

フーリエ変換型赤外分光計で観測された日本上空における北極オゾン層破壊の影響 Impacts of the Arctic ozone depletion on Japan observed with FTIR

橋本 優希¹; 村田 功^{1*}; 中島 英彰²; 長浜 芳寛²; 森野 勇²; 長浜 智生³
HASHIMOTO, Yuki¹; MURATA, Isao^{1*}; NAKAJIMA, Hideaki²; NAGAHAMA, Yoshihiro²; MORINO, Isamu²; NAGAHAMA, Tomoo³

¹ 東北大学大学院環境科学研究科, ² 国立環境研究所, ³ 名古屋大学太陽地球環境研究所

¹Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, ²National Institute for Environmental Studies, ³Solar Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University

極域におけるオゾン層の破壊は南極だけではなく北極においても発生しており、2011年には観測史上最大のオゾン層の破壊が確認された。オゾン層の破壊自体は極域の極渦内部で起る現象であり、人が多く住む中緯度域に直接影響を与えることは少ない。しかし、下部成層圏においてオゾン再生する化学反応は存在しないため、極渦が崩壊するとオゾン破壊の起きた空気塊が拡散し中緯度域におけるオゾンの量は減少するはずである。そこで本研究では、つくば・陸別上空における極渦崩壊前後のオゾン量を比較することによって、北極オゾン層破壊が日本にどの程度影響するかについて調べることが目的とした。

オゾン層の破壊は化学反応が原因で起るが、オゾンの変動要因には力学的変動も含まれているため、オゾン層の破壊の影響を調べるためにはこの力学的変動分を排除しなければいけない。そのために化学的に安定な HF や N₂O をトレーサーとし、O₃-HF 相関や O₃-N₂O 相関を調べることによって北極オゾン層破壊の影響を調べた。

解析には、つくばの国立環境研究所に設置されている FTIR および陸別に設置されている名古屋大学太陽地球研究所の FTIR の観測スペクトルを用い、高度分布導出にはスペクトルフィッティングプログラム SFIT2 を使用した。つくばに関しては 2006 年 10 月～2013 年 5 月の O₃・HF の高度分布、陸別に関しては国立環境研究所が解析した 1997 年 10 月～2008 年 7 月の O₃・HF・N₂O 高度分布を使用した。

O₃-HF 相関や O₃-N₂O 相関の直線フィッティングを決める際に必要なパラメータは傾きとオフセットである。O₃-HF 相関の傾きについては使用する極渦崩壊前の全てのデータを用いてフィッティングした際の傾きを用いた。オフセットは化学破壊量を推定するのに重要であるため、極渦崩壊前の O₃-HF 相関の取り方については全ての年を通して同じ値を用いる方法 A と年ごとにフィッティングをする方法 B の 2 つの方法を用いて結果を比較した。極渦崩壊後のオフセットは年ごとにフィッティングを行い、極渦崩壊前の相関のオフセットとの差を「オゾン変化量」とした。O₃-HF 相関は下部成層圏のいくつかの高度とコラム全量について求め、その結果からオゾン変化量の年ごとの違いを見たところ、高度 19km や 21km、コラム全量について北極オゾン層の破壊が大きい年の方が極渦崩壊後のオゾン変化量が大きい傾向が見られた。

O₃-N₂O 相関に関しては、N₂O の解析の感度が下部成層圏にはなかったためコラム全量のみ相関を取った。O₃-N₂O 相関の直線フィッティングは、年ごとのフィッティングでもかなり相関が良く、傾きやオフセットを一定にしてしまうと明らかに合わない年も出てきてしまったため極渦崩壊前の O₃-N₂O 相関は傾きとオフセットの両方について年ごとにフィッティングを行った。崩壊後の O₃-N₂O 相関は、傾きは極渦崩壊前の値を用いてオフセットだけフィッティングを行った。すると O₃-N₂O 相関についても北極オゾン層破壊の大きい年の方が、オゾン変化量が多い傾向が見られた。

北極オゾン層の破壊の規模とオゾン変化量との間に関係が見られそうだったので、両者の相関を取った。北極オゾン層破壊量の定量化は難しく、標準的なやり方があるわけではないため、気象庁 [2012] と Pommereau et al. [2013]、Rex et al. [2013] の 3 つの指標を用いてそれぞれ比べた。

北極オゾン層の破壊量とオゾン変化量の相関からどの方法や指標を用いるのが妥当かについて考察したところ、方法・指標の両方ともどの方法が最も妥当か判断ができるほどの差はなかった。そのため、すべてに共通して見られる特徴から判断し考察することにした。

その結果、つくばでは高度 21km、陸別では高度 19km において北極オゾン層の破壊量と極渦崩壊後のオゾン変化量との間に良い正の相関が見られた。コラム全量の O₃-HF 相関や O₃-N₂O 相関においても同様に正の相関が見られた。観測地点によって相関の見える高度が異なった結果については、成層圏では大気が等温位面に沿って移動しその等温位面は低緯度に行くにしたがって高度が上昇すること、北極オゾン破壊が下部成層圏の限られた高度範囲で起こることを考えるとこの結果は妥当であると考えられる。

この結果を用いて、日本上空における化学的なオゾン破壊量に対しどのくらい紫外線量が増加するかについて調べた。オゾン全量の化学的変化量を見積もったところ、つくばは最大約 30DU、陸別は最大約 40DU だった。そこでつくばにおいてはオゾン全量変化量が 30DU 減少した時とその中間値にあたる 15DU 減少した時の紫外線増加量、陸別においてはオゾン全量変化量が 40DU 減少した時とその中間値にあたる 20DU 減少した時の紫外線増加量について調べた。その結果、中間値で見てもつくばでは約 6.0%の紫外線が増加し、陸別では約 7.0%の紫外線が増加することが分かった。

AAS22-01

会場:511

時間:4月30日 16:15-16:30

キーワード: フーリエ変換型分光計, 北極オゾン破壊, 中緯度
Keywords: FTIR, Arctic ozone depletion, mid-latitude

衛星から観測された中国上空の対流圏最下層におけるオゾン増大：紫外放射観測からとらえた初めての事例
The first observation of ozone enhancement in the lowermost atmosphere over China from a spaceborne ultraviolet spectrom

林田 佐智子^{1*}; 毛家村 友里子¹
HAYASHIDA, Sachiko^{1*}; YURIKO, Keyamura¹

¹ 奈良女子大学理学部

¹Faculty of Science, Nara Women's University

本発表は、衛星からの紫外放射観測でとらえられた東・中部中国における最下層（およそ0?3 0 0 0 m）のオゾンの顕著な増大現象に関する初めての報告である。EOS/Aura 衛星に搭載された Ozone Monitoring Instrument (OMI) の最近のプロダクトから、対流圏最下層のオゾン時空間変動が明らかになった [Liu et al., ACP, 2010]。東・中部中国上空におけるオゾンの増加は、毎年6月に顕著で、同じ時期に Measurements Of Pollution In The Troposphere (MOPITT) で観測されたCO濃度や MODerate resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) で観測されたホットスポット（火災検知の指標）も増加していた。このことから、増大したオゾン量のかなりの部分は冬小麦の残渣焼却によるバイオマス燃焼による結果ではないかと推測される。オゾンの増加は秋や冬にも東・中部中国で毎年観測されているが、ホットスポットを伴わない時期もある。このことは、バイオマスバーニングではなく、工業活動、自動車、暖房などからのCO放出がオゾン生成に影響した可能性を示唆している。

謝辞

本研究はハーバードスミソニアン宇宙研究所の Xiong Liu 博士、Kelly Chance 博士との共同研究である。本研究は文部科学省 GRENE-ei プログラムの支援を受けている。

キーワード: 対流圏オゾン, 衛星観測, 紫外線, 大気汚染

Keywords: tropospheric ozone, satellite observation, ultraviolet radiation, atmospheric pollution

タグ付きトレーサー実験を用いて検証された空気塊分類手法による地表オゾン起源推定の妥当性 The validity of the estimation of ozone origin by sectoral air mass classification verified with tracer-tagging simulati

永島 達也^{1*}; 池田 礼佳²; 須藤 健悟³; 林田 佐智子²
NAGASHIMA, Tatsuya^{1*}; IKEDA, Ayaka²; SUDO, Kengo³; HAYASHIDA, Sachiko²

¹ 国立環境研究所, ² 奈良女子大学, ³ 名古屋大学

¹National Institute for Environmental Studies, ²Nara Women's University, ³Nagoya University

東アジア地域における広域越境大気汚染が深刻化する中、地域内における大気汚染物質のやり取りを定量的に把握すること、すなわち大気汚染物質の起源推定を行うことの重要性は論を俟たない。様々な場所で観測される大気汚染物質の濃度に対して、それをもたらした空気塊の通過経路を後方流跡線解析で見積もり、当該空気塊が多くの時間を滞在した領域をもってその汚染物質の起源とみなし、空気塊の起源を分類する手法（空気塊分類手法）が従来から広く用いられてきた。これにより、起源毎に異なった濃度や季節変化を持つ空気塊の特徴が明らかにされ、東アジア地域における大気汚染の構造理解に大きな役割を果たしてきた。しかしながら、ある領域内で同じだけの滞在時間を経験した空気塊であっても、それが受ける化学的な影響は、領域内での通過経路の違いや季節の違いなどの条件により異なることが予想される。つまり、空気塊の通過領域と滞在時間だけで起源領域を推定する手法では、本当は余り影響を受けていない領域を誤ってその空気塊の起源と判定してしまう可能性がある。本研究では、地表オゾン対象として、こうした過誤の可能性、すなわち空気塊分類手法によって汚染空気塊の起源を推定する手法の妥当性の検証を目的とする。そのために、大気組成の全球分布を再現することができる化学輸送モデル（CTM）を用いたタグ付きオゾントレーサー実験の結果を利用する。タグ付きオゾントレーサー実験では、モデル大気をいくつかの領域に分割して、それぞれの領域でのみ化学的に生成される仮想的なオゾントレーサーの濃度を計算し、それぞれのトレーサーの濃度をもってその領域を起源とするオゾンの寄与とみなす。すなわちモデルの内部では、あらゆる場所においてオゾンの起源毎の寄与が把握されており、このモデル大気内で空気塊分類手法による起源推定を行って、その結果とタグ付きトレーサーによって把握されている各起源の寄与を比較することにより、空気塊分類手法の妥当性を評価する。

タグ付きトレーサー実験には、全球規模のCTMであるCHASERを使用し、まずはモデル大気中におけるオゾンの計算値が実際の大気状態を再現しているかを調べるために、モデル大気内での空気塊分類結果と日本におけるオゾンゾンデ観測を用いた空気塊分類結果の比較を行い、良好な再現性を確認した。次に、モデル大気内における両手法の起源推定結果を比較するため、日本に到達する中国起源のオゾンに注目した。日本の4地点（札幌、つくば、鹿児島、那覇）において空気塊分類手法によって中国からの空気塊と判定された場合、タグ付きトレーサー実験によって推定されたオゾンの起源毎の寄与においても中国領域起源のオゾン寄与が高くなると予想を立てたが、タグ付きトレーサー実験から推定された中国領域起源オゾンの寄与にはケースごとにはばらつきが見られ、必ずしも中国領域起源のオゾン寄与が優勢となるわけではなく、その優勢度には大きな違いの存在することが分かった。特徴して、暖候期には両手法による起源推定の結果は一致することが比較的多く、空気塊分類手法でも中国を起源とする空気塊を的確に判定する可能性が高いものの、寒候期においては、中国より更に遠方の領域を起源とする空気塊を、誤って中国起源と判定してしまう可能性が高くなることが示唆された。今回採用した空気塊分類手法では、中国上空に48時間以上滞在した空気塊を中国起源と判定しているが、寒候期ではより十分に（100時間以上）中国領域内で滞在した場合でない限り、タグ付きトレーサー実験による中国寄与が優勢とはならなかった。一方、暖候期では48時間以上という閾値の設定は比較的上手く中国起源を分別できているといえる。これらの結果から、空気塊分類手法においては起源分類の際の経過時間の閾値の設定を少なくとも季節ごとに変更する必要性のあることが示唆された。

