

## SMILES が捉えた成層圏・中間圏の HO<sub>2</sub> ラジカルの日変動 SMILES measurements of diurnal variations of hydroperoxyl radical (HO<sub>2</sub>) in the stratosphere and mesosphere

鈴木 尚<sup>1\*</sup>, 佐川 英夫<sup>2</sup>, 中野 幸夫<sup>1</sup>, 水野 のり<sup>2</sup>, 笠井 康子<sup>2</sup>  
Nao Suzuki<sup>1\*</sup>, Hideo Sagawa<sup>2</sup>, Yukio Nakano<sup>1</sup>, Nori Mizuno<sup>2</sup>, Yasuko Kasai<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京学芸大学, <sup>2</sup> 情報通信研究機構  
<sup>1</sup>Tokyo Gakugei University, <sup>2</sup>NICT

### 1 序論

HO<sub>2</sub> ラジカルは大気的主要な酸化反応に関与する重要な酸化体の1つである。成層圏・中間圏において HO<sub>2</sub> の体積混合比は約 10 億分の 1 と非常に微量であり、これまで観測は非常に困難であった。そのため、HO<sub>2</sub> の日変動などのふるまいは明らかになっていない。

本研究では、国際宇宙ステーション (ISS) 搭載の超伝導サブミリ波リム放射サウンダ (SMILES) により観測されたデータを用いて、HO<sub>2</sub> 濃度の高度分布や日変動を解析した。解析した結果から、成層圏および中間圏大気の HO<sub>2</sub> の生成・消失反応について考察を行った。

### 2 SMILES による HO<sub>2</sub> 観測

SMILES のプラットフォームである ISS は地上から 320-340 km 上空にあり、約 90 分で地球を一周する。SMILES の地球上の観測点数は、1 日に約 1630 点であり、2009 年 9 月-2010 年 4 月にかけて、65° N-38° S の緯度帯を中心に観測した。SMILES は、大気中に含まれる微量物質が発しているサブミリ波領域の電波を受信し、音響光学型分光計によって分光されたスペクトルを測定する。得られた放射輝度スペクトルを反転解析することで、大気中の HO<sub>2</sub> の混合比鉛直分布を導出している。本研究では 649.70 GHz に遷移周波数をもつ HO<sub>2</sub> のスペクトル強度解析によってえられた HO<sub>2</sub> の体積混合比データを用いて、以下の方法で HO<sub>2</sub> の高度分布および日変動を解析した。

【日中・夜間における HO<sub>2</sub> の高度分布】SMILES で観測した HO<sub>2</sub> データを用いて、赤道域 (20° N-20° S)、中緯度 (20° N-50° N)、極域 (50° N-65° N) の 3 つの緯度領域における HO<sub>2</sub> の高度分布を導出し、日中と夜間の変化について調べた。

【成層圏と中間圏における HO<sub>2</sub> 濃度の日変動】SMILES で観測した HO<sub>2</sub> データを用いて、成層圏 (高度 18-50 km) と中間圏 (高度 50-80 km) における HO<sub>2</sub> 濃度を上記の緯度範囲ごとに導出した。横軸に太陽天頂角をとることにより、HO<sub>2</sub> 濃度の日変動について調べた。

### 3 結果・考察

HO<sub>2</sub> の高度分布から、HO<sub>2</sub> 濃度のピーク高度は、日中では約 75 km、夜間では約 80 km に存在し、日中、夜間ともに、中間圏でピークが見られた。このことは、各緯度領域においても共通の結果であった。

図 1 に示したように、本研究では中間圏から下部熱圏にかけて全球の HO<sub>2</sub> の日変動をはじめ高精度で観測することに成功した。日中の HO<sub>2</sub> 濃度の増加は明らかに光化学反応が関わっていることがわかる。成層圏では、O<sub>3</sub> の光解離反応から生成する励起酸素原子、O(<sup>1</sup>D) と H<sub>2</sub>O の反応、中間圏ではそれに加えてさらに、H<sub>2</sub>O の光解離反応によって HO<sub>2</sub> の生成メカニズムを説明することができる。

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

キーワード: オキシダント, HO<sub>2</sub>, 過酸化水素ラジカル, 日変動, 成層圏, 中間圏

Keywords: oxidant, HO<sub>2</sub>, hydroperoxyl radical, diurnal variation, stratosphere, mesosphere

