

## ヨウ化物イオンを含む凍結した水溶液からのヨウ素分子と一酸化ヨウ素の放出 Emission of iodine molecule and iodine monoxide from frozen solutions containing iodide ion

奥村 将徳<sup>1</sup>; 薮下 彰啓<sup>1\*</sup>

OKUMURA, Masanori<sup>1</sup>; YABUSHITA, Akihiro<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 京都大学

<sup>1</sup> Kyoto University

南極においてハロゲンガスが生成・拡散する現象が確認されている。ハロゲンの中でもヨウ素原子, I, は微量ながら触媒サイクルにより対流圏オゾン濃度を減少させたり、一酸化ヨウ素, IO, が反応してできる OIO と IO が再結合反応してエアロゾルを生成したりして気候に影響を与えている。近年、ウエッデル海 (南極大陸の南極半島とクイーンモードランドに挟まれた大湾) の海氷上と氷棚近傍で地上観測が行われ、生物放出のような既往の研究のみでは説明できない高濃度の I<sub>2</sub>(g) と IO(g) が測定されている。この観測結果は、無機化学反応など別の I<sub>2</sub>(g) と IO(g) 生成源があることを示唆している。そこで、I<sub>2</sub>(g) と IO(g) の放出源の候補の一つとして気体オゾン, O<sub>3</sub>(g), とヨウ化物イオン, I<sup>-</sup>, の不均一反応に着目した。O<sub>3</sub>(g) は極域でも観測されており、また微量ながら I<sup>-</sup> も海氷に含まれている。そこで本研究では、I<sup>-</sup> を含む凍結した水溶液表面と O<sub>3</sub>(g) の反応によって氷表面から放出される I<sub>2</sub>(g) と IO(g) の計測を行った。

ガラス製二重管の内側に NaI 水溶液を入れた後、外側に冷媒を循環させて、冷媒の温度を下げることで NaI 水溶液を凍結させた。NaI 氷の状態を同じにするため、凍結させる時の冷媒の温度は毎回同じ温度に固定した。毎回同じ条件で NaI 氷を作成した後、冷媒の温度を変化させて O<sub>3</sub>(g) と反応させる目的の温度 (-1 ~ -25 °C) に設定した。O<sub>3</sub>(g) をセル内に導入し、I<sup>-</sup> との反応により生成した I<sub>2</sub>(g) と IO(g) をキャビティーリングダウン分光法を用いて測定した。用いた NaI 水溶液の濃度は 1 mM、もしくは 5 mM である。導入し続けた O<sub>3</sub>(g) 濃度は  $(0.5-4.2) \times 10^{15}$  molecules cm<sup>-3</sup> であり、生成した IO(g) と I<sub>2</sub>(g) の濃度はそれぞれ、 $\sim 10^{11}$  molecules cm<sup>-3</sup> と  $\sim 10^{14}$  molecules cm<sup>-3</sup> である。NaI 水溶液の濃度、pH、温度などを変化させて実験を行った。温度計はできるだけ氷表面付近の温度を測定するように設置した。

凍結した NaI 水溶液表面と O<sub>3</sub>(g) を反応させるとすぐに I<sub>2</sub>(g) と IO(g) が生成した。O<sub>3</sub>(g) 濃度に依存して、導入後数秒~数十秒以内に [I<sub>2</sub>(g)], [IO(g)] は最大となりその後徐々に減少した。-1 °C において、凍結した NaI 水溶液から放出された [I<sub>2</sub>(g)], [IO(g)] の最大値は、凍結していない過冷却状態の NaI 水溶液と比較して数倍以上になった。これは I<sup>-</sup> を含む水溶液が凍結する際に、I<sup>-</sup> が氷表面に濃縮したためである。このようなことは実際の海氷でも起こりうると考えられる。また、[I<sub>2</sub>(g)] 放出量は pH4 以下で増加し、温度を下げるに従って減少した。本研究により、0 °C 以下の氷表面上でも O<sub>3</sub>(g) による I<sup>-</sup> の酸化が起これ、IO(g) と I<sub>2</sub>(g) が気相中に放出されることが明らかになった。

