopes, H<sub>2</sub>O isotopes, laser spectroscopy, ecosystem, atmospheric CO<sub>2</sub>, 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 CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> over Narita Airport to the magnitude of regional surface fluxes

白井 知子<sup>1\*</sup>, 町田 敏暢<sup>1</sup>, Shamil Maksyutov<sup>1</sup>, 曾継業<sup>1</sup>, 松枝 秀和<sup>2</sup>, 澤 庸介<sup>2</sup>, 丹羽洋介<sup>2</sup>, Kaz Higuchi<sup>3</sup>  
Tomoko Shirai<sup>1\*</sup>, Toshinobu Machida<sup>1</sup>, Shamil Maksyutov<sup>1</sup>, Jiye Zeng<sup>1</sup>, Hidekazu Matsueda<sup>2</sup>, Yousuke Sawa<sup>2</sup>, Yosuke Niwa<sup>2</sup>, Kaz Higuchi<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 国立環境研究所, <sup>2</sup> 気象研究所, <sup>3</sup> ヨーク大学

<sup>1</sup>NIES, <sup>2</sup>MRI, <sup>3</sup>York Univ.

The synoptic scale variability of CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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, CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> SD was increased in the FT, when strong CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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: CO<sub>2</sub>, 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

## CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> surface flux on CO<sub>2</sub> transport model MJ98-CDTM

横尾 好朗<sup>1\*</sup>, 眞木貴史<sup>2</sup>, 宮崎和幸<sup>3</sup>, 山田 和孝<sup>4</sup>, 岩崎俊樹<sup>1</sup>

Yoshiaki Yokoo<sup>1\*</sup>, Takashi Maki<sup>2</sup>, Kazuyuki Miyazaki<sup>3</sup>, Kazutaka Yamada<sup>4</sup>, Toshiki Iwasaki<sup>1</sup>

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

<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>MRI, <sup>3</sup>JAMSTEC, <sup>4</sup>JMA

化学輸送モデルを用い、CO<sub>2</sub> 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: CO<sub>2</sub>, 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<sup>1\*</sup>, 町田 敏暢<sup>1</sup>, 津田憲次<sup>2</sup>, 下山宏<sup>3</sup>, Mikhail Arshinov<sup>4</sup>, Denis Davydov<sup>4</sup>, Alexandrov Fofonov<sup>4</sup>, Oleg Krasnov<sup>4</sup>  
Motoki Sasakawa<sup>1\*</sup>, Toshinobu Machida<sup>1</sup>, Noritsugu Tsuda<sup>2</sup>, Kou Shimoyama<sup>3</sup>, Mikhail Arshinov<sup>4</sup>, Denis Davydov<sup>4</sup>, Alexandrov Fofonov<sup>4</sup>, Oleg Krasnov<sup>4</sup>

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

**Figure.** Vertical profiles of CO<sub>2</sub> concentration (ppm) observed over the tower.

### 1. Introduction

To understand the difference in CO<sub>2</sub> behavior between planetary boundary layer (PBL) and free troposphere (FT) over Siberian taiga, we have conducted CO<sub>2</sub> measurements using a small aircraft and a tower at the taiga in West Siberia since 2002. Continuous CO<sub>2</sub> time series at 4 levels (5, 20, 40, and 80 m) were monitored with the tower. Up to 3 km vertical CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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