日中韓露 MAX-DOAS 長期観測網による NO₂ 計測 (2007-2012) : OMI 衛星データの 系統的検証 Long-term MAX-DOAS network observations of NO₂ in Russia and Asia: comparisons with OMI satellite observations

金谷 有剛^{1*}; 入江 仁士²; 高島 久洋³; 岩淵 弘信⁴; 秋元 肇⁵; 須藤 健悟⁶; Gu Myojeong⁷; Chong Jihyo⁷; Kim Young-Joon⁷; Lee Hanlim⁷; Li Ang⁸; Si Fuqi⁸; Xu Jin⁸; Xie Pinhua⁸; Liu Wenqing⁸; Dzhola Anatoly⁹; Postlyakov Oleg⁹; Ivanov Victor¹⁰; Grechko Evgeny⁹; Terpugova Svetlana¹¹; Panchenko Mikhail¹¹
KANAYA, Yugo^{1*}; IRIE, Hitoshi²; TAKASHIMA, Hisahiro³; IWABUCHI, Hironobu⁴; AKIMOTO, Hajime⁵; SUDO, Kengo⁶; GU, Myojeong⁷; CHONG, Jihyo⁷; KIM, Young-joon⁷; LEE, Hanlim⁷; LI, Ang⁸; SI, Fuqi⁸; XU, Jin⁸; XIE, Pinhua⁸; LIU, Wenqing⁸; DZHOLA, Anatoly⁹; POSTYLYAKOV, Oleg⁹; IVANOV, Victor¹⁰; GRECHKO, Evgeny⁹; TERPUGOVA, Svetlana¹¹; PANCHENKO, Mikhail¹¹

¹ 海洋研究開発機構, ² 千葉大学, ³ 福岡大学, ⁴ 東北大学, ⁵ アジア大気汚染研究センター, ⁶ 名古屋大学, ⁷ 光州科学技術院, ⁸ 中国科学院安徽光学精密機械研究所, ⁹ ロシア科学アカデミー大気物理研究所, ¹⁰ ベラルーシ国立大学, ¹¹ ロシア科学アカデミーシベリア支部大気光学研究所

¹JAMSTEC, ²Chiba University, ³Fukuoka University, ⁴Tohoku University, ⁵Asia Center for Air Pollution Research, ⁶Nagoya University, ⁷Gwangju Institute of Science and Technology (GIST), ⁸Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, ⁹A. M. Obukhov Institute of Atmospheric Physics, Russian Academy of Sciences, ¹⁰Belarusian State University, ¹¹V. E. Zuev Institute of Atmospheric Optics, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences

人間活動の活発化により、中国上空では大気中窒素酸化物濃度が過去 15 年に 3 倍にも増加したと考えられており、発生源の把握や大気中での反応、風下にあたるアジア太平洋地域でのオゾン生成による大気汚染の増加や、酸化生成物である硝酸の沈着による富栄養化影響などを明らかにすることが重要である。我々は、標準化された MAX-DOAS (複数仰角・差分吸収分光) 装置を日本・中国・韓国・ロシアの 7 地点に設置して、2007 年以降長期観測を実施し、80000 を超える対流圏 NO₂ カラム濃度解析値を得てきた。この大きなデータセットを解析することで、日～季節スケールの時間変動を明らかにするとともに、衛星センサ OMI からの広域観測値の検証を行った。OMI 衛星データの 2 つの解析値 (NASA によるもの (ver.2.1)、およびオランダ王立気象研究所の DOMINOver.2.0 によるもの) は、MAX-DOAS での値と高い正相関を示したが、ともに 30-50% 程度の過小評価を示した。その差は NO₂ が地上付近に偏在する場合や、エアロゾル光学的厚さが大きい場合に顕著となることがわかり、衛星観測データ解析を改善するための今後の指針が得られた。顕著なバイアスを除けば、衛星データは MAX-DOAS 観測と非常に一致度の高い季節性を示した。また、MAX-DOAS データを用いた全球大気化学輸送モデル MIROC-ESM-CHEM の評価も行った。沖縄辺戸岬や福江島では、太平洋からの清浄な海洋性大気の影響が卓越する夏季にはモデルとの一致度が高いことが示された。

キーワード: 二酸化窒素, MAX-DOAS, 衛星観測検証, 時間変動

Keywords: Nitrogen dioxide, MAX-DOAS, Satellite data validation, temporal variation

エアロゾル・グリオキサール・ホルムアルデヒド濃度の時間変動： 詳細な誤差解析に基づいた MAX-DOAS 法による観測
Temporal variations of aerosol, glyoxal, and formaldehyde retrieved by MAX-DOAS based on detailed error analysis

入江 仁士^{1*}; 陳 誠¹; 倪 聞涛¹; 中山 智喜²; 山崎 明宏³; 高村 民雄¹; Khatri Pradeep¹
IRIE, Hitoshi^{1*}; CHIN, Sei¹; NI, Wentao¹; NAKAYAMA, Tomoki²; YAMAZAKI, Akihiro³; TAMIO, Takamura¹; KHATRI, Pradeep¹

¹ 千葉大学, ² 名古屋大学, ³ 気象研究所

¹Chiba University, ²Nagoya University, ³Meteorological Research Institute

The degradation of volatile organic compounds (VOCs) results in the formation of ozone (O₃) and secondary organic aerosols (SOA) in the troposphere. This process consists of the oxidation of VOCs by hydroxyl radical (OH), O₃, and nitrate radical (NO₃). Detailed understanding of the VOC degradation mechanism is challenged by the co-existence of vast variety of VOC species in the atmosphere. However, investigations on ubiquitous oxidation intermediates, e.g., formaldehyde (HCHO) and glyoxal (CHOCHO), can help us to test and improve the current knowledge of the VOC sources and degradation pathways.

We installed one ground-based Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) system in Meteorological Research Institute (MRI) located at Tsukuba, Japan (36.06N, 130.13E) in June 2010. In addition, two more systems were installed in Chiba University at Chiba, Japan (35.63N, 140.10E) in June and December 2012, respectively. Since then, we have retrieved lower-tropospheric vertical profile information for eight components; aerosol extinction coefficients at two wavelengths, 357 and 476 nm, and NO₂, HCHO, CHOCHO, H₂O, SO₂, and O₃ concentrations. For a detailed evaluation for the aerosol retrieval, which is a key step in the MAX-DOAS eight-component retrieval, simultaneous aerosol observations with the Cavity Ring-Down Spectroscopy (CRDS) and the sky radiometer were conducted at Tsukuba on October 5-18, 2010 and September 7-18, 2012. At Chiba, in addition to the comparison with sky radiometer data, a self-consistency test was performed by comparing results obtained from two MAX-DOAS systems operated at the same place. Through these detailed evaluations, our retrieval method was improved significantly, attaining excellent agreement with CRDS and sky radiometer data. On the basis of these efforts, seasonal and diurnal temporal variations in HCHO and CHOCHO concentrations retrieved from our MAX-DOAS system are discussed in this talk.

キーワード: CHOCHO, HCHO, MAX-DOAS, CRDS, sky radiometer

Keywords: CHOCHO, HCHO, MAX-DOAS, CRDS, sky radiometer

エアロゾル散乱全角度分布同時計測装置の開発と様々な非球形粒子の測定 Development of an angle-resolved polar nephelometer and its application to non-spherical particles

中川 真秀^{1*}; 笹子 宏史¹; 中山 智喜¹; 松見 豊¹; 上田 紗也子¹
NAKAGAWA, Maho^{1*}; SASAGO, Hiroshi¹; NAKAYAMA, Tomoki¹; MATSUMI, Yutaka¹; UEDA, Sayako¹

¹ 名古屋大学太陽地球環境研究所

¹ Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University

【はじめに】 エアロゾル粒子の地球温暖化への寄与の不確定性は大きく、それを解決するにはエアロゾルの光学特性を正確に測定する必要がある。不確定性は粒子の粒径、複素屈折率、形状に依存するため、これらの要素が不確定性を大きくさせている要因の一つと言える。エアロゾルの光学特性パラメーターの一つとして、散乱の角度分布(位相関数)がある。散乱の角度分布は、入射光の偏光方向により異なることから、異なる偏光方向に対する散乱の角度分布を測定する必要がある。そのため、単一粒子について平行偏光と垂直偏光を同時に測定できるようなマルチチャンネル型のエアロゾル散乱全角度分布同時計測装置を開発した。

【計測装置の概要】 開発した装置は YAG レーザーの第二高調波 ($\lambda = 532 \text{ nm}$) の緑色のレーザー光を使用しており、エアロゾル粒子が流れる導入管を二重にし、外側にシースフローを流すことで、導入された粒子の空間的な広がりを抑えている。粒子は検出器中心でレーザーと当たり、その散乱光強度が前方散乱 11.74 度から後方散乱 167.26 度まで約 8.3 度の角度分解能で検出される。本装置では、レーザー光の偏光面と垂直および平行面上の散乱光の角度分布が同時に測定できる。また、時間平均した多粒子の光散乱角度分布を測定することができるだけでなく、 100 Hz という高い時間分解能の計測により 1 つ 1 つの粒子の水平垂直偏光面の角度分解散乱強度を測定できる。この装置を使用して、Rayleigh 散乱および Mie 散乱領域での散乱の角度分布を測定した。

Rayleigh 散乱領域での測定のために使用したガスは二酸化炭素と代替フロン (HFC-134a) であり、Mie 散乱領域での測定に使用した粒子は、非光吸収性球形粒子であるポリスチレンラテックス (PSL) 粒子、光吸収性球形粒子であるニグロシン粒子、および非球形粒子の塩化ナトリウム粒子である。これらの散乱角度分布を計測し、Mie 散乱理論とモンテカルロ計算を組み合わせることで、各検出器の検出効率と検出される散乱角度幅を考慮したシミュレーション結果と比較した。実験装置は、粒子生成、粒径選別、粒子の散乱角度分布の測定を行う 3 つの部分からなる。粒子はネブライザーを用いて発生させ、拡散ドライヤーで水分を除去した後、微分型静電分級器とエアロゾル質量分級装置で粒径選別した。得られた単分散粒子を散乱全角度分布計測装置に導入し、レーザーの偏光面と平行および垂直面における散乱角度分布を計測した。

【性能評価試験】 散乱光の計測においては、散乱点(レーザー光路と導入された粒子が交差する部分)や検出点(検出器の面積)が点でないため、散乱された光子のうち各検出器に到達する光子の割合(検出効率)や各検出器で検出される散乱角度の幅(角度分解能)は、検出器(散乱角度)により異なる。そこで、モンテカルロ計算によりこれらの効果を推定した。計算では、散乱点(原点)の位置をレーザー光線上の設定した範囲のランダムな位置とし、散乱点から単位球面に対しランダムな散乱光線を数千万回発生させ、散乱光がそれぞれの検出器の受光面に何回当たったか(ヒット回数)を調べた。このヒット回数の違いを用いて、各検出器の検出効率の違いの影響を除去し、各検出器の感度のバラつきを推定したところ、各検出器の感度は $\pm 14\%$ の範囲内で一致することがわかった。

様々な粒径の PSL 粒子(選別直径 151 から 903 nm)の複数粒子の平均と単一粒子による散乱角度分布を測定した結果、Mie 散乱理論と各受光器の効率と検出できる散乱角度幅を加味した理論的なシミュレーションによる散乱角度分布により予想される波動干渉による波状のパターンが再現できた。ニグロシン粒子を用いた光吸収性球形粒子は、文献値である $n = 1.63 + 0.24i$ の理論曲線の散乱角度分布と最もよく一致した。その結果、複素屈折率の実部および虚部を決定でき、散乱角度分布測定から光吸収の大小が区別することができることがわかった。

また、形状の違いによる影響について調べるため、立方体に近い形状をしていると考えられる塩化ナトリウム粒子や不規則形状のススの散乱角度分布の計測も行っている。本発表では、粒子の非球形性の推定についても、議論する予定である。

マルチ視野角ライダーによるエアロゾル粒径分布の導出 Lidar With Multiple Field-Of-View Receiver To Determine Aerosol Size-Distribution

LIU YUTONG^{1*}; 矢吹 正教¹; 津田 敏隆¹
LIU, Yutong^{1*}; YABUKI, Masanori¹; TSUDA, Toshitaka¹