AAS21-P01

会場:コンベンションホール

時間:5月19日 18:15-19:30

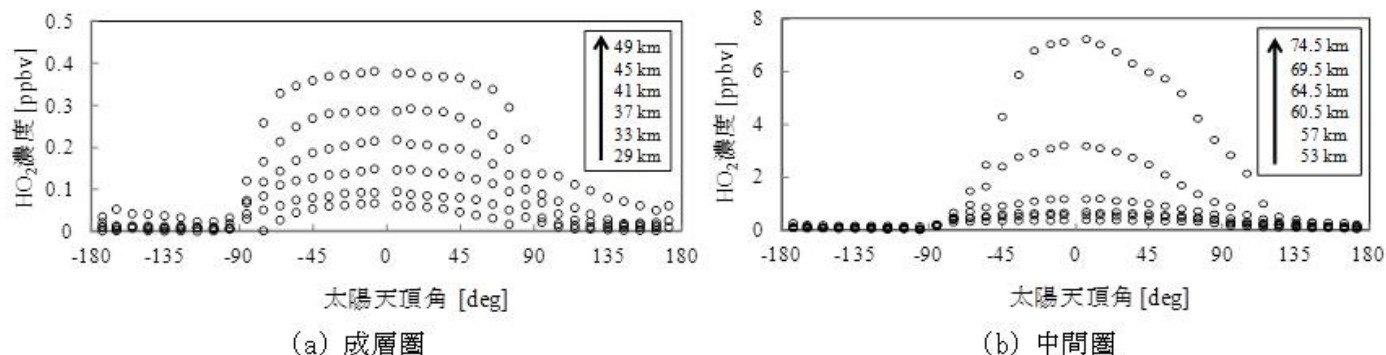


図1 SMILESが捉えた成層圏および中間圏における赤道域でのHO<sub>2</sub>の日変動(高度29.0 km-74.5 km)

## 2009-2011年にFTIRで観測された北極オゾン層破壊の日本への影響 Impacts of the Arctic ozone depletion on Japan observed with FTIR between 2009 and 2011

橋本 優希<sup>1\*</sup>, 村田功<sup>1</sup>, 中島英彰<sup>2</sup>, 森野勇<sup>2</sup>  
yuki hashimoto<sup>1\*</sup>, Isao Murata<sup>1</sup>, Hideaki Nakajima<sup>2</sup>, Isamu Morino<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東北大学大学院環境科学研究科, <sup>2</sup> 国立環境研究所

<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>National Institute for Environmental Studies

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

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

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

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

### 参考文献

後藤秀美, フーリエ変換型赤外分光計を用いたつくば上空 O<sub>3</sub>, HCl, HF の高度分布観測, 2010 (修士論文)

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

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

佐藤 隆雄<sup>1\*</sup>, 佐川 英夫<sup>2</sup>, 入江 仁士<sup>3</sup>, 野口 克行<sup>4</sup>, 齋藤 尚子<sup>3</sup>, 今須 良一<sup>5</sup>, 林 洋司<sup>5</sup>, 笠井 康子<sup>2</sup>

Takao M. Sato<sup>1\*</sup>, Hideo Sagawa<sup>2</sup>, Hitoshi Irie<sup>3</sup>, Katsuyuki Noguchi<sup>4</sup>, Naoko Saitoh<sup>3</sup>, Ryoichi Imasu<sup>5</sup>, Yoji Hayashi<sup>5</sup>, YASUKO KASAI<sup>2</sup>

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

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

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

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

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

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

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

キーワード: 国際宇宙ステーション, 対流圏オゾン, 多波長観測

Keywords: International Space Station, Tropospheric ozone, Multispectral observations

## GOSAT/TANSO-FTS の TIR バンド CO<sub>2</sub> および CH<sub>4</sub> プロファイル導出アルゴリズムの改良

### Improvement of retrieval algorithm of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> profiles from GOSAT/TANSO-FTS TIR band

齋藤 尚子<sup>1\*</sup>, 今須良一<sup>2</sup>

Naoko Saitoh<sup>1\*</sup>, IMASU, Ryoichi<sup>2</sup>

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

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

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

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

Keywords: greenhouse gas, satellite remote sensing, retrieval algorithm

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

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

丸野 浩市<sup>1</sup>, 村田 功<sup>2\*</sup>, 笠井 康子<sup>3</sup>, 香川 晶子<sup>4</sup>, 笠羽 康正<sup>1</sup>

Koichi Maruno<sup>1</sup>, Isao Murata<sup>2\*</sup>, YASUKO KASAI<sup>3</sup>, Kagwa Akiko<sup>4</sup>, Yasumasa Kasaba<sup>1</sup>

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

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

メタン(CH<sub>4</sub>)は二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)に次ぎ2番目に地球温暖化に寄与する物質であり、地球温暖化予測のためにはその時空間変動を詳細に調べる必要がある。そのなかでも北極域は湿地や永久凍土・天然ガス田が存在していて、CH<sub>4</sub>の地球大気への大きな供給源となっている。この北極域でのCH<sub>4</sub>の季節変化や年々変化を把握することは近年重要性が増してきている。

本研究では、北極域におけるCH<sub>4</sub>のトレンドに注目し、情報通信研究機構(NICT)がアラスカ・ポーカークラット(北緯65.11度、西経147.42度)に設置しているFTIR(Fourier Transform Infrared Spectrometer)の観測データを用いてCH<sub>4</sub>高度分布の変動を解析した。ポーカークラットFTIRは2000-2010年に観測を行っており、北極域で10年以上観測している数少ない重要な観測地点である。本研究では観測の無かった2006年を除いた10年間の観測データを用いた。

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

得られた高度分布から下部成層圏カラム(10-21km)・対流圏カラム(0-10km)・トータルカラム(0-100km)の3つの時系列を作成し、季節変化と経年変化を議論した。季節変化については、下部成層圏カラムでは春と秋に最も低く、夏に最も高いという季節変化が得られた。これは成層圏における夏極から冬極に向かう大気循環によるものと考えられる。対流圏カラムでは、春と秋に最も高く、夏には最も低い値をとる季節変化が得られた。これはCH<sub>4</sub>の消滅源であるOHラジカルが夏に大量に生成されるからだと考えられる。トータルカラムは、その80%近くが対流圏カラムであるので、対流圏の季節変化と同じく春と秋に最も高く、夏には最も低い値が得られた。