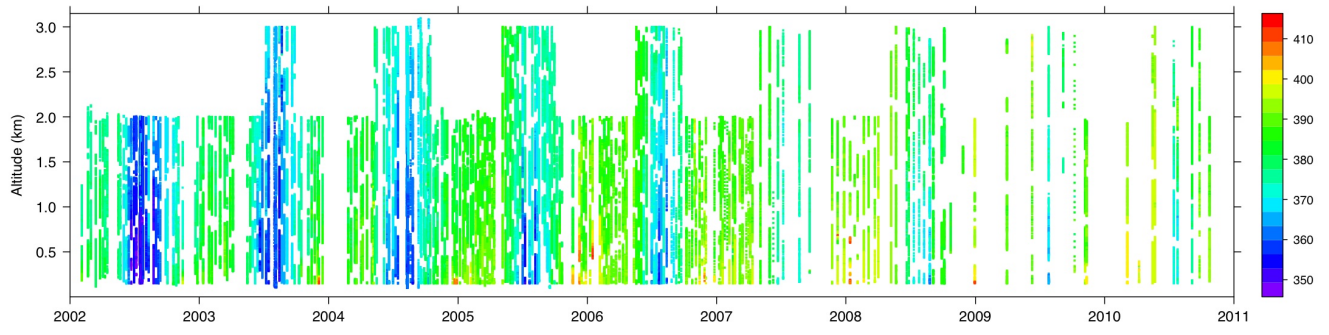
Figure shows the vertical profiles of CO<sub>2</sub> concentration observed by routine flights (261 times) from 2002 to 2010. Carbon dioxide concentrations showed slightly higher in the lower altitude during the dormant season. On the other hand, CO<sub>2</sub> concentration during summer gradually decreased 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 CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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 CO<sub>2</sub> 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<sup>1\*</sup>, 遠嶋 康徳<sup>1</sup>, Belikov Dmitry<sup>1</sup>, Maksyutov Shamil<sup>1</sup>  
Chika Minejima<sup>1\*</sup>, Yasunori Tohjima<sup>1</sup>, Dmitry Belikov<sup>1</sup>, Shamil Maksyutov<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 国立環境研究所

<sup>1</sup>NIES

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



## 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 N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> variability in the upper troposphere over the western Pacific derived by model simulations

石島 健太郎<sup>1\*</sup>, Patra Prabir<sup>1</sup>, 町田 敏暢<sup>2</sup>, 松枝 秀和<sup>3</sup>, 澤 庸介<sup>3</sup>, 梅澤 拓<sup>4</sup>, 青木 周司<sup>4</sup>, 中澤 高清<sup>4</sup>

Kentaro Ishijima<sup>1\*</sup>, Prabir Patra<sup>1</sup>, Toshinobu Machida<sup>2</sup>, Hidekazu Matsueda<sup>3</sup>, Yousuke Sawa<sup>3</sup>, Taku Umezawa<sup>4</sup>, Shuji Aoki<sup>4</sup>, Takakiyo Nakazawa<sup>4</sup>

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

<sup>1</sup>JAMSTEC, <sup>2</sup>NIES, <sup>3</sup>MRI, <sup>4</sup>Tohoku University

Multiple greenhouse gases simulations with tagged-tracers are performed to mainly understand surface-source influences on latitudinal-temporal variabilities of nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) and methane (CH<sub>4</sub>) 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 SF<sub>6</sub> 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 N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> 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 N<sub>2</sub>O, concentration values around 30N and 30S are largely fluctuated by stratospheric intrusions, which lower N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O 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 N<sub>2</sub>O emitted from South Asia to this region in the UT over the western Pacific. Around 10S, N<sub>2</sub>O 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. CH<sub>4</sub> shows slightly different features of affecting source regions from those of N<sub>2</sub>O. 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 CH<sub>4</sub> loss by OH enhanced in the tropics and transport of CH<sub>4</sub> through the region to the UT for better understanding the different emission region affecting around 10S between N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub>.

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: N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, 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<sup>1\*</sup>, 笠井 康子<sup>1</sup>, バロン フィリップ<sup>1</sup>, 落合 啓<sup>1</sup>, Mendrok Jana<sup>2</sup>, UT/LS humidity & ice-cloud research team<sup>3</sup>  
Hideo Sagawa<sup>1\*</sup>, YASUKO KASAI<sup>1</sup>, Philippe Baron<sup>1</sup>, Satoshi Ochiai<sup>1</sup>, Jana Mendrok<sup>2</sup>, UT/LS humidity & ice-cloud research team<sup>3</sup>