¹ 京都大学生存圏研究所

¹ Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

大気中には、エアロゾルと呼ばれる微小粒子が多数存在する。とりわけ、小さな粒子は気管支や肺泡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するため、エアロゾルの粒径分布を把握するのは必須である。時間・空間的変動の高いエアロゾルのモニタリングには、ライダーなどの光学のリモートセンシング手法が効果的である。UV、VIS、及び近 IR 波長の光は実用化されたが、それぞれの波長と同程度の直径を持つ粒子の検出には有効であった。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。

従来のエアロゾル観測ではライダーの FOV を小さく絞り、レーザーの入射方向から 180° 方向に散乱された単散乱成分の計測が主流であった。一方で、多重散乱成分には、単散乱計測のみでは抽出が難しい経路上のエアロゾル濃度と粒径分布情報が含まれている。本研究では、エアロゾル粒径分布をライダー計測から定量的に得るための手法を提案する。先行して実施したシミュレーション研究からは、多波長の単散乱計測と、UV 領域の 1 波長の多重散乱計測の組み合わせが、粒径分布の導出に有効であることを確かめた。ここでは、その手法を適用するために開発した多重散乱成分を検出するマルチ視野角ライダーの概要について主に述べる。マルチ視野角ライダーの光源には、微小粒子に感度が高い波長 355 nm、または波長 266 nm のレーザーを用いた。受光部には、望遠鏡の視野角を 0.1 mrad から 12.4 mrad の範囲をリモート制御できるシステムを付加し、各観測視野角に対するレーザー散乱光の強度を、各偏光成分に分けて計測することができる。発表では、マルチ視野角ライダーのシステム構成の詳細および性能評価と、エアロゾル粒径分布観測の初期解析結果についても紹介する。

キーワード: ライダー, エアロゾル

Keywords: Lidar, Aerosol

都市と遠隔域における耐熱性炭素粒子の長期沈着レコードの復元 Retrieval of decadal record on the deposition of particulate refractory carbon urban and remote sites in Japan

兼保直樹^{1*}; 松本潔²; 山口高志³; 秋山雅行³; 野口泉³; 村尾直人⁴; 西本駿也⁴; 船木大輔⁵; 高木智史⁵
KANEYASU, Naoki^{1*}; MATSUMOTO, Kiyoshi²; YAMAGUCHI, Takashi³; AKIYAMA, Masayuki³; NOGUCHI, Izumi³; MURAO, Naoto⁴; NISHIMOTO, Shunya⁴; FUNAKI, Daisuke⁵; TAKAKI, Satoshi⁵

¹産業技術総合研究所, ²山梨大学, ³北海道立総合研究開発機構, ⁴北海道大学大学院工学研究科, ⁵島根県保健環境科学研究所

¹National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ²University of Yamanashi, ³Hokkaido Research Organization, ⁴Graduate School of Engineering, Hokkaido University, ⁵Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environment Science

The atmospheric concentration of refractory carbonaceous aerosol (black carbon, or elemental carbon) concentration are used for the evaluation of their direct radiative forcing. In addition, the deposition of such light absorbing substances on the snow or ice surface will result in the increase of the positive radiative forcing at the surface level. Long-term record of deposition for such relative inert substances is expected to reflect the change in the regional emission strength.

However, the reported measurements of deposition to the ground surface are scarce. We thus have conducted the retrieval of decadal record on the deposition of refractory carbon at two sites in the northern Japan (Rishiri Island: a remote site, and Sapporo City: an urban site). At these sites, the environmental monitoring division of local government have been measuring the total deposition of water-soluble aerosol components in the collected water by use of deposition gauges. To remove insoluble particles from the collected water placed beneath the funnel, a membrane pre-filter is placed at the bottom of the funnel of these deposition gauges. Such pre-filters were stored for more than 18 years for Sapporo site. These can be regarded as the long-term record of the deposited water-insoluble aerosol components in the past, as those in ice-core samples collected in glaciers.

We re-suspend these water-insoluble components into the aqueous phase by dissolving the membrane filter (mixed cellulose acetate) by an organic solvent and re-filter the suspended particles through quartz fiber filters for the analysis of TOT refractory carbon. Before dissolved into organic solvent, carbonate in soil dust particles were removed by the 2N HCl with heat. Collection efficacy of quartz fiber filters were corrected by the amount of retained particulate carbon on the first and second filters placed in series.

The deposition flux of TOT-EC is larger in Sapporo, while that in Rishiri showed a large seasonal variation, in general. In Sapporo, the flux decreased greatly in 2010s compared to those in 1990s, probably due to the introduction of regulations for diesel exhaust emission in 2000s. In addition, the deposition sample has been collected in Oki Island since 2013 spring. The preliminary result for this site will also be shown in the presentation.

キーワード: 黒色炭素, 沈着フラックス, 長期レコード, 森林火災, 長距離輸送, ディーゼル車排気

Keywords: black carbon, deposition flux, decadal record, forest fire, long-range transport, diesel-powered vehicle exhaust

夏季の沖縄県辺戸岬における降水中のブラックカーボン粒子濃度の支配要因 The main controlling factor of black carbon mass concentration in rainwater during 2010-2013 summer in East Asia

森 樹大^{1*}; 大畑 祥¹; 近藤 豊¹; 茂木 信宏¹; 松井 仁志²; 岩崎 綾³; 友寄 喜貴³; 嘉手納 恒³
MORI, Tatsuhiko^{1*}; OHATA, Sho¹; KONDO, Yutaka¹; MOTOKI, Nobuhiro¹; MATSUI, Hitoshi²; IWASAKI, Aya³; TOMOYOSE, Nobutaka³; KADENA, Hisashi³

¹ 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻, ² 海洋研究開発機構, ³ 沖縄県衛生環境研究所

¹Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, University of Tokyo, Japan, ²Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, Tokyo, Japan, ³Okinawa Prefectural Institute of Health and Environment

化石燃料などの不完全燃焼によって大気中に放出される黒色炭素粒子(ブラックカーボン:以下BC)は、特に東アジア域において多く排出されており、気候に強い影響を与える。BCの空間分布は発生、輸送、除去の過程に支配され、主に降水によって大気から除去される(湿性除去)。BCの湿性除去過程は非常に複雑であり、従来のフィルター抽出法や熱分離法によるバルク測定¹⁾、定量性に不確かさがあることから、個々の降水イベントにおける降水中のBC濃度の支配要因の理解は不十分であった。そこで本研究では、中国大陸起源の汚染空気塊の下流域にあたる沖縄県辺戸岬大気・エアロゾル観測ステーションにおいて、2010年4月から2013年3月までの3年間にわたって大気中のBC濃度と降水中のBC濃度の同時観測を行い、特に沖縄の夏季(6月~8月)の降水イベントにおける降水中のBC濃度の支配要因を定量的に理解することを目的とした。大気中のBC濃度(M_{BC})は、ブラックカーボンモニタ(COSMOS)を用いて、連続的に測定された。また、降水中のBC濃度(C_{BC})は、降水試料から粒子を抽出する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(SP2)を組み合わせた方法²⁾で測定された。

沖縄の夏季は、積乱雲によるローカルな対流が起こる降水イベントが頻繁に起こることが知られており、降水開始前の地上の M_{BC} は C_{BC} に影響すると考えられる。しかし、夏季の全降水イベントにおいて、降水開始1時間前の M_{BC} と C_{BC} の相関を調べたところ、両者の間には相関が見られなかった($r^2 = 0.12$)。そこで、強い対流の降水イベントを抽出するため、大気が不安定な状態を表す指標である対流有効位置エネルギー(CAPE)を用い、CAPEがゼロ以上の降水イベントを抽出した。CAPEを算出するために6時間毎のNational Centers for Environmental Prediction(NCEP)の再解析データを用いた。その結果、降水開始1時間前の M_{BC} と C_{BC} の間に良い相関が見られ($r^2 = 0.47$)、沖縄県辺戸岬における非常にローカルな対流による降水イベントでは、 M_{BC} と C_{BC} の間に良い因果関係が見られた。

次に、地上の M_{BC} と水蒸気量(m_v)から C_{BC} の推定式が作れるかどうかを、観測した C_{BC} と比較することによって検証した。 M_{BC} は降水開始1時間前のデータを使用した。水蒸気が水滴に変換された量の算出は降水開始1時間前の m_v とNCEPの再解析データを使用した。いくつかの仮定の下、空気塊のBCと水蒸気の混合比が平衡高度まで保存し、平衡高度以上で水蒸気が凝結しないとすれば、水蒸気から水滴に変換した量は平衡高度において最大となる。平衡高度における C_{BC} を(1)式で表されると考えられる。

$$\text{Estimated } C_{BC} = \text{大気中のBC濃度} / \text{水蒸気から水滴に変換された量} \quad (1)$$

観測した C_{BC} とEstimated C_{BC} の間には良い相関が見られたことから($r^2 = 0.68$)、(1)式は水蒸気が平衡高度まで凝結成長した際の C_{BC} であることが確かめられた。観測した C_{BC} はEstimated C_{BC} よりも、約3倍高かった。これは、平衡高度まで到達せずにBCが降水によって除去された可能性などが考えられる。

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., N. Moteki, J. Schwarz, D. Fahey, and Y. Kondo. (2013). Evaluation of a method to measure black carbon particles suspended in rainwater and snow samples. *Aerosol. Sci. Technol.*, 47, 10 : 1073-1082.

キーワード: ブラックカーボン, 湿性沈着

Keywords: Black Carbon, wet deposition

沖縄県辺戸岬および長崎県福江島におけるエアロゾル個数濃度の粒径分布 Number size distribution of ambient aerosols at Cape Hedo, Okinawa and Fukue Island, Nagasaki

三好 猛雄^{1*}; 高見 昭憲¹; 伊禮 聡¹
MIYOSHI, Takao^{1*}; TAKAMI, Akinori¹; IREI, Satoshi¹

¹(独) 国立環境研究所
¹NIES

[序]

東アジアは近年、経済発展が著しく、ガス成分や大気エアロゾル等の人為起源物質が大量に大気中に放出されている。このうち、エアロゾルには雲核となるものがあることから、気候に影響を及ぼすことが指摘されている。水蒸気の過飽和度が同じ場合、エアロゾル全体(無機エアロゾルと有機エアロゾルの合計)に占める無機エアロゾルの割合が高いほど、そして、エアロゾルの粒径が大きいほど、凝結核に対する雲凝結核の割合が高いことが報告されている。

われわれはこれまで、エアロゾルの放出や生成が多い東アジアにおいて、エアロゾル中に含まれる化学成分の観測を行ってきた。本研究では、雲生成に大きく影響する、もう一つの要素であるエアロゾル個数濃度の粒径分布を観測した。エアロゾル粒径分布の東アジアでの空間分布に関する知見を得ることを目的として、得られたデータを観測地点による違いに着目し解析した結果について報告する。

[観測]

2012年2月15日から22日にかけて、辺戸岬(北緯:26.9度、東経:128.3度)において、2013年2月15日から28日にかけて、福江島(北緯:32.8度、東経:128.7度)において、エアロゾル個数濃度の観測を行った。観測に使用したのは、ワイドレンジ粒子スペクトロメータ(WPS: Wide-Range Particle Spectrometer, MSP社)である。WPSは電気移動度による分級を行い、粒子を凝結成長させて個数濃度を測定する凝結粒子計測部(DMA-CPC)、および光散乱を用いて個数濃度を測定する光散乱計測部(LPS)から構成されている。粒径が5-350nm(または10-500nm)の微小粒子はDMA-CPCで、350-10000nmの粒子はLPSで測定される。この装置を用いることで、広い粒径範囲の粒子を同一の測定器を用いて観測することができる。

WPSによる測定と同時に、大気エアロゾルの化学組成(測定された成分はアンモニウム、硝酸塩、硫酸塩、塩化物、有機物)についても、エアロゾル質量分析計(Q-AMS: Quadrupole Aerosol Mass Spectrometer(辺戸岬)、ACSM: Aerosol Chemical Speciation Monitor(福江島)、いずれもエアロダイン社)を用いて観測した。さらに、福江島ではSO₂計(Model 43i、日本サーモ社)による二酸化硫黄濃度の測定を行った。

[結果と考察]