キーワード: ヨウ素, 一酸化ヨウ素, 氷, オゾン, 不均一反応, キャビティーリングダウン分光法

Keywords: iodine, iodine monoxide, ice, ozone, heterogeneous reaction, cavity ring-down spectroscopy

## エアロゾル中のイオウやカルシウムの化学種同定：地球冷却効果との関連や粒子表面での反応過程 Speciation of S and Ca species in aerosols with its relations to global cooling effects and processes of chemical reaction

宮本 千尋<sup>1\*</sup>; 山川 庸芝明<sup>2</sup>; 坂田 昂平<sup>2</sup>; 宮原 彩<sup>2</sup>; 坂口 綾<sup>2</sup>; 菅 大暉<sup>2</sup>; 武市 泰男<sup>3</sup>; 小野 寛太<sup>3</sup>; 高橋 嘉夫<sup>2</sup>  
MIYAMOTO, Chihiro<sup>1\*</sup>; YAMAKAWA, Yoshiaki<sup>2</sup>; SAKATA, Kohei<sup>2</sup>; MIYAHARA, Aya<sup>2</sup>; SAKAGUCHI, Aya<sup>2</sup>; SUGA, Hiroki<sup>2</sup>; TAKEICHI, Yasuo<sup>3</sup>; ONO, Kanta<sup>3</sup>; TAKAHASHI, Yoshio<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 広島大学理学部, <sup>2</sup> 広島大学院理学研究科, <sup>3</sup> Photon Factory, KEK

<sup>1</sup> Faculty of Science, Hiroshima University, <sup>2</sup> Graduate School of Science, Hiroshima University, <sup>3</sup> Photon Factory, KEK

Speciation of particles in aerosols is necessary to interpret what effects each species in the aerosols can have on environment. For example, global cooling effect by aerosols influences earth's climatic change (IPCC, 2007). In particular, sulfate aerosols are known to cool the earth by forming cloud condensation nuclei (CCN) because of their high hygroscopicity, which induces indirect cooling effect. Because the hygroscopicity differs depending on the species, sulfate speciation in aerosols is important for the determination of the magnitude of the indirect cooling effect.

In this study, major ion concentrations in aerosol samples were measured by ion-chromatography. In addition, chemical species of calcium and sulfur in the each aerosol sample were determined using X-ray absorption near-edge structure (XANES) measured at BL-9A in Photon Factory, KEK. The speciation analyses can have some implications on the influence on the environment and the processes of chemical reaction of aerosols collected during several periods, such as (a) dust (Kosa) period (March 4-9, 2013), (b) the period with high PM2.5 concentration (Jan. 31-Feb. 1, 2013), and (c) the periods before and after (a) and (b).

Major ion concentration data showed that  $\text{Ca}^{2+}$ , which is originated from soil, and  $\text{NO}_3^-$  and  $\text{SO}_4^{2-}$ , which were from human activities, increased in the period (a) compared with those in the periods before and after the period (a). On the other hand,  $\text{SO}_4^{2-}$  and  $\text{NH}_4^+$ , which were emitted from human activities, increased in the period (b). In the period (a), it is considered that species originated from acids such as sulfate and nitrate which were incorporated into the particles increased in the samples whose aerodynamic diameter is over 1.0  $\mu\text{m}$ , because they have reacted with  $\text{CaCO}_3$  which was increased by Kosa event. In addition, from the fitting of XANES spectra, it was found that gypsum with low hygroscopicity were the main sulfur species in the period (a), whereas  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ ,  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , and hydrated sulfate with high hygroscopicity were main sulfur species in the period (b). Therefore, it is considered that when the concentration of PM2.5 increases, the indirect cooling effect can be large due to the large fraction of  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ ,  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , and hydrated sulfate. On the other hand, the indirect cooling effect by sulfate aerosols can be smaller during the dust period due to the formation of non-hygroscopic gypsum by high amount of calcite in the atmosphere.