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

<sup>1</sup>NICT, <sup>2</sup>Lulea University of Technology, Sweden, <sup>3</sup>NICT, 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<sup>1\*</sup>, 須藤 健悟<sup>2</sup>, 滝川 雅之<sup>1</sup>

Hisashi Yashiro<sup>1\*</sup>, Kengo Sudo<sup>2</sup>, Masayuki Takigawa<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 海洋研究開発機構 地球環境変動領域, <sup>2</sup> 名古屋大学大学院環境学研究科

<sup>1</sup>JAMSTEC/RIGC/EBCRP, <sup>2</sup>Graduate 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<sup>1\*</sup>, 鵜野伊津志<sup>2</sup>, 大原利真<sup>3</sup>, アンドレアス・リヒター<sup>4</sup>, ジョン・パローズ<sup>4</sup>  
Katsuyuki Noguchi<sup>1\*</sup>, Itsushi Uno<sup>2</sup>, Toshimasa Ohara<sup>3</sup>, Andreas Richter<sup>4</sup>, John P. Burrows<sup>4</sup>

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

<sup>1</sup>University of Bremen/Nara Women's Univ., <sup>2</sup>Kyushu University, <sup>3</sup>NIES, <sup>4</sup>University 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 (NO<sub>2</sub>) 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 NO<sub>2</sub> 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 NO<sub>2</sub> 輸送に焦点を当て、人工衛星による対流圏 NO<sub>2</sub> 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 NO<sub>2</sub> 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 NO<sub>2</sub> 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 O<sub>3</sub> radiometer using D-UV LED

北 和之<sup>1\*</sup>

Kazuyuki Kita<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>茨城大学理学部

<sup>1</sup>Faculty 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<sup>1\*</sup>, 茂木 信宏<sup>1</sup>, 宮川 拓真<sup>1</sup>, 近藤 豊<sup>1</sup>  
Sho Ohata<sup>1\*</sup>, Nobuhiro Moteki<sup>1</sup>, Takuma Miyakawa<sup>1</sup>, Yutaka Kondo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学先端科学技術研究センター

<sup>1</sup> 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 ( $\text{L sec}^{-1}$ ) 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<sup>1\*</sup>, 北 和之<sup>2</sup>, 大島 長<sup>3</sup>, 茂木 信宏<sup>4</sup>, 竹川 暢之<sup>4</sup>, 小池 真<sup>5</sup>, 近藤 豊<sup>4</sup>

Masahiro Yano<sup>1\*</sup>, Kazuyuki Kita<sup>2</sup>, Naga Oshima<sup>3</sup>, Nobuhiro Moteki<sup>4</sup>, Nobuyuki Takegawa<sup>4</sup>, Makoto Koike<sup>5</sup>, Yutaka Kondo<sup>4</sup>

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

<sup>1</sup>Graduate School, Ibaraki University, <sup>2</sup>Faculty of Science, Ibaraki University, <sup>3</sup>Meteorological Research Institute, <sup>4</sup>Research Center, University of Tokyo, <sup>5</sup>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 Pan<sup>1</sup>, 金谷 有剛<sup>1</sup>, Zifa Wang<sup>2</sup>, 谷本 浩志<sup>3</sup>, 竹谷 文一<sup>1\*</sup>, 秋元 肇<sup>4</sup>, Yu Liu<sup>2</sup>, Huabin Dong<sup>2</sup>, Jie Li<sup>2</sup>, Baozhu Ge<sup>2</sup>, Xiquan Wang<sup>2</sup>

Xiaole Pan<sup>1</sup>, Yugo Kanaya<sup>1</sup>, Zifa Wang<sup>2</sup>, Hiroshi Tanimoto<sup>3</sup>, Fumikazu Taketani<sup>1\*</sup>, Hajime Akimoto<sup>4</sup>, Yu Liu<sup>2</sup>, Huabin Dong<sup>2</sup>, Jie Li<sup>2</sup>, Baozhu Ge<sup>2</sup>, Xiquan Wang<sup>2</sup>