WPSによって測定されたエアロゾル個数濃度の粒径分布に関して、辺戸岬では期間を通して50nmと200nm付近にピークをもつ二峰型の分布を示した。一方、福江島では期間中、分布の様子に変動がみられた。2月23日0時過ぎには分布は二峰型を示し、ピークの位置は50nmと最大の150nm付近にあった。また、2月24日の正午過ぎ、粒径15-25nmにおいて、辺戸岬に比べて、はるかに高濃度の100000個/cm³を超える粒子が観測された。このときの分布は一峰型であった。福江島では2月24日以外にも16日や25日などにおいて、高濃度の粒子が観測された。いずれも正午ごろから夜にかけて、核生成モード粒子が徐々に粒径の大きい粒子へと成長していく様子がみられ、新粒子生成イベントをとらえたと考えられる。しかし、辺戸岬ではこのような現象はみられなかった。

福江島において観測された二酸化硫黄および硫酸塩濃度、辺戸岬において観測された硫酸塩濃度、さらに国設辺戸岬酸性雨測定局における二酸化硫黄濃度を用いて、WPSによる観測期間中の各地点の二酸化硫黄と硫酸塩の和に対する二酸化硫黄の割合(=SO₂/(SO₂+SO₄);モル比)を調べた。福江島において、新粒子生成が観測されたとき、比は80%まで上昇していたが、辺戸岬では、中国からの気塊の輸送時間が福江島と同様に1日程度であった2012年2月17日においても60%にしかならなかった。福江島周辺では新粒子生成が起こるのに十分な二酸化硫黄などのガス成分が存在していたのに対し、辺戸岬周辺ではガス成分の濃度が低い上に、すでに高濃度の硫酸塩などの粒子が存在していたため、光化学反応により新たに半揮発性の成分が生成しても、既存の粒子への凝縮が起こったと考えられる。

キーワード: 個数濃度粒径分布, 東アジア, ワイドレンジ粒子スペクトロメータ, 新粒子生成

Keywords: Number size distribution, East Asia, Wide-range particle spectrometer (WPS), New particle formation

能登半島珠洲における有機硝酸エステル類の連続観測 Continuous measurement of organic nitrates at Suzu, the Noto peninsula

定永 靖宗^{1*}; 高治 諒¹; 石山 絢菜¹; 松木 篤²; 佐藤 啓市³; 長田 和雄⁴; 坂東 博¹
SADANAGA, Yasuhiro^{1*}; TAKAJI, Ryo¹; ISHIYAMA, Ayana¹; MATSUKI, Atsushi²; SATO, Keiichi³; OSADA, Kazuo⁴;
BANDOW, Hiroshi¹

¹大阪府立大学, ²金沢大学, ³アジア大気汚染研究センター, ⁴名古屋大学

¹Osaka Prefecture University, ²Kanazawa University, ³Asia Center for Air Pollution Research, ⁴Nagoya University

Peroxyacyl nitrates (PANs) and alkyl nitrates (ANs) act as one of the reservoirs of nitrogen oxides (NO_x) in the atmosphere. Since their lifetime is longer than that of NO_x , they can be transported over a long-distance and would be important as trans-boundary pollutants. In this research, continuous measurement system of total PANs and ANs in the troposphere has been developed by using a thermal dissociation / cavity attenuated phase shift spectroscopy (TD/CAPS) method. Both PANs and ANs are thermally decomposed to produce NO_2 and then NO_2 is measured by CAPS method. This system can observe PANs and ANs with high time resolution while this system cannot separate constituents of PANs and ANs. Total PANs and ANs can be measured separately by setting up decomposition lines at different temperatures.

Continuous field observations of PANs and ANs concentrations have been being carried out at NOTOGRO (NOTO Ground-based Research Observatory) supersite in Suzu, Noto Peninsula, since November 2012. NO_x , NO_y , total inorganic nitrate (T.NO_3), O_3 and CO concentrations have also been being observed at NOTOGRO.

NO_y concentrations were in agreement with the sum of observed NO_y components ($= \text{NO}_x + \text{T.NO}_3 + \text{PANs} + \text{ANs}$) regardless of seasons. NO_x fractions were the highest in NO_y constituents. T.NO_3 fractions were small in winter and increased in spring. Opposite tendencies were observed for PANs fractions. These reflect that wet deposition of T.NO_3 is promoted in winter and temperature increasing accelerates decomposition of PANs.

Seasonal variations of both PANs and ANs concentrations showed spring maximum and summer minimum. From winter to spring, both PANs and ANs concentrations from Korea-China air mass origin were higher than those from the other air mass origins. On the other hand, both PANs and ANs concentrations were independent of air mass origins from spring to summer. These indicate that PANs and ANs concentrations in winter and spring are governed by long-range transport and local photochemical productions of PANs and ANs are relatively important from spring to summer. In addition, PANs and ANs diurnal variations being high and low in the daytime and nighttime, respectively, in spring and summer also imply the local photochemical productions of PANs and ANs.

キーワード: 有機硝酸エステル, 反応性総窒素酸化物, 長距離輸送

Keywords: Organic nitrates, Total odd nitrogen species, Long-range transport

能登半島で観測されたススと硫酸塩の混合粒子の光吸収特性および形態的特徴 Light absorption and morphological properties of soot-containing particle mixed with sulfate observed at Noto Peninsula

上田 紗也子^{1*}; 中山 智喜¹; 松見 豊¹; 竹谷 文一²; 足立 光司³; 松木 篤⁴; 岩本 洋子⁴; 定永 靖宗⁵
UEDA, Sayako^{1*}; NAKAYAMA, Tomoki¹; MATSUMI, Yutaka¹; TAKETANI, Fumikazu²; ADACHI, Kouji³; MATSUKI, Atsushi⁴; IWAMOTO, Yoko⁴; SADANAGA, Yasuhiro⁵

¹ 名古屋大学太陽地球環境研究所, ² 海洋研究開発機構, ³ 気象研究所, ⁴ 金沢大学, ⁵ 大阪府立大学
¹STEL, Nagoya University, ²JAMSTEC, ³Meteorological Research Institute, ⁴Kanazawa University, ⁵Osaka Prefecture University

大気エアロゾル粒子に含まれるススは、黒色炭素 (BC) を母体とした大気中の主要な光吸収性物質であり、その大気加熱効果は地球の放射収支に正の影響を強く及ぼすとされている。スス粒子の光吸収特性は、硫酸塩や有機物などの被覆物があると、レンズ効果により増すとされている。一方、実際のススを含む粒子の形状・組成は複雑であり、従来のコア・シェル構造の粒子や単純な組成の仮定では、レンズ効果を過剰に評価し得ることが指摘されている (Adachi et al., 2010; Lack and Cappa, 2010; Cappa et al., 2012)。本研究では、東アジアからのアウトフローを対象とし、より aging されたスス粒子を観測するため、能登半島で春季に観測を行った。エアロゾル粒子の光散乱・吸収係数のオンライン測定と電子顕微鏡試料の解析から、ススの被覆による光吸収係数への寄与と個別粒子の形状・組成・混合状態を調べた。

観測は、2013年4月17日から5月14日に金沢大学・能登スーパーサイトで実施した。エアロゾル光散乱・吸収係数は、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 (DMT, PASS-3; $\lambda = 405, 532, 781 \text{ nm}$) を用いて測定した。試料大気を PM1 サイクロンと拡散ドライヤーに通した後、サーモデニューダーに導入し、室温、300 °C、400 °C の3経路を10分毎切り替え測定した。また同経路で SP2 (DMT) により BC 質量濃度と被覆厚を測定した。電子顕微鏡観察用の試料は、大気を拡散ドライヤーに通した後、2段インパクト (50%カットオフ径 1.5、0.3 μm) で、カーボン補強したコロジオン膜上に採取した。下段の試料について、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて、個別粒子形態を観察し、TEM に付属したエネルギー分散形 X 線分光 (EDS) 分析により、個別粒子の元素組成を調べた。さらに、EDS 分析の際の高密度電子線の照射で揮発した後の粒子の観察から、不揮発かつ鎖状形状を有する物質をススとして判別し、その他の物質との混合状態を調べた。

粒子を高温加熱すると、ススを被覆する硫酸塩などが揮発するため、レンズ効果が取り除かれると考えられる。781 nm では有機炭素 (OC) による光吸収の寄与がないと仮定し、室温と 300 °C の光吸収係数の比から BC のレンズ効果による光吸収の増加率を見積もったところ、期間平均で $23 \pm 25\%$ であった。期間中では、後方流跡解析より上海を経由して輸送された気塊とみられる際に、BC の光吸収の増加率が最も大きい値 (40%以上) であった。この際に採取した TEM 試料では、ススの多くは球に近い形状の硫酸塩に十分被覆された内部混合粒子として観察された。一方、観測期間を通して 300 °C に対する室温の 405 nm 光吸収係数の増加率は、781 nm と比べて低く、特に日本や朝鮮半島を経由した気塊で増加率が負になる傾向があった。405 nm での光吸収の増加率を負に過小評価した要因として、サーモデニューダーでの加熱の際に光吸収性が増す OC が存在した可能性が挙げられる。405 nm の光吸収の増加率が負で 781 nm の増加率が 25% 以下の際の TEM 試料を分析した。上海由来の気塊と同様に、殆どのススが硫酸塩を十分多く付着した内部混合粒子であったが、硫酸塩粒子が凝集した形跡のある非球形の粒子が多く、高密度電子線照射後にスス以外の炭素質の残渣が観察された点も異なった。以上より、本観測手法で見積もられたレンズ効果が、ススを被覆する物質の形状と組成に応じて異なることが示された。

Adachi, K. et al., *J. Geophys. Res.*, 115, D15206 (2010)
Lack, D. A. and Cappa, C. D., *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 4207-4220 (2010)
Cappa, C. D. et al., *Science*, 337, 1078-1081 (2012)

キーワード: エアロゾル光学特性, 大気観測, 黒色炭素, 電子顕微鏡, レンズ効果
Keywords: Aerosol optical properties, Ambient measurement, Black carbon, electron microscope, Lensing effect

夏季の能登半島におけるエアロゾルの混合状態 Mixing states of summer time aerosol particles in Noto peninsula

山田 怜奈^{1*}; 上口 友輔¹; 木ノ内 健人²; 岩本 洋子³; 上田 紗也子⁴; 足立 光司⁵; 松木 篤³
YAMADA, Reina^{1*}; KAMIGUCHI, Yusuke¹; KINOUCHI, Kento²; IWAMOTO, Yoko³; UEDA, Sayako⁴; ADACHI, Kouji⁵
; MATSUKI, Atsushi³

¹ 金沢大学理工学域, ² 金沢大学大学院自然科学研究科, ³ 環日本海域環境研究センター, ⁴ 名古屋大学太陽地球環境研究所,
⁵ 気象研究所

¹ College of Science and Engineering, Kanazawa University, ² Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, ³ Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, ⁴ Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University, ⁵ Meteorological Research Institute

エアロゾル粒子の特徴を決める要素の一つに、混合状態が挙げられ、その気候影響を評価する上でも重要である。近年、能登での複数年にわたる観測より、従来あまり注目されてこなかった夏季に、エアロゾル粒子が高い個数濃度を示すことが明らかになった。そこで本研究では透過型電子顕微鏡 (TEM) を使用し、夏季のエアロゾル粒子の成分や混合状態を分析することで、その特徴を明らかにすることを目的とした。能登半島の先端に位置する観測サイト NOTOGRO (NOTO Ground-based Research Observatory) において、6月9日から8月23日まで間、ほぼ毎日サンプリングを行い、その中から特に高濃度イベントのものを選出し、分析を行った。夏季には太平洋側から気塊が流入する傾向があるが、夏の高濃度イベント時でも大陸側からの流入を含む、いくつか異なる流入パターンが存在することがわかった。また、流入経路により、その主な成分も異なることを確認した。一方、夏のサンプル全体を通して、多くの粒子が内部混合をしており、微小な粒径では有機物の、粗大な粒径では硫酸塩の割合がそれぞれ高い傾向を示した。以上の結果は、中部日本の遠隔地域において夏季に高濃度で観測されるエアロゾル粒子の混合状態が、流入経路などの違いなどに応じて、それぞれのイベントごと、また粒径別に大きく変化することを示している。