経年変化については、Digital fitting[Nakazawa et al., 1997]を用いたトレンド解析を行い、評価した。下部成層圏カラムは2000-2010年の間に大きな変化は得られなかった。対流圏カラムでは2007年から2008年にかけて増加傾向が見られ、2008年に最大値となる結果が得られた。その後、2009、2010年は値が低くなり、減少傾向が得られた。2008年に増加し高い値をとったのは、2007年の北極域での気温上昇による湿地からのCH<sub>4</sub>発生の増加が考えられる[Dlugokencky et al., 2009]。2009年に減少したのは、リーマンショックによる天然ガスの世界的な消費の減少による影響が考えられる。トータルカラムは、対流圏カラムの占める割合が大きいため対流圏と同じような傾向が得られた。

今回得られたポーカークラットにおける対流圏CH<sub>4</sub>の経年変化は、ドイツや東アジアにおける観測とは2008年以降の傾向が異なっていた。このように経年変化に地域による違いがあることから、多くの場所で観測することはCH<sub>4</sub>の生成や消滅の変化を特定するための重要な手段であることが示された。

キーワード: メタン, フーリエ変換型赤外分光計

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

## 赤外分光観測におけるメタン高度分布導出のための解析波数領域の最適化 Optimization of wavenumber regions for the retrieval of the vertical profiles of CH<sub>4</sub> from infrared spectra

村田 功<sup>1\*</sup>, 中島 英彰<sup>2</sup>, 森野 勇<sup>2</sup>

Isao Murata<sup>1\*</sup>, Hideaki Nakajima<sup>2</sup>, Isamu Morino<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東北大学大学院環境科学研究科, <sup>2</sup> 国立環境研究所

<sup>1</sup>Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, <sup>2</sup>National Institute for Environmental Studies

CH<sub>4</sub> は CO<sub>2</sub> に次ぐ温室効果ガスであるが、発生源である水田、家畜、化石燃料、湿地等のそれぞれからの寄与やその変動に関しては不明な点も多く、地表付近の濃度の増加率が年によって大きく変動する原因もよく分かっていない。一方、成層圏においては CH<sub>4</sub> の化学反応への寄与は増大し、CH<sub>4</sub> の酸化が最終的には水蒸気の供給源であること等からやはり重要な気体である。そのため、CH<sub>4</sub> の高度分布を精度良く導出することは重要な課題である。

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

キーワード: フーリエ変換型分光計, 大気微量成分, メタン

Keywords: FTIR, Trace Species, Methane

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

Temperature from GPS RO meas. correlative to satellite and airborne obs. for comparing  
those CH<sub>4</sub> profiles

杉田 考史<sup>1\*</sup>, 齋藤 尚子<sup>2</sup>, 林田 佐智子<sup>3</sup>  
Takafumi Sugita<sup>1\*</sup>, Naoko Saitoh<sup>2</sup>, Sachiko Hayashida<sup>3</sup>

<sup>1</sup>環境研,<sup>2</sup>千葉大,<sup>3</sup>奈良女大

<sup>1</sup>NIES,<sup>2</sup>Chiba Univ.,<sup>3</sup>Nara Women's Univ.

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

キーワード: 気温, メタン, GPS, GOSAT, 航空機

Keywords: temperature, methane, GPS, GOSAT, aircraft



## 「みらい」MR12-E03航海における大気中CH<sub>4</sub>、CO<sub>2</sub>、CO濃度の船上観測 Shipboard measurements of atmospheric CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub> and CO mixing ratios during the MR12-E03 cruise of the R/V Mirai

遠嶋 康徳<sup>1\*</sup>, 笹野大輔<sup>2</sup>, 石戸谷重之<sup>3</sup>, 勝又啓一<sup>1</sup>, 松下隼士<sup>1</sup>, 石島 健太郎<sup>4</sup>, Patra Prabir<sup>4</sup>

Yasunori Tohjima<sup>1\*</sup>, SASANO, Daisuke<sup>2</sup>, ISHIDOYA, Shigeyuki<sup>3</sup>, KATSUMATA, Keiichi<sup>1</sup>, MATSUSHITA, Junji<sup>1</sup>, Kentaro Ishijima<sup>4</sup>, Prabir Patra<sup>4</sup>