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

<sup>1</sup>JAMSTEC, <sup>2</sup>IAP, <sup>3</sup>NIES, <sup>4</sup>ACAP

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/m<sup>3</sup> 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/m<sup>3</sup>/ppbv and that for urban plumes in eastern China was 5.3 +/- 0.53 ng/m<sup>3</sup>/ppbv. The field campaign at Rudong site displayed different results with relatively lower  $\Delta BC/\Delta CO$  values of 4.5 +/- 0.2 ng/m<sup>3</sup>/ppbv for urban plumes and 8.9 +/- 0.3 ng/m<sup>3</sup>/ppbv in biomass burning influencing episode. This result for urban plumes was quiet similar with value (4.1 ng/m<sup>3</sup>/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<sup>1\*</sup>, 池田 恒平<sup>2</sup>

Masayuki Takigawa<sup>1\*</sup>, Kohei Ikeda<sup>2</sup>

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

<sup>1</sup>RIGC/JAMSTEC, <sup>2</sup>AORI/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/m<sup>2</sup> 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<sup>1</sup>, 鈴木博之<sup>1</sup>, 鏡谷聡美<sup>1</sup>, 中山 智喜<sup>1\*</sup>, 松見 豊<sup>1</sup>

Yuuki Goto<sup>1</sup>, Hiroyuki Suzuki<sup>1</sup>, Satomi Kagamitani<sup>1</sup>, Tomoki Nakayama<sup>1\*</sup>, Yutaka Matsumi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>名古屋大学太陽地球環境研究所

<sup>1</sup>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の加熱効果は、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 O<sub>3</sub> 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<sup>1\*</sup>, 川本 純平<sup>1</sup>, 東野 達<sup>1</sup>, 小南 裕志<sup>2</sup>, 深山 貴文<sup>2</sup>  
Motonori Okumura<sup>1\*</sup>, Junpei Kawamoto<sup>1</sup>, Susumu Tohno<sup>1</sup>, Yuji Kominami<sup>2</sup>, Takafumi Miyama<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 京都大学, <sup>2</sup> 森林総合研究所

<sup>1</sup> Kyoto University, <sup>2</sup> 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

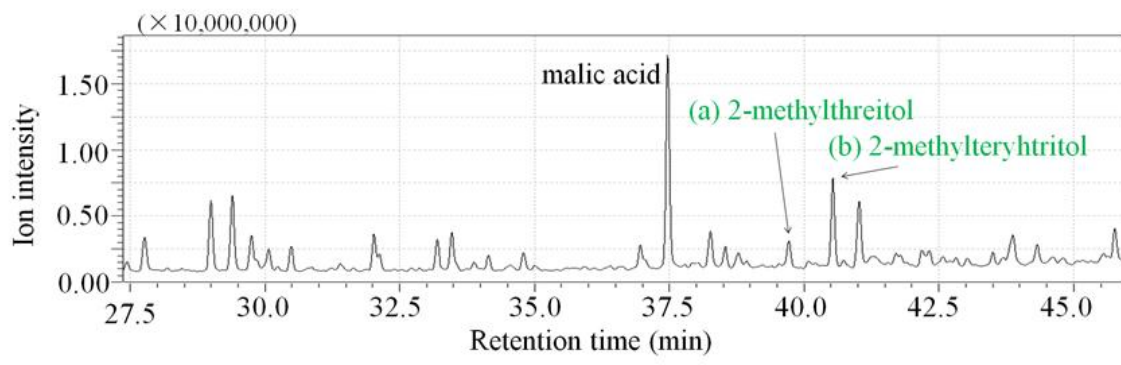
Atmospheric aerosols were collected at a tower above a forest canopy in southern Kyoto, Japan, between 2009 and 2010. YMS is in a mixed temperate forest with *Quercus serrata* (Japanese oak); one of the major tree species in Japan. The oak is a strong isoprene emitter (Okumura et al., 2008). A high-volume 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<sup>1\*</sup>, 高見 昭憲<sup>1</sup>, 疋田 利秀<sup>2</sup>, 下野 彰夫<sup>2</sup>  
SATOSHI IREI<sup>1\*</sup>, Akinori Takami<sup>1</sup>, Toshihide Hikida<sup>2</sup>, Akio Shimono<sup>2</sup>