Using the results of calcium and sulfur speciation both in the bulk and at the surface by fluorescence and conversion-electron yield detection, respectively, in the XANES analyses, we can discuss how chemical reactions occur at the surface of aerosol particles in each period. The abundance ratios of gypsum,  $\text{CaCO}_3$ , and  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  were different at the surface and the bulk. As a result, it was concluded that calcium species changes from gypsum,  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ , to  $\text{CaCO}_3$  from the surface to the core of the calcite particle. This results showed that (i) sulfuric acid from the atmosphere forms insoluble gypsum at the surface of calcite, (ii)  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ , formed as a result of the reaction of nitric acid and calcite, exists in the middle part, and (iii) unreacted  $\text{CaCO}_3$  remains in the core of the particle.

キーワード: エアロゾル, XANES, 硫酸塩化学種, 冷却効果

Keywords: aerosol, XANES, sulfate, global cooling effect

## 富士山頂、東京神楽坂、北太平洋で採取された鉄含有粒子の性状と鉱物粒子の構造 Properties of Fe-containing particles and structure of mineral particles in the mountain, urban, and marine atmosphere

三木 裕介<sup>1\*</sup>; 上田 紗也子<sup>2</sup>; 三浦 和彦<sup>1</sup>; 加藤 大樹<sup>1</sup>; 古谷 浩志<sup>3</sup>; 植松 光夫<sup>3</sup>

MIKI, Yusuke<sup>1\*</sup>; UEDA, Sayako<sup>2</sup>; MIURA, Kazuhiko<sup>1</sup>; KATO, Hiroki<sup>1</sup>; FURUTANI, Hiroshi<sup>3</sup>; UEMATSU, Mitsuo<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 東京理科大学, <sup>2</sup> 名古屋大学, <sup>3</sup> 東京大学

<sup>1</sup>Tokyo University of Science, <sup>2</sup>Nagoya University, <sup>3</sup>University of Tokyo

エアロゾル粒子は大気を介した物質輸送などを通じて、地球規模の物質循環や気候システムにおいて重要な役割を担っている。栄養塩が豊富に含まれていても生物生産の指標であるクロロフィル濃度が低い (HNLC) 領域では、鉄の欠乏により植物プランクトンの生育・増殖が制限されることが知られている。こうした海域では大陸からのエアロゾル粒子の輸送・沈着が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。鉄含有粒子の性状と輸送過程での変質について調べるために、富士山頂、東京神楽坂および学術研究船白鳳丸の KH-12-1(EqPOS) の Leg2 航海においてエアロゾル粒子の採取を行った。低圧カスケードインパクターに小型ポンプを付けたものを風上に向けて粒子の捕集をした。透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて、水透析法とエネルギー分散型 X 線分析器 (EDX) に基づく個別粒子の分析を行った。5 日間の後方流跡線、光散乱式粒子計数器 (OPC) から得られたエアロゾル個数粒径分布および電子顕微鏡での形態観察・分析結果を基に、大陸からの長距離輸送イベントサンプルについて考察した。

鉄の主な供給源としては、地殻由来の鉱物や工業起源の人為起源粒子などが挙げられ、これらは水に難溶な化合物であることが多い。本研究では、水透析により水溶性物質を溶かし出し、残った非水溶性物質中の鉄の有無を調べた。いずれのサンプルでも、非水溶性物質は水溶性物質と内部混合した状態 (混合粒子) で存在していたものがほとんどであった。混合粒子の水溶性物質の体積割合は、他のサンプルに比べ海洋のサンプルで高い傾向が見られたことから、海洋へと輸送される過程で水溶性物質と混合したことが示唆される。鉄含有粒子についても同様な傾向が見られた。