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

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

In order to investigate the potential sources of methane (CH<sub>4</sub>) in the Arctic region, continuous measurements of the atmospheric CH<sub>4</sub> were carried out during a R/V Mirai Arctic Ocean cruise from September 3 to October 17, 2012. A cavity ring-down spectroscopy (CRDS) analyzer was used for the shipboard measurements of the atmospheric CH<sub>4</sub>, carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) and carbon monoxide (CO). The analytical precisions evaluated from the measurements of the standard gases at a 24-hour interval during the cruise were 0.02 ppm, 0.3 ppb, and 0.9 ppb for the 5-min averages of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and CO mixing ratios, respectively. When the wind blew from the relative direction of 200 +/- 20 degrees (rear left of the vessel), the contamination caused by its own exhaust fumes affected the CO<sub>2</sub> and CO mixing ratios with a tight correlation ( $\Delta_{CO}/\Delta_{CO_2}=3.8$  ppb/ppm), while there was no significant influence from the exhaust fumes on the CH<sub>4</sub> mixing ratio. Such pollution events are easily distinguishable by the characteristics of the relative wind direction, the tight correlation of CO vs. CO<sub>2</sub>, and large short-term (~a few second) variability. The observed CH<sub>4</sub> mixing ratios showed larger variations with elevated peaks of several tens ppb in the Bering Strait, Chukchi Sea, and Arctic Ocean (65-75°N, 155-175°W) in comparison with in the western North Pacific. The largest CH<sub>4</sub> peaks of about 50 ppb were observed off the northern Alaskan coast. Since these CH<sub>4</sub> peaks were associated with similar CO<sub>2</sub> peaks but not with CO peaks, it is unlikely that the combustion processes or ocean were the sources of the elevated CH<sub>4</sub>. The backward trajectory analysis suggests that the North Slope of Alaska is the most probable CH<sub>4</sub> source region. The simulated CH<sub>4</sub> variations based on an atmospheric transport model and given flux maps well capture the observed CH<sub>4</sub> variations, also suggesting that the most of elevated CH<sub>4</sub> were derived from the land sources.

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

Keywords: atmospheric CH<sub>4</sub>, the Arctic Ocean, cavity ring down spectroscopy analyzer (CRDS), shipboard measurements

## 富士山頂での夏季の一酸化炭素およびオゾンの測定

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

加藤 俊吾<sup>1\*</sup>  
Shungo Kato<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 首都大学東京

<sup>1</sup>Tokyo Metropolitan University

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

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

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

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

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

キーワード: 自由対流圏, 長距離輸送, 山岳サイト, 高高度

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

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

白井 知子<sup>1\*</sup>, 石澤みさ<sup>1</sup>, Ruslan Zhuravlev<sup>2</sup>, Alexander Ganshin<sup>2</sup>, 佐伯田鶴<sup>1</sup>, Belikov Dmitry<sup>1</sup>, 小田知宏<sup>3</sup>, 齊藤誠<sup>4</sup>, Vinu Valsala<sup>5</sup>, Maksyutov Shamil<sup>1</sup>  
Tomoko Shirai<sup>1\*</sup>, Misa Ishizawa<sup>1</sup>, Ruslan Zhuravlev<sup>2</sup>, Alexander Ganshin<sup>2</sup>, Tazu Saeki<sup>1</sup>, Dmitry Belikov<sup>1</sup>, Tomohiro Oda<sup>3</sup>, Makoto Saito<sup>4</sup>, Vinu Valsala<sup>5</sup>, Shamil Maksyutov<sup>1</sup>

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

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

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

The purpose of the present study is to evaluate the performance of the GELCA inversion system with rather long period (10 years) CO<sub>2</sub> flux estimation and to examine the impact of observation network. We tested several different sets of observation datasets starting by using the NOAA flask network ground based observations as a control case. The sensitivity of the inversion to the choice of CO<sub>2</sub> observation dataset was discussed using the footprint of each observation dataset. The CO<sub>2</sub> flux estimate was examined in terms of observation network/coverage and also compared with previous studies.

キーワード: CO<sub>2</sub>, 炭素循環, 逆計算, 結合モデル

Keywords: CO<sub>2</sub>, sources/sinks, inverse modeling, coupled model

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

寺尾 有希夫<sup>1\*</sup>, 向井人史<sup>1</sup>  
Yukio Terao<sup>1\*</sup>, Hitoshi Mukai<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 国立環境研究所 地球環境研究センター

<sup>1</sup>Center for Global Environmental Research, National Institute for Environmental Studies

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

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

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

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

森 樹大<sup>1\*</sup>, 大畑 祥<sup>1</sup>, 近藤 豊<sup>1</sup>, 茂木 信宏<sup>1</sup>, 松井 仁志<sup>1</sup>, 岩崎 綾<sup>2</sup>, 友寄 喜貴<sup>2</sup>, 嘉手納 恒<sup>2</sup>

Tatsuhiko Mori<sup>1\*</sup>, Sho Ohata<sup>1</sup>, Yutaka Kondo<sup>1</sup>, Nobuhiro Moteki<sup>1</sup>, Hitoshi Matsui<sup>1</sup>, Aya Iwasaki<sup>2</sup>, Nobutaka Tomoyose<sup>2</sup>, Hisashi Kadena<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院理学研究科, <sup>2</sup> 沖縄県衛生環境研究所

<sup>1</sup> Graduate School of Science, University of Tokyo, <sup>2</sup> Okinawa Prefectural Institute of Health and Environment

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

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

### 結果と考察

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

### 参考文献

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

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

キーワード: ブラックカーボン, 湿性沈着

Keywords: Black Carbon, wet deposition

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

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

上田 紗也子<sup>1\*</sup>, 三浦 和彦<sup>1</sup>, 河田 綾<sup>2</sup>, 古谷 浩志<sup>2</sup>, 植松 光夫<sup>2</sup>