キーワード: 大気エアロゾル, 混合状態, 有機エアロゾル粒子, 硫酸塩エアロゾル粒子

Keywords: atmospheric aerosols, mixing state, organic aerosol particles, sulfate aerosol particles

能登半島における新粒子生成イベントの観測 Observation of new particle formation event at Noto peninsula

鏡味 沙良^{1*}; 松木 篤²; 岩本 洋子²; 木ノ内 健人³
KAGAMI, Sara^{1*}; MATSUKI, Atsushi²; IWAMOTO, Yoko²; KINOUCHI, Kento³

¹ 金沢大学理工学域, ² 環日本海域環境研究センター, ³ 金沢大学大学院自然科学研究科

¹College of Science and Engineering, Kanazawa University, ²Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, ³Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University

新粒子生成は、雲凝結核となりうる大気エアロゾル粒子の個数濃度を増加させる重要な供給源の一つであり、地球上の気候に重要な影響力を持っている。能登半島にある大気観測サイト NOTOGRO において、2012年10月から2013年9月にかけて、大気エアロゾル粒径分布の観測が行われた。これは長期間にわたって日本海沿岸地域における新粒子生成イベントを観測した数少ない報告となる。観測した新粒子生成イベントは、既存粒子数濃度を表すパラメータである Condensation Sink (CS) が相対的に低下した時に発生する傾向がみられた。気象条件と比較すると、イベントは日射のある時間帯に集中的で、冬季と夏季には降雨によって既存粒子数濃度が低下することが引き金となる傾向がよい。一方、秋季と春季に観測されたイベントは相対湿度が著しく低い日に集中的に観測された。以上のことから、新粒子生成イベントが起きやすい条件が、冬季には冬季季節風、夏季には梅雨と台風、秋季と春季には移動性高気圧というふうに、観測地域の気候の季節変化の特徴と密接に関係しているものと考えられる。

キーワード: 大気エアロゾル, 新粒子生成, Condensation Sink, 降水, 季節変化

Keywords: atmospheric aerosol, new particle formation, condensation sink, precipitation, seasonal variation

夏季富士山頂における, Hg/CO比を用いた大気中水銀の起源と汚染解析 Origin of atmospheric gaseous mercury using the Hg/CO ratio in pollution plume observed at Mt. Fuji Weather Station

永淵 修^{1*}; 横田 久里子²; 加藤 俊吾³; 尾坂 兼一¹; 中澤 暦¹; 古賀 勝¹; 菱田 尚子¹; 西田 友規¹
NAGAFUCHI, Osamu^{1*}; YOKOTA, Kuriko²; KATO, Syungo³; OSAKA, Ken'ichi¹; NAKAZAWA, Koyomi¹; KOGA, Masaru¹; HISHIDA, Naoko¹; NISHIDA, Yuki¹

¹ 滋賀県立大学, ² 豊橋技術科学大学, ³ 首都大学東京

¹the University of Shiga Prefecture, ²Toyohashi university of technology, ³Tokyo Metropolitan University

Mercury (Hg) is a global pollutant, which is dispersed worldwide mainly in gaseous elemental form via long-range atmospheric transport. Due to the increasing fossil fuel consumptions and industrial emissions, Asia now contributes more than 50% of the global anthropogenic Hg emission with China being the largest atmospheric Hg emitter. Previous studies have demonstrated that the trans-Pacific Asian Hg export could impact North America. Therefore, we would like to study its transport mechanism in the free troposphere by monitoring atmospheric Hg concentrations at high elevation site in Japan. The sampling site is at the summit of Mt. Fuji Weather Station, which is 3,777 m above sea level.

Gaseous mercury and particulate mercury in the atmosphere were separately collected by using a mercury sampler developed by Kagaya et al., (2007). A quartz filter (Palflex2000, Tokyo Dylec) was attached at the tip of a mercury absorbing tube in which amalgamated gold was impregnated, and the air was aspirated by an air pump through the filter and the mercury absorbing tube at a rate of 0.5L/min. Particulate mercury was filtered by the quartz filter and gaseous mercury was absorbed by the amalgamated gold in the tube. Both particulate and gaseous mercury were analyzed by an atomic absorbance spectrophotometer (Nippon Instruments, MA-2000) after vaporization by heating.

The mercury sampler was set in a place 5m or more away from the building at summit of Mt. Fuji (N35.21'.38", E138.43'39"). The sampling was performed from 11 to 18 August, 2008. The filter and the absorbing tube were changed with 12-24 hour-intervals.

Atmospheric mercury concentrations observed at summit of Mt. Fuji and Japan. High concentrations of both gaseous and particulate mercuries were observed at the summit of Mt. Fuji. Swartzendruber et al. reported the gaseous and particulate mercury concentrations in the free troposphere at the Mt. Bachelor as 1.54 and 0.0043 ng/m³, respectively. Hans R. Friedli et al reported that gaseous elemental mercury were found in industrial plumes exiting China, Korea, and Japan ~6.3ng/ m³, ~3ng/ m³ and ~3ng/ m³, respectively. The higher atmospheric mercury concentrations at the summit of Mt. Fuji may imply that there is a specific pollution source in the East Asia. Because from the result of the back trajectory calculation, the air mass came from the China during this observation periods.

粗大粒子、微細粒子中の鉛化学種およびその形成過程に関して
Clarification of lead (Pb) species and its formation mechanisms in coarse and fine aerosol particles using X-ray absorpt

坂田 昂平^{1*}; 坂口 綾¹; 谷水 雅治²; 高橋 嘉夫¹
SAKATA, Kohei^{1*}; SAKAGUCHI, Aya¹; TANIMIZU, Masaharu²; TAKAHASHI, Yoshio¹

¹ 広島大学大学院理学研究科, ² 海洋開発研究機構
¹ Graduate school of Science, Hiroshima University, ² JAMSTEC

There are very few studies on chemical speciation and atmospheric chemistry of trace elements. Among the trace elements in the aerosol particles, lead(Pb) has long been measured due to the toxicity of this element. The measurement of Pb isotope ratios in aerosol particles has also been employed as a powerful tracer for air-mass transportation because Pb isotope ratios differ significantly depending on the emission area/source. However the speciation of Pb has not been clarified, although their solubility is important to estimate the health effects for human/animal body. Furthermore, Pb in the aerosol particle is the dominant source of Pb, which is used as oceanic circulation tracer, in the surface seawater. Thus, the speciation of Pb in the aerosol particle is one of the important issue. In this study, we attempted to determine the Pb species in aerosol samples using X-ray absorption fine structure (XAFS) analysis.

Size-fractionated aerosol particles were collected by a high-volume aerosol sampler with cascade impactor at Higashi-Hiroshima. Lead LIII-edge (absorption edge: 13.04 keV) X-ray absorption near-edge structure (XANES) spectra were recorded on SPring-8 on BL01B1 and at KEK PF-AR on NW10A to identify the Pb species. The analyzed sample-sets of size-fractionated aerosol particles are follows: Spring (Asian dust event), summer (two sample sets), fall, and winter (transboundary pollution event).

Lead species in size-fractionated aerosol particles are different between fine and coarse aerosol particles. In the fine aerosol particles, the dominant Pb species were two or three components, PbSO_4 , $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ and PbC_2O_4 , in all seasons. That is, the seasonal variation of Pb species in the fine aerosol was not found. It is because the Pb species in the fine aerosol particles are formed by uniform chemical reaction with H_2SO_4 , HNO_3 and oxalic acid in droplet through a year. Pb species in the coarse aerosol particles, except for on Asian dust event, were $2\text{PbCO}_3\text{-Pb}(\text{OH})_2$, $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ and PbC_2O_4 . These $2\text{PbCO}_3\text{-Pb}(\text{OH})_2$ and partial PbC_2O_4 were derived from road dust, and $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ in coarse aerosol particles was formed by chemical reactions with HNO_3 on the surface of the particle. In Asian dust event, the coarse aerosol particles showed PbSiO_3 as major Pb species, although other species, $2\text{PbCO}_3\text{-Pb}(\text{OH})_2$ and PbC_2O_4 , were also obtained. Thus we could found the clear seasonal variation in the coarse aerosol particles. These results will be able to estimate the accurate estimation of Pb solubility to the surface seawater.

CARIBICで観測された上部対流圏の塩化メチル変動：広域分布と夏季のアジアモンスーンからの流出 Methyl chloride in the upper troposphere observed by CARIBIC: large-scale distributions and Asian summer monsoon outflow

梅澤 拓^{1*}; K. Baker Angela¹; Oram David²; Sauvage Carina¹; O'Sullivan Debbie²; Rauthe-Schoech Armin¹; A. Montzka Stephen³; Zahn Andreas⁴; A.M. Brenninkmeijer Carl¹
UMEZAWA, Taku^{1*}; K. BAKER, Angela¹; ORAM, David²; SAUVAGE, Carina¹; O'SULLIVAN, Debbie²; RAUTHE-SCHOECH, Armin¹; A. MONTZKA, Stephen³; ZAHN, Andreas⁴; A.M. BRENNINKMEIJER, Carl¹

¹ ドイツマックスプランク化学研究所, ² 英国イーストアングリア大学, ³ 米国海洋大気庁地球システム調査研究所, ⁴ ドイツカールスルーエ工科大学

¹Max Planck Institute for Chemistry, ²National Centre for Atmospheric Science, School of Environmental Sciences, University of East Anglia, ³Earth System Research Laboratory, NOAA, ⁴Institute for Meteorology and Climate Research, Karlsruhe Institute of Technology

CARIBIC is a flying observatory onboard a Lufthansa A340-600 aircraft that observes various atmospheric compounds at almost monthly intervals. In this study, we present spatial and temporal variations of methyl chloride (CH_3Cl) in the upper troposphere (UT) observed mainly by CARIBIC for the years 2005-2011. The CH_3Cl mixing ratio in the UT over Europe was higher than that observed at a European surface baseline station throughout the year, indicative of a persistent positive vertical gradient at NH mid latitudes. A series of flights over Africa and South Asia show that CH_3Cl mixing ratios increase toward tropical latitudes, and the observed UT CH_3Cl level over these two regions and the Atlantic was higher than that measured at remote surface sites. Strong emissions of CH_3Cl in the tropics combined with meridional air transport through the UT may explain such vertical and latitudinal gradients. Comparisons with carbon monoxide (CO) data indicate that non-combustion sources in the tropics dominantly contribute to forming the latitudinal gradient of CH_3Cl in the UT. We also observed elevated mixing ratios of CH_3Cl and CO in air influenced by biomass burning in South America and Africa, and the emission ratios derived for CH_3Cl to CO in those regions agree with previous observations. In contrast, correlations indicate a high CH_3Cl to CO ratio of 2.9 ± 0.5 ppt ppb⁻¹ in the Asian summer monsoon anticyclone and domestic biofuel emissions in South Asia are inferred to be responsible. We estimated the CH_3Cl emission in South Asia to be 134 ± 23 Gg Cl yr⁻¹, which is higher than a previous estimate due to the higher CH_3Cl to CO ratio observed in this study.