<sup>1</sup>(独) 国立環境研究所, <sup>2</sup>(株) 汀線科学研究所

<sup>1</sup>NIES, <sup>2</sup>Shoreline 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<sup>1\*</sup>, 藤谷 雄二<sup>1</sup>, 瀬田 孝将<sup>1</sup>, 今村 隆史<sup>1</sup>, 高見 昭憲<sup>1</sup>  
Kei Sato<sup>1\*</sup>, Yuji Fujitani<sup>1</sup>, Takamasa Seta<sup>1</sup>, Takashi Imamura<sup>1</sup>, Akinori Takami<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 国立環境研究所

<sup>1</sup>NIES

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、 $\alpha$ -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<sub>x</sub>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 $0.45 \pm 0.08$ および $0.17 \pm 0.03$ であった。ピネンの結果は以前の報告値 ( $0.47 \pm 0.12$ ) 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<sub>x</sub>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 O<sub>3</sub>, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 4049-4059 (2005).

K. Sato, S. Hatakeyama, and T. Imamura, Secondary organic aerosol formation during the photooxidation of toluene: NO<sub>x</sub> 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<sup>1\*</sup>, ダニエラチェ セバスチアン<sup>1</sup>, ジョンソン S マシュー<sup>2</sup>, Henrik G. Kjaergaard<sup>2</sup>, 上野 雄一郎<sup>3</sup>, 吉田 尚弘<sup>1</sup>  
Shohei Hattori<sup>1\*</sup>, Sebastian Danielache<sup>1</sup>, Matthew S. Johnson<sup>2</sup>, Henrik G. Kjaergaard<sup>2</sup>, Yuichiro Ueno<sup>3</sup>, Naohiro Yoshida<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京工業大学総合理工学研究科, <sup>2</sup> コペンハーゲン大学, <sup>3</sup> 東京工業大学理工学研究科地球惑星科学専攻  
<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>University of Copenhagen, <sup>3</sup>Tokyo 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(<sup>3</sup>P) 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 OC<sup>32</sup>S, OC<sup>33</sup>S, and OC<sup>34</sup>S were measured using labeled samples prepared in the laboratory. The observed cross section of OC<sup>32</sup>S 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 OC<sup>33</sup>S 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(<sup>3</sup>P) 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

## SO<sub>2</sub>の紫外線スペクトルから見積もられた非質量依存同位体効果 NMD Fractionation Estimated from SO<sub>2</sub> Isotopologues Photolysis UV Spectra

ダニエラチェ セバスチアン<sup>1\*</sup>

Sebastian Danielache<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 東工大総理工 環境理工学創造専攻

<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology

We report measurements of the ultraviolet absorption cross sections of <sup>32</sup>SO<sub>2</sub>, <sup>33</sup>SO<sub>2</sub>, <sup>34</sup>SO<sub>2</sub> and <sup>36</sup>SO<sub>2</sub>, recorded using a Bruker vacuum Fourier-transform spectrometer 190 to 220 nm at 293 K with a resolution of 8 cm<sup>-1</sup>. The samples were produced by combustion of isotopically enriched <sup>32</sup>S, <sup>33</sup>S, <sup>34</sup>S and <sup>36</sup>S elemental Sulfur. The spectrum of the <sup>32</sup>S, <sup>33</sup>S and <sup>34</sup>S 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 <sup>32</sup>SO<sub>2</sub>, <sup>33</sup>SO<sub>2</sub>, <sup>34</sup>SO<sub>2</sub> and <sup>36</sup>SO<sub>2</sub> 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: SO<sub>2</sub>, 硫黄同位体

Keywords: SO<sub>2</sub>, Sulfur isotopes