また、粒子の存在状態を明らかにするために、収束イオンビーム (FIB) 法により鉱物粒子の構造を決定した。Ti プレート上に採取した 5  $\mu\text{m}$  以上の粒子を FIB-SIM を用いて 200 nm 程度に薄片化し、粒子の断面に対して制限視野電子線回折を行った。回折像と EDX の結果から粒子構造を決定した。粒子表面かつ  $\text{CaCO}_3$  に接する部分で、 $\text{CaCl}_2$  の存在が確認されたことから、 $\text{CO}_3^{2-}$  が  $\text{Cl}^-$  に置換されて  $\text{CaCl}_2$  が生成した ( $\text{CaCO}_3 + 2\text{HCl} \rightarrow \text{CaCl}_2 + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$ ) 可能性が示唆された。粒子内部にはわずかながら鉄が含まれていた。難溶性の  $\text{CaCO}_3$  から易溶性の  $\text{CaCl}_2$  に変わることによって、雲核・氷核能力や粒子内部に存在する鉄の溶けだしやすさが変わる可能性がある。

キーワード: エアロゾル, 鉄, 水溶性物質, 非水溶性物質, 長距離輸送

Keywords: aerosol, Fe, water-soluble materials, water-insoluble materials, long-range transportation

## 鉱物粒子の給源に関する長崎県大村市の大気中鉛の起源 Source of atmospheric lead in Omura City, west Japan, tied to the source of mineral particles

齋藤 有<sup>1\*</sup>; 梅澤 有<sup>2</sup>; 河本 和明<sup>2</sup>; 谷水 雅治<sup>3</sup>; 石川 剛志<sup>3</sup>

SAITOH, Yu<sup>1\*</sup>; UMEZAWA, Yu<sup>2</sup>; KAWAMOTO, Kazuaki<sup>2</sup>; TANIMIZU, Masaharu<sup>3</sup>; ISHIKAWA, Tsuyoshi<sup>3</sup>

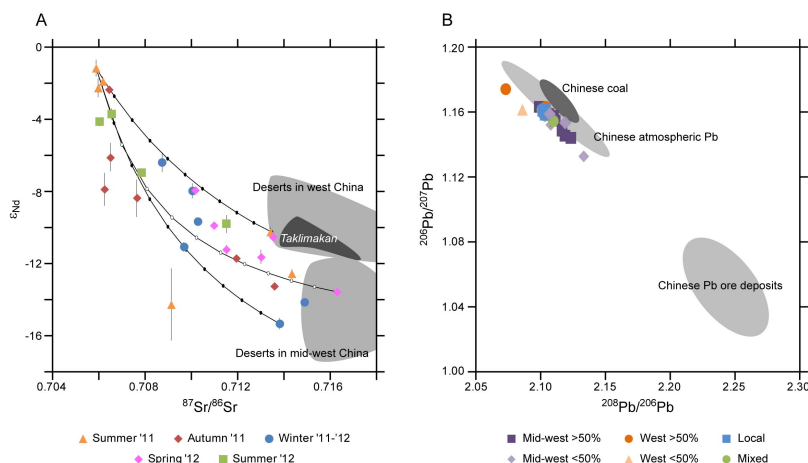
<sup>1</sup> 高知大学海洋コア総合研究センター, <sup>2</sup> 長崎大学大学院 水産・環境科学総合研究科, <sup>3</sup> 海洋研究開発機構高知コア研究所  
<sup>1</sup>Center for Advanced Marine Core Research, Kochi University, <sup>2</sup>Graduate School of Fisheries Science and Environmental Studies, Nagasaki University, <sup>3</sup>Kochi Institute for Core Sample Research, JAMSTEC