キーワード: CARIBIC, 航空機観測, 塩化メチル, 上部対流圏

Keywords: CARIBIC, aircraft observation, methyl chloride, upper troposphere

2009/2010年のエルニーニョ時に西部太平洋で観測された年平均APOの赤道極大の平坦化
Flattening of the equatorial bulge of annual mean APO observed in the Western Pacific during the 09/10 El Nino event

遠嶋 康徳^{1*}; 向井 人史¹; 町田 敏暢¹; 寺尾 有希夫¹; 野尻 幸宏¹
TOHJIMA, Yasunori^{1*}; MUKAI, Hitoshi¹; MACHIDA, Toshinobu¹; TERAOKA, Yukio¹; NOJIRI, Yukihiro¹

¹ 国立環境研究所

¹National Institute for Environmental Studies

A tracer known as atmospheric potential oxygen ($APO=O_2+1.1\times CO_2$) has been proved to be useful to study air-sea gas exchange. Although both atmospheric CO_2 and O_2 concentrations are affected from the air-sea and air-land gas exchanges, APO mainly reflect the air-sea gas exchange because APO is invariant with respect to the land biotic gas exchanges (-1.1 in the definition represents the molar land biotic $-O_2:C$ exchange ratio). To investigate the spatio-temporal variations in the APO over the Pacific region, we have been observing the atmospheric CO_2 and O_2 concentrations onboard commercial cargo ships sailing between Japan and US/Canada and Australia/New Zealand since December 2001. Our previous studies based on the shipboard flask measurements for 7-year period (2002-2008) revealed that the average latitudinal distribution of the annual-mean APO in the Western Pacific (from 40 deg. S to 50 deg. N) show a maximum near the equator and decreasing trends toward the mid-latitude in both hemisphere (Tohjima et al, 2012). This latitudinal distribution of the annual-mean APO is mainly attributed to the latitudinal differences in the air-sea gas exchange: outgassing fluxes around the equator and ingassing fluxes in the mid and high latitude. In the previous study, the equatorial bulge was robust and always observed during the 7-year period. However, the equatorial bulge disappeared and the latitudinal distribution was flattened especially in the Southern Hemisphere during the period from July 2009 to June 2010, when the most recent El Nino event occurred. Simulated APO based on an atmospheric transport model (NIES99) driven by a set of climatological oceanic O_2 and CO_2 fluxes also shows suppression of the equatorial bulge during El Nino periods, indicating that the atmospheric transport substantially contributes to the inter-annual change in the latitudinal distribution of the annual-mean APO. The simulated APO, however, cannot fully reconstruct the flattening of APO in the Southern Hemisphere. Thus, the suppression of the Eastern Pacific upwelling during the El Nino period might reduce O_2 and/or CO_2 outgassing around the equatorial ocean.

キーワード: 大気ポテンシャル酸素, APO, 大気?海洋ガス交換, エルニーニョ, 西部太平洋熱帯域

Keywords: atmospheric potential oxygen, APO, air-sea gas exchange, El Nino, Tropical western Pacific ocean

大気-森林間の酸素と二酸化炭素の交換比の観測に基づく森林の生態系呼吸量と光合成量の分離評価 Separation of gross primary production and ecosystem respiration of a Japanese forest using atmospheric O₂/N₂ ratio

石戸谷 重之^{1*}; 村山 昌平¹; 近藤 裕昭¹; 三枝 信子²; 岸本文紅³; 山本 晋¹
ISHIDOYA, Shigeyuki^{1*}; MURAYAMA, Shohei¹; KONDO, Hiroaki¹; SAIGUSA, Nobuko²; KISHIMOTO, Ayaka³; YAMAMOTO, Susumu¹

¹ 産業技術総合研究所, ² 国立環境研究所, ³ 農業環境技術研究所

¹National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), ²National Institute for Environmental Studies,

³National Institute for Agro-Environmental Sciences (NIAES)

大気中 O₂ 濃度 ($\delta(O_2/N_2)$) の高精度観測は全球 CO₂ 収支推定の有力な手法であり、1990 年代初頭より全球的な観測が展開されている (e.g. Manning and Keeling, 2006)。 $\delta(O_2/N_2)$ を用いた全球 CO₂ 収支解析には大気-陸上生物圏間の平均 O₂:CO₂ 交換比 (ER = -O₂:CO₂ molar exchange ratio) が必要であり、初期の研究では Keeling (1988) により各種有機物の元素存在度分析結果に基づいて報告された 1.05 の値が、近年の研究では Severinghaus (1995) により改訂された 1.1 の値が広く用いられている。しかしながら、Seibt et al. (2004) および Ishidoya et al. (2013) が森林の呼吸および光合成の ER 観測値と森林内の O₂ および CO₂ の収支に基づいて推定した大気-森林間フラックスの ER (ER_F) は、1.1 とは大きく異なる値であった。また森林が CO₂ を吸収する際の ER_F として、Seibt et al. (2004) では 1.1 より大きい値が、Ishidoya et al. (2013) では 1.0 より小さい値がそれぞれ報告されており、両者で逆の傾向の結果が得られている。そのため、大気-陸上生物圏間平均 ER の検証のためには、各種森林における ER_F 値の直接観測が強く望まれる。また ER_F の直接観測が可能になれば、渦相関法により観測された大気?森林間 CO₂ フラックスを、光合成量 (GPP: Gross Primary Production) と生態系呼吸量 (RE: Ecosystem Respiration) とに分離して評価することも可能になる。そのため本研究では岐阜県高山市乗鞍岳中腹の冷温帯落葉広葉樹林内観測サイト (TKY サイト; 36° 09' N, 137° 25' E, 1420 m a.s.l.) において傾度法 (aerodynamic method) (Yamamoto et al., 1999) による解析を適用することで、ER_F 値の初めての直接観測例として 2013 年夏期の平均 ER_F 値を観測するとともに、得られた結果を GPP と RE の分離評価に応用したので報告する (Ishidoya et al., in preparation)。

傾度法の適用のためには森林樹冠上の複数高度での観測が必要であるため、本研究では TKY サイト樹冠上の高度 18 および 27 m の 2 高度において、燃料電池式分析計 (Goto et al., 2013) と非分散型赤外分析計とを用いて $\delta(O_2/N_2)$ と CO₂ 濃度の連続観測を行なった。観測は 2013 年 5 月 24-8 月 28 日の期間に行なわれた。ER_F は、森林内の鉛直拡散係数が O₂ と CO₂ とで等しいと仮定し、高度 18 と 27 m の $\delta(O_2/N_2)$ 差 ($\Delta\delta(O_2/N_2)$) と同 CO₂ 濃度差 (ΔCO_2) の比を用いることで計算される。ただし、 $\delta(O_2/N_2)$ の測定精度は連続的な ER_F の変化を導出するには不十分であるため、各日の $\Delta\delta(O_2/N_2)$ (ΔCO_2) 値を全て同一日に重ね合わせることで得られた観測期間平均の気候値的な $\Delta\delta(O_2/N_2)$ (ΔCO_2) 日変化に基づいて ER_F を計算した。その結果、観測期間平均の日平均 ER_F として 0.79 ± 0.07 の値が得られた。この値は、森林が CO₂ を吸収する際に ER_F が 1.0 より小さい値を示すことを予測した Ishidoya et al. (2013) と整合的である。得られた日平均 ER_F と、光合成の ER として Calvin-Benson-Bassham サイクルから予測される 1.00、および生態系呼吸の ER として Ishidoya et al. (2013) により報告された TKY サイト土壌呼吸における 1.11 ± 0.01 の値をそれぞれ与えることで、大気-森林間 CO₂ フラックス観測値 (Saigusa et al., 2005) に基づく生態系純一次生産 (NEP: Net Ecosystem Production, NEP = GPP-RE) を GPP と RE とに分離して評価した。得られた RE および GPP は、Saigusa et al. (2005) による呼吸温度関数から推定された RE とそれに基づく GPP よりそれぞれ 1.6 および 1.3 倍大きく、チャンバーによる土壌呼吸観測値 (Mo et al., 2005) から推定した RE とそれに基づく GPP と整合的な値であった。今後、 $\delta(O_2/N_2)$ による全球 CO₂ 収支解析の検証と、GPP および RE 分離推定の高精度化のため、各種森林における ER_F 観測の展開とそのさらなる精密観測法の開発が重要な課題となる。

キーワード: 大気中 O₂/N₂ 比, 大気-森林間 O₂:CO₂ 交換比, 光合成, 生態系呼吸, 森林炭素収支

Keywords: atmospheric O₂/N₂ ratio, O₂:CO₂ exchange ratio between a forest and the atmosphere, gross primary production, ecosystem respiration, forest carbon cycle

民間航空機によって観測された上部対流圏/下部成層圏温室効果気体の季節変化 Seasonal changes of greenhouse gases in the upper troposphere/lower stratosphere observed by commercial airliner

澤 庸介^{1*}; 町田 敏暢²; 松枝 秀和¹; 丹羽 洋介¹; 坪井 一寛¹; 村山 昌平³; 森本 真司⁴; 青木 周司⁴
SAWA, Yousuke^{1*}; MACHIDA, Toshinobu²; MATSUEDA, Hidekazu¹; NIWA, Yosuke¹; TSUBOI, Kazuhiro¹; MURAYAMA, Shohei³; MORIMOTO, Shinji⁴; AOKI, Shuji⁴

¹ 気象研究所, ² 国立環境研究所, ³ 産業技術総合研究所, ⁴ 東北大学

¹Meteorological Research Institute, ²National Institute for Environmental Studies, ³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ⁴Tohoku University

Atmospheric mixing ratios of greenhouse gases at about 11 km altitude were analyzed from monthly air sampling aboard commercial airliner during the flights between Europe and Japan from April 2012 to August 2013. Compared to the subtropic, higher CH₄ and SF₆ mixing ratios, similar values of N₂O, and larger seasonal changes of CO₂ were found in the upper troposphere. CH₄, N₂O and SF₆ in the lower stratosphere, above the tropopause up to 30 K in potential temperature, showed simultaneous increases from June to October, and faster decreases at higher altitudes from January to March. Mean age of the air in the lower stratosphere was estimated based on SF₆ mixing ratios to be about 2 years in late spring and 1 year in autumn, suggesting stronger influences on the mixing ratios in the stratosphere from troposphere in summer.

キーワード: 大気化学, 温室効果気体, 上部対流圏・下部成層圏

Keywords: Atmospheric Chemistry, Greenhouse Gas, Upper Troposphere/Lower Stratosphere

日本上空の成層圏下部におけるメタン濃度と炭素同位体比の長期変化 Long-term changes of CH₄ concentration and its carbon isotopic ratio in the lower stratosphere over Japan

菅原 敏^{1*}; 森本 真司²; 梅澤 拓³; 青木 周司²; 中澤 高浩²; 石戸谷 重之⁴; 豊田 栄⁵; 本田 秀之⁶
SUGAWARA, Satoshi^{1*}; MORIMOTO, Shinji²; UMEZAWA, Taku³; AOKI, Shuji²; NAKAZAWA, Takakiyo²; ISHIDOYA, Shigeyuki⁴; TOYODA, Sakae⁵; HONDA, Hideyuki⁶

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

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

It is expected that d13C of CH₄ provides us with useful information not only about CH₄ emissions from biogenic and abio-genic sources but also about its oxidation process in the atmosphere. Therefore, measurements of d13C have been carried out for the major CH₄ sources as well as for the background atmosphere. However, the measurements are still insufficient for elucidating the CH₄ cycle on the earth's surface. In the stratosphere, CH₄ is destroyed by reactions with OH, O(1D) and Cl atom. These destruction processes play an important role in the stratospheric chemistry, but the respective contributions to the CH₄ loss and their temporal changes have not been yet well understood quantitatively. Measurements of the isotopic ratios of the stratospheric CH₄ are one of the most promising methods to detect possible change of the CH₄ destruction processes in the stratosphere on the basis of the different isotopic fractionations occurring in the different reactions. However, only a few measurements have been made so far, due mainly to difficulty of collecting air samples in the stratosphere. Systematic collections of stratospheric air samples have been carried out over Japan since 1985 using a balloon-borne cryogenic sampler. We analyzed the air samples collected in the period of 1994-2010 for concentrations of CH₄, N₂O, CO₂ and SF₆, and d13C of CH₄. In this study, we report the preliminary results of the long-term change of d13C of CH₄ in the stratosphere. Almost linear and compact relationships between CH₄ and N₂O concentrations were found for the all observations in the different years. CH₄ concentration and d13C also showed compact relationships in the lower stratosphere, although those in the mid-stratosphere were less correlated. The tight correlations between CH₄ and N₂O in spite of the different destruction processes suggest that the ratio of both destruction rates has been kept as almost constant during the transport process in the stratosphere. It is well known that tropospheric CH₄ and N₂O have been secularly increasing in the recent decades. Such increasing trends should have been propagated into the stratosphere, and the compact relationships between the stratospheric CH₄ and N₂O would change depending on their increase rates. To elucidate an inter-annual changes of the stratospheric CH₄ and its d13C, we employed N₂O-loss, instead of the N₂O concentration, as an indicator of how the chemical reactions have proceeded during the stratospheric transport. The N₂O-loss was calculated as a concentration difference between the tropical troposphere and the stratosphere by considering the mean age of air estimated from CO₂ and SF₆ concentrations. This procedure eliminates the effect of the secular N₂O increase from the relationships between CH₄ and N₂O, and enables us to detect possible change in the stratospheric CH₄. As a result, we found that the CH₄ concentration increased at a rate of 4.5±0.9 ppbv/year in the lower stratosphere during 16 years. This increase rate is consistent with those observed in the troposphere. The same technique was applied to the correlations between CH₄ concentration and d13C, and we found no significant changes of d13C in the lower stratosphere. Considering the fact that d13C in the troposphere also does not show a clear trend in a recent decade, our result implies that the relative contributions of the CH₄ destruction processes have been unchanged in the lower stratosphere over the observed period.