Sayako Ueda<sup>1\*</sup>, Kazuhiko Miura<sup>1</sup>, Ryou Kawata<sup>2</sup>, Hiroshi Furutani<sup>2</sup>, Mitsuo Uematsu<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京理科大学理学部, <sup>2</sup> 東京大学大気海洋研究所

<sup>1</sup>Tokyo University of Science, <sup>2</sup>AORI, University of Tokyo

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

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

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

キーワード: 海洋大気エアロゾル, 個数 粒径分布, 新粒子生成

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

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

永淵 修<sup>1\*</sup>, 横田久里子<sup>2</sup>, 手塚賢至<sup>3</sup>, 地下まゆみ<sup>4</sup>, 中澤 暦<sup>5</sup>  
Osamu Nagafuchi<sup>1\*</sup>, Kuriko Yokota<sup>2</sup>, Kenshi Tezuka<sup>3</sup>, Mayumi Jige<sup>4</sup>, Koyomi Nakazawa<sup>5</sup>

<sup>1</sup> 滋賀県立大学, <sup>2</sup> 豊橋技術科学大学, <sup>3</sup> ヤッタネゴヨウ調査隊, <sup>4</sup> 大谷大学, <sup>5</sup> 大阪大学  
<sup>1</sup>The University of Shiga Prefecture, <sup>2</sup>Toyohashi University of Technology, <sup>3</sup>Yattane goyou team, <sup>4</sup>Ootani University, <sup>5</sup>Osaka University

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

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

キーワード: 粒子状物質, 長距離越境汚染, イオン成分, 重金属  
Keywords: particulate matter, long-range transport, major ion, heavy metal

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

三木 裕介<sup>1\*</sup>, 上田 紗也子<sup>1</sup>, 三浦 和彦<sup>1</sup>, 古谷 浩志<sup>2</sup>, 植松 光夫<sup>2</sup>

Yusuke Miki<sup>1\*</sup>, Sayako Ueda<sup>1</sup>, Kazuhiko Miura<sup>1</sup>, Hiroshi Furutani<sup>2</sup>, Mitsuo Uematsu<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京理科大学, <sup>2</sup> 東京大学

<sup>1</sup>Tokyo University of Science, <sup>2</sup>University of Tokyo

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

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

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

キーワード: 鉄, 水溶性物質, 水不溶性物質, ダスト, エアロゾル

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



## 雨水・雪サンプル中のブラックカーボンの測定法の開発

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

大畑 祥<sup>1\*</sup>, 茂木 信宏<sup>1</sup>, シュワルツ ジョシュア<sup>2</sup>, フェーフィー デイビット<sup>2</sup>, 近藤 豊<sup>1</sup>  
Sho Ohata<sup>1\*</sup>, MOTEKI, Nobuhiro<sup>1</sup>, SCHWARZ, Joshua P.<sup>2</sup>, FAHEY, David W.<sup>2</sup>, Yutaka Kondo<sup>1</sup>

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

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

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

キーワード: 黒色炭素粒子, ブラックカーボン, 湿性沈着

Keywords: black carbon, wet deposition

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

松永 壮<sup>1\*</sup>, 高木 正博<sup>2</sup>, 楠本 大<sup>3</sup>, 日浦 勉<sup>1</sup>

Sou Matsunaga<sup>1\*</sup>, TAKAGI, Masahiro<sup>2</sup>, KUSUMOTO, Dai<sup>3</sup>, HIURA, Tsutomu<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 北海道大学苫小牧研究林, <sup>2</sup> 宮崎大学農学部, <sup>3</sup> 東京大学田無演習林

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

### 【研究の背景】

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

### 【試料採取と分析】

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

### 【結果と考察】

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

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

AAS21-P17

会場:コンベンションホール

時間:5月19日 18:15-19:30

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

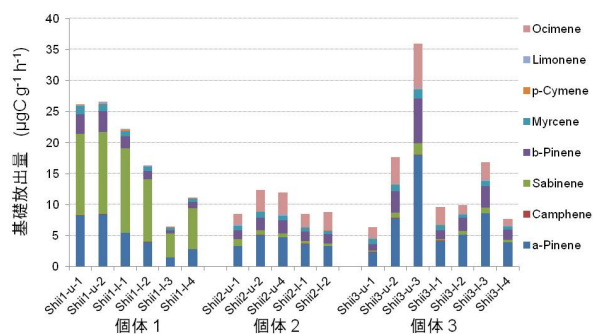


Figure 1 スダジイ (*Castanopsis sieboldii*) から放出されたモノテルペン類の個葉レベル基礎放出量

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

山川 庸芝明<sup>1\*</sup>, 坂田 昂平<sup>2</sup>, 坂口 綾<sup>2</sup>, 高橋 嘉夫<sup>2</sup>  
Yoshiaki Yamakawa<sup>1\*</sup>, Kohei Sakata<sup>2</sup>, Aya Sakaguchi<sup>2</sup>, Yoshio Takahashi<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 広島大学理学部, <sup>2</sup> 広島大学大学院理学研究科

<sup>1</sup>Faculty of Science, Hiroshima University, <sup>2</sup>Graduate School of Science, Hiroshima University