キーワード: 成層圏メタン, 炭素同位体比

Keywords: stratospheric methane, carbon isotopic ratio

バイオマス燃焼からの揮発性有機化合物の放出量の燃焼状態依存性に関する室内実験 Laboratory biomass burning experiments to investigate the dependence of emissions of volatile organic compounds on burni

猪俣 敏^{1*}; 谷本 浩志¹; 潘 小楽²; 竹谷 文一²; 駒崎 雄一²; 宮川 拓真²; 金谷 有剛²
INOMATA, Satoshi^{1*}; TANIMOTO, Hiroshi¹; PAN, Xiaole²; TAKETANI, Fumikazu²; KOMAZAKI, Yuichi²; MIYAKAWA, Takuma²; KANAYA, Yugo²

¹ 国立環境研究所, ² 海洋研究開発機構
¹NIES, ²JAMSTEC

バイオマス燃焼は、大気中への粒子状およびガス状有機化合物の大きなソースとなっている。¹ 我々のグループでは、2010年5-6月に中国長江デルタから北に約180kmの地点(如東)で大気観測を行い、観測期間に農作物残渣の野焼き由来と考えられる気塊を何度にもわたって観測した。粒子に関しては、元素炭素(EC)、有機炭素(OC)ともに、都市大気由来の気塊よりもバイオマス燃焼由来の気塊でCOに対して高い増大比が観測された。² ガス状有機化合物に関しては、バイオマス燃焼時には、特に含酸素揮発性有機化合物(OVOC)の占める割合がかなり大きいことがわかった。³ これらの観測事実を検証するため、中国観測地点付近の農作物残渣を持ち帰り、室内で燃焼実験を行った。

実験では、麦わらとアブラナの2種類の試料を用いた。ガス状成分としては、CO₂とCOを1秒間隔で、揮発性有機化合物(VOC)に関しては陽子移動反応質量分析計を用いて約2秒間隔で、OVOC、芳香族炭化水素を中心に測定した。粒子に関しては、個数密度をOPCで、黒色炭素(BC)および有機粒子の数密度をSP2(Single Particle Soot Photometer)を用いて計測した。本発表では、ガス状VOCの結果を主に発表する。

燃焼の状態は、flamingとsmolderingとその中間状態に大きく分けられる。燃焼状態の指標として、MCE(modified combustion efficiency, $\Delta CO_2 / (\Delta CO_2 + \Delta CO)$)が用いられ、0.99付近がflaming、0.65~0.85がsmolderingとされている。¹ 実験では、MCEが0.8から1での燃焼状態を作ることができ、VOCの放出量の燃焼状態依存性について調べることができた。測定したVOCのうち、ベンゼンのみ、MCE依存が顕著にはみられず、このことからベンゼンは燃焼時の一次生成物と考えられる。一方、他のVOCに関しては、MCEの値が小さくなるにつれ、COに対する放出量が増大する傾向がみられ、smoldering時に二次生成していることが示唆された。そのため、COに対するVOCの放出量の比は、燃焼状態の違いで大きく変動することが、本室内実験でわかった。

References

- 1) Akagi et al., Atmos. Chem. Phys. 11, 4039-4072, 2011.
- 2) Pan et al., J. Geophys. Res. 117, D22304, 2012.
- 3) Kudo et al., submitted to J. Geophys. Res., 2013.

キーワード: バイオマス燃焼, 揮発性有機化合物, 農作物残渣, 燃焼効率, PTR-MS, SP2

Keywords: Biomass burning, Volatile organic compounds, Crop residue, Combustion efficiency, PTR-MS, SP2

ガソリン乗用車から排出される VOC に関するオゾン生成ポテンシャル Impact of VOC emission from gasoline cars on ozone formation

山田 裕之^{1*}; 猪俣 敏²; 谷本 浩志²
HIROYUKI, Yamada^{1*}; INOMATA, Satoshi²; TANIMOTO, Hiroshi²

¹ 交通安全環境研究所, ² 国立環境研究所

¹National Traffic Safety and Environment Laboratory, ²National Institute for Environmental Studies

都市大気においてしばしば問題となるオゾンは、揮発性有機化合物 (VOC) と NO_x の大気中における反応により生成されることが知られている。従って都市大気においてオゾン濃度を良好な状態に保つためには、これら前駆物質を削減する必要がある。

そのため固定発生源、移動発生源双方において前駆物質の削減が行われている。この中で VOC に関しては、物質ごとにオゾン生成への寄与度は異なることが知られているが、排出量管理はオゾン生成能の違いを考慮せず、VOC 排出総量で評価が行われている。そこで、本研究では移動発生源として大きな VOC 排出割合を占めるガソリン乗用車からの VOC 排出について、Maximum Increment Reactivity (MIR) に基づくオゾン生成能を用いて評価を行う。

一般に自動車からの VOC 排出においては、テールパイプからのエンジン排気エミッションが注目されるが、以前の研究において駐車中のガソリン車からの蒸発ガスが、テールパイプを凌ぐ排出であることを示した。そのため本研究ではテールパイプエミッションのみならず、蒸発ガスに関して、その成分分析を行い、それぞれのオゾン生成ポテンシャルを算出する。

キーワード: オゾン, オゾン生成ポテンシャル, 蒸発ガス, ガソリン車, テールパイプエミッション

Keywords: ozone, ozone formation potential, evaporative emissions, gasoline cars, tailpipe emissions

VOC/NO_x/O₃ 反応系に関する有機硝酸生成計測法の改良 Improvement of measurement system for organic nitrates produced in the mixture of VOC, NO_x and O₃

松本 淳^{1*}

MATSUMOTO, Jun^{1*}

¹ 早稲田大学人間科学学術院

¹ Faculty of Human Sciences, Waseda University

【はじめに】有機硝酸類 ONs は、揮発性有機化合物 VOC を前駆体とする大気中での二次有機エアロゾル SOA の生成過程における中間生成物の一種に挙げられる。また、対流圏でのオゾン (O₃) 生成過程での過酸化ラジカル RO₂ による NO 酸化において、NO₂ を生成せずに ONs となる割合 (分岐比) は、NO-NO₂ 連鎖反応における O₃ 生成効率に影響する。したがって、SOA や O₃ に関連する大気質評価には、ONs 生成挙動の把握が重要である。すなわち、VOC を含む大気試料が酸化反応によって生成する ONs 量、有機硝酸生成能を新たに考える必要がある。二次生成 ONs は前駆体 VOC と同様に多種多様であるため、ONs 全成分を数え落とし無く網羅して捕捉する包括的計測法が有効である。そこで発表者は、VOC 試料の有機硝酸生成能の評価を目指して、熱分解レーザー誘起蛍光法 (TD-LIF) ONs 計を活用し、VOC 酸化反応系にて二次生成 ONs 量 (dONs) を計測する研究を実施している。今回は、これまでの試作型反応容器よりも大型の反応容器を新作し、その使用条件や性能について調査した。本発表では、VOC 標準試料に NO, O₃ を添加し、新型反応容器にて反応させた後の dONs を計測した室内実験の結果を紹介し、本手法の可能性を検証する。

【原理・方法】TD-LIF 法では、窒素酸化物を含む試料を加熱して生成する NO₂ のうち、360 °C前後での増分をアルキルナイトレート ANs 由来、170 °C前後での増分をペルオキシアルキルナイトレート PANs 由来、としたうえで、ONs = ANs + PANs を算出した。今回は、ガス状と粒子状の成分を区別しない総量を計測したが、経験上、ONs はガス状成分が支配的と考えられる。実験は、VOC 標準試料、NO 標準ガス、O₃ 発生器からのガス、を二重管フローチューブ式のガラス製反応容器 (内径 143 mm, 長さ 500 mm, 実効反応体積 6.4 L, 流量 0.86 SLM での反応時間 7.5 分、光照射なし) の入口側から導入し、出口側にて TD-LIF 計による ONs 計測を行なった。VOC による有機硝酸生成量 dONs は、VOC 導入時と清浄空気導入時の測定値の差として算出した。基礎実験として、NO の添加流量や反応容器内の吸引流量に対する dONs 検出強度の依存を調べて、dONs 感度の向上を図った。そのうえで、イソプレンやリモネンといった VOCs 標準試料について dONs の検量線を作成し、現時点での測定性能を評価した。

【結果・考察】ppmv レベルのイソプレン標準試料に 100 ppbv 程度の NO と O₃ を添加したところ、VOC の有無に対して TD-LIF 信号の有意な変化が計測され、反応による ONs 生成の捕捉に成功した。流量条件を決めたうえで、イソプレン標準試料の濃度と dONs 量の関係性を調べたところ、試作型反応容器と比較して約 3 倍の感度 $S(dONs) = 0.00085$ ppbv/ppbv を得た (感度 $S(dONs)$ は単位イソプレン濃度あたりの ONs 生成量)。十分な反応時間を確保した新型反応容器によって有機硝酸生成計測性能が大幅に改善した。同様に、同じ反応条件におけるリモネンの検出特性を調べたところ、 $S(dONs) = 0.013$ ppbv/ppbv を得た。今回捕捉されたリモネンおよびイソプレンの ONs 生成量の比 (約 15 倍) は、298 K におけるリモネンおよびイソプレンのオゾンとの反応速度定数の比 (約 16 倍) と良く一致した。VOC とオゾンの反応が ONs 生成量を支配しうることを実験的に確認し、本手法による ONs 生成計測の妥当性を示した。ただし、ONs 生成量の議論には、オゾン反応による RO₂ 生成効率や、反応 NO+RO₂ における NO₂ と ANs への分岐比も、考慮する必要がある。発表では、本手法を活用した ONs とポテンシャルオゾン PO の同時計測に基づいた、RO₂ 生成効率や NO₂ - ONs 生成分岐比を含めた ONs 生成特性評価の試みについても紹介する。

【謝辞】本研究は、科学研究費補助金・挑戦的萌芽研究 (課題番号 24651014) の助成を受けて実施された。

キーワード: 窒素酸化物, 揮発性有機化合物, 対流圏オゾン, 有機硝酸, 室内実験, 気相反応

Keywords: Nitrogen oxides, Volatile organic compounds, Tropospheric ozone, Organic nitrates, Laboratory experiments, Gas phase reactions

二次有機エアロゾルの消散係数の湿度依存性と化学特性の関係 Humidity dependence of extinction coefficients of secondary organic aerosols and its relation with chemical properties

中山 智喜^{1*}; 松見 豊¹; 佐藤 圭²; 今村 隆史²
NAKAYAMA, Tomoki^{1*}; MATSUMI, Yutaka¹; SATO, Kei²; IMAMURA, Takashi²

¹ 名古屋大学太陽地球環境研究所, ² 国立環境研究所

¹Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University, ²National Institute for Environmental Studies

大気エアロゾルによる太陽光の散乱や吸収は、地球大気の放射収支の決定に重要な役割を果たしているため、その光学特性(消散・散乱・吸収)の詳細な理解が重要である。エアロゾル粒子に水蒸気を取り込まれ吸湿成長すると、粒径や屈折率(化学組成)が変化するため、エアロゾル光学特性は相対湿度に依存する。そのため、エアロゾルの大気放射への影響を見積もるためには、光学特性の相対湿度依存性に関する知見が必要となる。しかし、二次有機エアロゾル(SOA)については、実験的な困難さから、その光学特性の湿度依存性について調べた例はほとんどなかった。そこで本研究では、実験室内で生成したSOAの消散係数の湿度依存性について詳細に調べた。