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

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

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

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

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

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

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

矢吹 正教<sup>1\*</sup>, 高橋 けんし<sup>1</sup>, 松田 真<sup>1</sup>, 津田 敏隆<sup>1</sup>  
Masanori Yabuki<sup>1\*</sup>, Kenshi Takahashi<sup>1</sup>, Makoto Matsuda<sup>1</sup>, Toshitaka Tsuda<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 京都大学生存圏研究所

<sup>1</sup> Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

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

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

キーワード: エアロゾル, 粒径分布, 係留気球, ライダー

Keywords: Aerosol, Size distribution, Tethered balloon, Lidar

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

定永 靖宗<sup>1\*</sup>, 高治 諒<sup>1</sup>, 中嶋 一夫<sup>1</sup>, 鈴木 一成<sup>1</sup>, 松木 篤<sup>2</sup>, 佐藤 啓市<sup>3</sup>, 坂東 博<sup>1</sup>

Yasuhiro Sadanaga<sup>1\*</sup>, Ryo Takaji<sup>1</sup>, Kazuo Nakajima<sup>1</sup>, Kazunari Suzuki<sup>1</sup>, Atsushi Matsuki<sup>2</sup>, Keiichi Sato<sup>3</sup>, Hiroshi Bandow<sup>1</sup>

<sup>1</sup>大阪府立大学, <sup>2</sup>金沢大学, <sup>3</sup>アジア大気汚染研究センター

<sup>1</sup>Osaka Prefecture University, <sup>2</sup>Kanazawa University, <sup>3</sup>Asia Center for Air Pollution Research

Peroxyacyl nitrates (PANs) and alkyl nitrates (ANs) act as one of the reservoirs of nitrogen oxides ( $\text{NO}_x$ ) in the atmosphere. Since their lifetime is longer than that of  $\text{NO}_x$ , they can be transported over a long-distance and would be important as trans-boundary pollutants. PANs and ANs are generally observed using GC/ECD (gas chromatograph / electron capture detector) or GC/NICI-MS (gas chromatograph / negative ion chemical ionization-mass spectrometry) method. While these GC methods can measure concentrations of each constituent in PANs and ANs, they have low time resolution. Measurements by GC/ECD which has radioisotope are very difficult in Japan because of laws and regulations. On the other hand, frequent maintenances are required for measurements using GC/NICI-MS. Thus observation data of PANs and ANs in Japan are quite low.

In this research, continuous measurement system of total PANs and ANs in the troposphere has been developed by using a thermal dissociation / cavity attenuated phase shift spectroscopy (TD/CAPS) method. Both PANs and ANs are thermally decomposed to produce  $\text{NO}_2$  and then  $\text{NO}_2$  is measured by CAPS method. This system can observe PANs and ANs with high time resolution while this system cannot separate constituents of PANs and ANs.

This system has three lines; (1)  $\text{NO}_2$  line, (2) PANs line, and (3) ANs line. The  $\text{NO}_2$  line consists of a quartz tube without heating. The PANs and ANs lines have quartz tubes heated at 433 K and 633 K, respectively. Concentrations of  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_2 + \text{PANs}$  and  $\text{NO}_2 + \text{PANs} + \text{ANs}$  can be obtained from the  $\text{NO}_2$ , PANs and ANs lines, respectively. These concentrations are sequentially measured by switching solenoid valves and then  $\text{NO}_2$ , PANs and ANs concentrations are obtained. Since a part of  $\text{HNO}_3$  is pyrolyzed in the ANs line, annular denuder coated with NaCl to remove  $\text{HNO}_3$  is set before the heated quartz tube in the ANs line.

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

Continuous field observations of PANs and ANs concentrations have been being carried out at NOTOGRO supersite at Suzu, Noto Peninsula, since November 2012. In this presentation, the observational results and preliminary analyses of PANs and ANs concentration variations with  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NO}_y$ , total inorganic nitrate,  $\text{O}_3$  and CO concentrations simultaneously observed are introduced.

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

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

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

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

井上 淳<sup>1\*</sup>, 百瀬あずさ<sup>1</sup>, 奥平 敬元<sup>1</sup>, 北瀬(村上) 晶子<sup>2</sup>, 山崎秀夫<sup>3</sup>, 香村一夫<sup>2</sup>, 吉川周作<sup>1</sup>

INOUE, Jun<sup>1\*</sup>, MOMOSE, Azusa<sup>1</sup>, OKUDAIRA, Takamoto<sup>1</sup>, KITASE, Akiko M.<sup>2</sup>, YAMAZAKI, Hideo<sup>3</sup>, KAMURA, Kazuo<sup>2</sup>, YOSHIKAWA, Shusaku<sup>1</sup>

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

<sup>1</sup>Osaka City University, <sup>2</sup>Waseda University, <sup>3</sup>Kindai University

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

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

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

キーワード: 化石燃料燃焼由来粒子, 化学組成, 東アジア, 長距離輸送

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

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

高谷 怜<sup>1\*</sup>, 小池 真<sup>1</sup>, 松井 仁志<sup>1</sup>  
Ray Takatani<sup>1\*</sup>, Makoto Koike<sup>1</sup>, Hitoshi MATSUI<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院・理学系研究科

<sup>1</sup> University of Tokyo

### 1. はじめに

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

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

### 2. A-FORCE 航空機観測

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

### 3. WRF-Chem モデル計算

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

### 4. 結果

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

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

キーワード: エアロゾル, 雲, 間接効果, 数値モデル計算

Keywords: aerosol, cloud, indirect effect, numerical simulation



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

山地 一代<sup>1\*</sup>, 池田 恒平<sup>1</sup>, 滝川 雅之<sup>1</sup>, 永島 達也<sup>2</sup>, 金谷 有剛<sup>1</sup>

Kazuyo Yamaji<sup>1\*</sup>, Kohei Ikeda<sup>1</sup>, Masayuki Takigawa<sup>1</sup>, Tatsuya Nagashima<sup>2</sup>, Yugo Kanaya<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 海洋研究開発機構, <sup>2</sup> 国立環境研究所

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

Atmospheric pollutants were simulated by using two regional CTMs, WRF-Chem and WRF/CMAQ and a global CTM, CHASER over East Asia for the year 2005. Simulated surface O<sub>3</sub> over Japan by WRF/CMAQ was higher than that by CHASER especially in summer, and overestimated observed O<sub>3</sub> at EANET monitoring sites. Contributions from 5 source regions; north China(CHN), central China(CHC), and south China(CHS), Korea(KRE), and Japan(JPN) on 6 areas on these regions were evaluated based on sensitivity simulations with 20% reduction in anthropogenic emissions. These models resulted that the 20% emission reductions on CHC would gain 0.8% decrease of surface O<sub>3</sub> over Central Japan in spring, and that was comparable to the O<sub>3</sub> decrease of 0.8-0.9% over Central Japan by the 20% emission reductions on JPN. As for the summer case by using CHASER, the O<sub>3</sub> decreases of 0.6% and 1.6% over Central Japan by 20% emission reductions over CHC and JPN, respectively. On the other hand, the regional CTMs, WRF-Chem and WRF/CMAQ, resulted 0.9% (CHC emission reduction) and 3.1% (JPN) O<sub>3</sub> decreases and 0.7%(CHC) and 2.4% (JPN) O<sub>3</sub> decreases, respectively, and that were 1.2-1.9 times higher than those by CHASER.

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

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

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

池田 佳祐<sup>1\*</sup>, 永淵 修<sup>1</sup>, 尾坂 兼一<sup>1</sup>  
keisuke ikeda<sup>1\*</sup>, Osamu Nagafuchi<sup>1</sup>, Ken'ichi Osaka<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 滋賀県立大学大学院環境科学研究科

<sup>1</sup> Graduate School of Environmental Science, the University of Shiga Prefecture

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

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

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

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

キーワード: 粒子状物質, 越境汚染, 黄砂

Keywords: particulate matter, transboundary pollution, yellow sand

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

菱田 尚子<sup>1\*</sup>, 永淵 修<sup>2</sup>, 尾坂 兼一<sup>2</sup>, 三宅 隆之<sup>2</sup>

Naoko Hishida<sup>1\*</sup>, NAGAFUCHI, Osamu<sup>2</sup>, OSAKA, Ken'ichi<sup>2</sup>, MIYAKE, Takayuki<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 滋賀県立大学大学院環境科学研究科, <sup>2</sup> 滋賀県立大学

<sup>1</sup>Environmental Science Graduate School, the University of Shiga Prefecture, <sup>2</sup>the University of Shiga Prefecture

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

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

2012年9月までに採取できたのは29降雨で、降水中総水銀濃度は1.09~25.9ng/Lの間で変動し、平均値は7.15±5.31ng/Lとなった。降り始めに最も濃度が高くなる降雨が多くみられたが、一降雨内での総水銀濃度変動は一定のパターンを示さなかった。9月の台風に伴う降雨では、徐々に降水中水銀濃度が上昇した。雨雲が水銀排出域を通過して摺墨に到達した際に、降水中水銀濃度は上昇しており、雨雲の通過経路と降水中水銀濃度の変動は関連していると考えられる。また、バルクデポジットサンプラーによって回収したサンプルより算出した、水銀沈着量は19.7g/km<sup>2</sup>/year(2011年9月~2012年8月)となった。

キーワード: 水銀, 沈着量, 琵琶湖

Keywords: mercury, deposition, Lake Biwa

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

西田 友規<sup>1\*</sup>, 永淵 修<sup>2</sup>, 尾坂 兼一<sup>2</sup>, 三宅 隆之<sup>2</sup>  
Yuki Nishida<sup>1\*</sup>, Osamu Nagafuchi<sup>2</sup>, Ken'ichi Osaka<sup>2</sup>, Takayuki Miyake<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 滋賀県立大学大学院環境科学研究科, <sup>2</sup> 滋賀県立大学環境科学部

<sup>1</sup>Environmental Science Graduate School, the University of Shiga Prefecture, <sup>2</sup>School of Environmental Science, the University of Shiga Prefecture

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

キーワード: 水銀, 大気化学, 自由対流圏, 長距離輸送

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

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

竹谷 文一<sup>1\*</sup>, 潘小楽<sup>1</sup>, 金谷 有剛<sup>1</sup>  
Fumikazu Taketani<sup>1\*</sup>, Xiaole Pan<sup>1</sup>, Yugo Kanaya<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 海洋研究開発機構  
<sup>1</sup>JAMSTEC