実験では、国立環境研究所のスモッグチャンバー(6 m³)内に反応ガスを導入し、SOAを生成させた。SOA生成反応として、代表的な人為起源の揮発性有機化合物(VOC)であるトルエンの光酸化反応(NO_x存在下)、および代表的な植物起源VOCであるアルファピネンのオゾン酸化反応を用いた。生成したSOAを、2つのセルを有するキャピティリングダウン分光装置(CRDS)に導入し、乾燥および高湿度条件における波長532 nmでの消散係数をリアルタイムに計測した。また、粒径分布を走査型移動度粒径測定器(SMPS)、粒子の化学成分を飛行時間型エアロゾル質量分析計(ToF-AMS)で測定した。

乾燥条件での消散係数に対する高湿度(相対湿度80%)条件での消散係数の比であるF(RH)と、全有機物信号に対するカルボン酸の含有量の指標となる質量電荷比(m/z=44)の信号の割合であるf₄₄との関係について調べた。その結果、アルファピネンから生成したSOAのF(RH)は、1.05程度と消散係数の湿度依存性が小さいことがわかった。一方、トルエンの光酸化反応で生成したSOAでは、f₄₄の増加とともにF(RH)が1.2-1.4程度まで増加すること、また、F(RH)とf₄₄の関係は初期NO_x濃度にほとんど依存しないことがわかった。本研究の結果から、トルエンの光酸化反応で生成するSOAでは、時間とともに酸化が進行して極性官能基が増え、粒子の吸湿性が増加することが示唆された。

キーワード: 二次有機エアロゾル, 光学特性, 湿度依存性, 化学特性, 気候変動

Keywords: Secondary organic aerosol (SOA), Optical property, Humidity dependence, Chemical property, Climate change

大気中の不溶性シュウ酸錯体：その安定化の原因や地球冷却効果との関連 Insoluble metal-oxalate complexes in the atmosphere: its stability and global cooling effect

山川 庸芝明^{1*}; 坂田 昂平¹; 宮原 彩¹; 宮本 千尋²; 坂口 綾¹; 高橋 嘉夫¹
YAMAKAWA, Yoshiaki^{1*}; SAKATA, Kohei¹; MIYAHARA, Aya¹; MIYAMOTO, Chihiro²; SAKAGUCHI, Aya¹; TAKAHASHI, Yoshio¹

¹ 広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻, ² 広島大学理学部
¹Department of Earth and Planetary Systems Science, Graduate School of Science, Hiroshima University, ²Department of Science, Hiroshima University

Aerosols have cooling effect on 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 and abundant in the atmosphere, which is formed by degradation of organic matters with longer carbon chain such as cyclic olefin. Oxalic acid is hygroscopic, which can work 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 (CO₂). However, there is large uncertainty in the estimation. In addition, it is suggested that oxalic acid may form insoluble metal-oxalate complexes and does not have the indirect cooling effect. Therefore, it is important to re-evaluate the cooling effect of aerosols for precise prediction of global warming. Although dicarboxylic acid including oxalic acid is decomposed into CO₂ by photolysis, oxalic acid is more abundant than the other dicarboxylic acids. It is possible that oxalic acid can be stabilized by forming metal-oxalate complexes. This study was aimed (i) to measure the concentration of metal-oxalate complexes in the atmosphere to contribute to precise prediction of global warming and (ii) to measure the half-life time to evaluate the stability of metal-oxalate complexes during photoreaction.

Size-fractionated aerosol samples were collected at Higashi-Hiroshima in winter (Dec., 2012-Jan., 2013), spring (April, 2013), and summer (July-Aug., 2013). The ratio of oxalic acid and total metal-oxalate complexes was estimated based on the X-ray absorption fine structure (XAFS) spectroscopy for zinc (Zn), lead (Pb), and calcium (Ca). Photolysis experiments were conducted by ultraviolet ray for oxalic acid, Zn complex, and magnesium (Mg) complex, while absorption spectra were measured to evaluate photoreactivity.

As a result, metal-oxalate complexes were found in finer particles. There was a positive correlation between the ratio of oxalate/nitrate and ratio of metal-oxalate complexes/total oxalate species. Therefore, it is considered that metal-oxalate complexes are formed by relative increase of oxalate for nitrate. Although concentration of total oxalate species was largest, the ratio of metal-oxalate complexes/total oxalate species was smallest in summer. Concentration of total oxalate species was higher than that of metal ions (Zn²⁺, Pb²⁺, and Ca²⁺). Therefore, it is considered that the ratio of metal-oxalate complexes is smallest in summer.

This ratio was about 30% to 50% for each sample through the year. This result showed that the cooling effect of oxalic acid may be smaller than previous estimation.

As a result of photolysis experiments, half-life time of oxalic acid, Mg complex, and Zn complex is 19 min, 71 min, and 172 min, respectively. This result showed that photoreactivity of oxalic acid was decreased by forming metal-oxalate complexes. Compared to absorption spectra between oxalic acid and metal-oxalate complexes, absorbance was decreased by forming metal-oxalate complexes. Therefore, it is considered that the increase of half-life time may be caused by the decrease of absorbance by forming metal-oxalate complexes.

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

Keywords: Aerosol, Metal-Oxalate Complex, Global Cooling Effect, Photoreactivity, X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy

VBS法を用いた有機エアロゾルモデルの開発と検証：アジア域における人為・自然起源の相互作用 Volatility basis-set approach simulation of organic aerosol formation in East Asia

松井仁志^{1*}; 小池真²; 近藤豊²; 高見昭憲³; 金谷有剛¹; 滝川雅之¹
MATSUI, Hitoshi^{1*}; KOIKE, Makoto²; KONDO, Yutaka²; TAKAMI, Akinori³; KANAYA, Yugo¹; TAKIGAWA, Masayuki¹

¹ 海洋研究開発機構, ² 東京大学, ³ 国立環境研究所

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

有機エアロゾル(OA)は大気中の微小粒子の主要な寄与を占め、直接・間接効果の両面で重要な役割を果たす。しかし、その生成過程は非常に複雑であるため、大気中でのOA濃度とその気候・健康影響の見積もりには依然として大きな不確実性がある。全球・領域モデルを用いたOAの計算が多く行われてきたが、実大気中のOA濃度やその生成量を大きく過小推定してきた。近年これまで考えられてこなかったOAの前駆気体(半揮発性の有機化合物、S/IVOC)とその酸化過程が発見され、これらを考慮した新しいOAモデルの概念が提唱された(Volatility basis set、VBS)。VBSモデルは全球・領域モデルにも取り入れ始めており、大気中の現実的なOA濃度を説明でき得る手法として注目されてきている。

本研究では、この手法に基づいたOAモデルを開発し、領域3次元モデルWRF-chemに導入した。このモデルでは揮発性有機化合物(VOC)とS/IVOCの大気中での連続的な酸化過程と気相-エアロゾル相の分割を計算する。このモデルをアジア域に適用し、1) 2次有機エアロゾル(SOA)の生成に対するVOC・S/IVOCの酸化過程の重要性、2) SOA生成における人為起源VOC・S/IVOCと自然起源VOC・S/IVOCの相互作用を調べた。また、3) 人為的な排出源の影響を受けて生成したOA(Controllable OA)の寄与を推定した。

まず、東京周辺域(埼玉・騎西、2004年7~8月)および東アジア域の下流域(長崎・福江島、沖縄・辺戸岬、2009年3~4月)においてエアロゾル質量分析計を用いて行われたOA観測結果との比較を行った。VOC・S/IVOCの酸化過程を考慮したVBSモデルの計算は、観測されたOA・SOAの質量濃度や時間変動を概ね再現することに成功した。一方、S/IVOCおよびそれらの酸化過程を考慮しない計算(従来型のOAモデル)では観測されたOA・SOAの質量濃度を80~90%も過小推定する結果が得られた。アジア全域では、酸化過程を考慮することによってOA質量濃度が $0.24\mu\text{g}/\text{m}^3$ から $1.28\mu\text{g}/\text{m}^3$ へと大幅に増大した(2009年3~4月平均、高度約1km)。これらの結果は、これまで考慮されてこなかったOAの前駆気体や酸化機構がアジア域の現実的なOA・SOAの質量濃度や時間変動を表現する上で重要になることを示している。

次に、OA生成における人為起源・自然起源発生源の相互作用を調べた。その結果、人為起源のVOC・S/IVOCの酸化過程は、人為起源VOC・S/IVOCからのOA生成だけでなく、自然起源VOC・S/IVOCからのOA生成も大幅に(約50%)増大すると見積もられた。この結果は、全球で主要な割合を占めると考えられている自然起源SOAの濃度を精度よく計算するためには、人為起源VOC・S/IVOCからの現実的なSOA生成量を(自然起源SOAの増大効果を含めて)表現できるOAモデルを用いることが重要となることを示唆している。

Controllable OAの寄与は全OAの87%と見積もられ、春季アジア域においてほとんどのOAが人為的な排出源の影響を受けて(人為起源のVOC、NO_x、OAの排出・酸化反応への影響を通して)生成したことを示唆している。自然起源SOAについてもその大部分(78%)がControllable OAであると見積もられた。Controllable OAはVOC・S/IVOCの酸化過程を考慮することによってその量が大幅に増大した($0.18\mu\text{g}/\text{m}^3$ から $1.12\mu\text{g}/\text{m}^3$ へ増大)。これらの結果は、VOC・S/IVOCの酸化過程やその人為・自然起源相互作用が、OAの気候影響を精度良く推定する上で大きな役割を果たす可能性を示している。

キーワード: エアロゾル, 有機エアロゾル, 領域3次元モデル, 人為・自然起源相互作用, 東アジア, VBS

Keywords: aerosol, organic aerosol, regional three-dimensional model, anthropogenic-biogenic interaction, East Asia, volatility basis-set

BVOCsの変動が全球大気化学場に与える影響: CHASER・VISITのオフライン結合 Impacts of BVOCs changes on global atmospheric chemistry: off-line coupling of CHASER and VISIT

須藤 健悟^{1*}; 伊藤 昭彦²
SUDO, Kengo^{1*}; ITO, Akihiko²

¹ 名古屋大学 大学院環境学研究科, ² 国立環境研究所

¹Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, ²National Institute of Environmental Studies

植物起源の揮発性有機化合物 (BVOCs) は対流圏オゾンの生成・破壊、OH ラジカル濃度 (大気酸化能) に影響し、二次有機エアロゾル (SOA) の全球生成量にも大きく寄与するため、全球規模の大気環境変動や気候変動の重要な要因の一つである。BVOCs の大気への放出は、陸域生態系プロセスに加えて、気候環境 (気温・降水量)、大気 CO₂ 濃度、および窒素沈着量などと密接に関連している。このため、BVOCs の変動とその影響を考察するには、陸域生態系と大気化学過程を結合した枠組みが必要である。本研究では、大気化学モデル CHASER (Sudo et al., 2002, 2007) と陸域生態系・微量ガス交換モデル VISIT (Ito, 2008) を用い、全球大気化学過程と陸域生態系の結合シミュレーションの構築を進めている。CHASER モデルは MIROC 地球システムモデル (MIROC-ESM-CHEM) の一貫としても開発が進められ、対流圏・成層圏化学やエアロゾルの同時オンライン計算が可能であり、SOA の化学的生成過程も考慮されている。VISIT では、陸域生態系からの CO₂、CH₄、N₂O、や各種 BVOCs の大気への放出量の推定が可能である。本発表では、VISIT で計算された BVOC 放出量のうちイソプレン (isoprene) に着目し、これまでの放出量変動が大気化学場に与える影響について CHASER を用いてオフライン的に評価した。VISIT の計算では、20 世紀前半 (1900~1950 年) から 2011 年までに、温暖化等の要因により、全球イソプレン放出量について、420 TgC a⁻¹ から、520 TgC a⁻¹ の増加 (24%) を計算している。CHASER による計算では、このイソプレン放出量変動に対して全球対流圏オゾン生成が 2% 増加し、熱帯域の上部および中部対流圏のオゾン量が 4% 前後増加することが計算された。また、北半球全域で、5-10% の OH ラジカルの減少がみられ、CO は北半球全域で 2-4 % 増加することが示された。SOA は、熱帯域を中心に対流圏全層で、30 % 以上の顕著な増加が見られた。

キーワード: 植物起源揮発性有機化合物, 化学気候モデル, 陸域生態系モデル, 二次有機エアロゾル, 大気・陸面相互作用
Keywords: biogenic VOCs, chemistry climate model, land ecosystem model, secondary organic aerosol, atmosphere-land interaction