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

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

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

## MAX-DOAS 法による NO<sub>2</sub> 立体観測 ~ 福岡市における空間不均質性 ~ Inhomogeneity of NO<sub>2</sub> over Fukuoka, an urban site in Japan observed by MAX-DOAS

高島 久洋<sup>1\*</sup>, 金谷 有剛<sup>2</sup>, 伊藤宏大<sup>1</sup>  
Hisahiro Takashima<sup>1\*</sup>, Yugo Kanaya<sup>2</sup>, Kodai Ito<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 福岡大学理学部, <sup>2</sup> 海洋研究開発機構/地球環境変動領域

<sup>1</sup> Faculty of Science, Fukuoka University, <sup>2</sup> JAMSTEC/RIGC

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

NO<sub>x</sub>の主な発生源が天神近辺であること[Kannari et al., 2007]、天神方向でのNO<sub>2</sub>が鉛直方向に一樣に増大すること、風向が日中に北風に変化する(海陸風循環)ことから、NO<sub>2</sub>の変動は、1. 都市中心部(天神方向)での放出、2. 境界層の発達にともなう地表からの鉛直輸送(鉛直混合)、3. 海陸風循環にともなう水平輸送(市街起源の高濃度気塊と海上の低濃度気塊)により支配されていると考えられる。

\*Multi Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy

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

LIU YUTONG<sup>1\*</sup>, 矢吹 正教<sup>1</sup>, 津田 敏隆<sup>1</sup>  
Yutong Liu<sup>1\*</sup>, Masanori Yabuki<sup>1</sup>, Toshitaka Tsuda<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 京都大学生存圏研究所

<sup>1</sup> Research Institute for Sustainable Humanosphere

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

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

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

キーワード: ライダー, エアロゾル

Keywords: Lidar, Aerosol

## 水蒸気量の時空間分布観測のための走査型ラマンライダーの開発

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

松田 真<sup>1</sup>, 矢吹 正教<sup>1\*</sup>, 津田 敏隆<sup>1</sup>, 高橋 けんし<sup>1</sup>, 吉川 賢一<sup>1</sup>

Makoto Matsuda<sup>1</sup>, Masanori Yabuki<sup>1\*</sup>, Toshitaka Tsuda<sup>1</sup>, Kenshi Takahashi<sup>1</sup>, Ken-ichi Yoshikawa<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 京都大学生存圏研究所

<sup>1</sup> Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

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

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

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

キーワード: ライダー, 水蒸気, エアロゾル

Keywords: lidar, water vapor, aerosol



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

吉川 賢一<sup>1\*</sup>, 矢吹 正教<sup>1</sup>, 津田 敏隆<sup>1</sup>

Kenichi Yoshikawa<sup>1\*</sup>, Masanori Yabuki<sup>1</sup>, Toshitaka Tsuda<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 京都大学生存圏研究所

<sup>1</sup> Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

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

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

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

キーワード: 気温ライダー, 多波長分光検出器

Keywords: temperature lidar, multispectral detector

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

Danielache Sebastian<sup>1\*</sup>, 鈴木 智也<sup>1</sup>, 南部 伸孝<sup>1</sup>, 上野 雄一郎<sup>1</sup>  
Sebastian Danielache<sup>1\*</sup>, Tomoya Suzuki<sup>1</sup>, Shinkoh NANBU<sup>1</sup>, Yuichiro Ueno<sup>1</sup>

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

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

Understanding the mechanism of sulfur isotopic fractionation phenomena has been used for some time as a tool to the understanding of reducing atmospheres. Sulfur Non-Mass Dependent (NMD) fractionation signals reported for the Archean and Early Proterozoic (>2300 Ma) atmosphere where the photodissociation of sulfur bearing species play a significant role since the concentration of oxygen is estimated to be 10-5 times present atmospheric levels and therefore ultraviolet light permeates throughout the entire atmosphere, however the underlying mechanisms are not fully understood. In order to explain the NMD signal preserved in the geological record other than SO<sub>2</sub> photodissociation chemistry of sulfur compound should be taken into account. In this study we consider isotopic fractionation during photodissociation of SO. Experimental studies are difficult since SO is highly reactive and unstable under most experimental and atmospheric conditions. Consequently, theoretical studies are suitable to evaluate its spectroscopic properties. We report ultraviolet absorption cross sections for <sup>32,33,34,36</sup>SO isotopologues. R-matrix theory was employed to compute absorption cross sections. Potential energy curves were calculated at multi-reference correlation interaction (MRCI) method with augmented correlation consistent polarized valence sextuple-z (aug-cc-pV6Z) basis set. The six lower-lying electronic states were explored. Because there are pseudo-crossings between electronic excited states, non-adiabatic effect has been taken into account. Isotopic fractionation constants were theoretically estimated at different temperatures by assuming that the photolysis rates are proportional to the photoabsorption cross sections for each isotopologues. We make the one box model of the atmospheric chemistry where obtained photolysis rates are utilized, and discuss the results of this model.

キーワード: 硫黄循環, 古大気, 安定同位体

Keywords: Sulfur Cycle, Archean Atmosphere, Stable Isotopes