Lead is one of the major environmental pollutants, which seriously harms human body. Atmospheric lead concentration has been suppressed in Japan after the forbiddance of leaded gasoline in 1970s. However, the cross-border air pollution is getting unable to disregard with industrial development in neighboring countries. Identifying the source of aerosol particles is essential in painting a precise picture of the cross-border air pollution. The northern part of the Kyushu Island is the most affected area of the cross-border pollution in Japan due to closeness to the continent. We conducted isotopic analysis of aerosol particle samples corrected with high temporal resolution, once per a few days, from June 2011 to August 2012 in Omura City in the north Kyushu. Pb isotope ratios of 1M-HCl soluble component ("leachate") of the corrected particles indicate the direct source of anthropogenic lead, while Sr-Nd isotope ratios of the residual mineral component digested by concentrated HF-HNO<sub>3</sub> ("silicate") indicate the source area of the mineral particles. High resolution sampling allowed us to distinguish the sources much more sensitively than commonly adopted monthly order sampling.

Sr-Nd isotope ratios of silicates indicate that the main source area of mineral particles changes seasonally. They have local origin in summer, while they are derived from deserts in mid-west China in fall and winter, and those in west China in spring (Figure A). Pb isotope ratios of leachates are distinct when the source of mineral particles is the mid-west China (Figure B). The values suggest the influence of the Chinese lead ore deposits. On the other hand, Pb isotope ratios of leachates are indistinguishable between samples of local origin and those originated from west China. An additional character of samples of west China origin is high amount of Pb in leachate relative to that of mineral component. Anthropogenic lead may be easier to be entrained to wind when the mineral particles comes from mid-west China because the wind trajectory should be much lower in altitude than when particles come from further distant west China. Cross-border atmospheric Pb pollution is suggested more serious in fall and winter when wind trajectory is low than in spring when the westerly transports vast amount of mineral particles known as "Kosa" from the deserts in west China.

キーワード: ダスト, 人為起源鉛, PM10, ストロニウム同位体, ネオジム同位体, 鉛同位体

Keywords: dust, anthropogenic lead, PM10, Sr isotope ratio, Nd isotope ratio, Pb isotope ratio



## 黄砂粒子の組成と混合状態の高度による違い Difference of composition and mixed state of dust particles by height

上口 友輔<sup>1\*</sup>; 岩本 洋子<sup>2</sup>; 岩田 歩<sup>3</sup>; 原 和崇<sup>2</sup>; 木ノ内 健人<sup>3</sup>; 牧 輝弥<sup>1</sup>; 小林 史尚<sup>1</sup>; 柿川 真紀子<sup>2</sup>; 松木 篤<sup>2</sup>  
KAMIGUCHI, Yusuke<sup>1\*</sup>; IWAMOTO, Yoko<sup>2</sup>; IWATA, Ayumi<sup>3</sup>; HARA, Kazutaka<sup>2</sup>; KINOUCHI, Kento<sup>3</sup>; MAKI, Teruya<sup>1</sup>; KOBAYASHI, Fumihisa<sup>1</sup>; KAKIKAWA, Makiko<sup>2</sup>; MATSUKI, Atsusi<sup>2</sup>

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

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

アジア内陸部を発生源とする黄砂粒子の大気を介した長距離輸送と、それらの変質に関して、これまでも多くの研究がなされてきた。黄砂粒子の変質によって、粒子本来の光散乱特性や雲凝結核能が変化する可能性が指摘されている。黄砂の変質を引き起こす 3 つの要素として、黄砂粒子を構成している鉱物種、周囲の相対湿度と酸性ガス濃度が挙げられる。これらの要素と黄砂が運ばれてくる高度には密接な関係があると考えられるが、同一の黄砂現象において、自由対流圏と接地混合層の両方で直接黄砂粒子を採集し、個別粒子レベルで形状と化学組成を分析・比較した報告例はない。

本研究では、上空での試料の採集にヘリコプターを使用した。エアロゾル粒子は 2013 年 3 月 19 日に羽咋市上空 (36.9° N, 136.7° E) でインパクターによって直接採集された。この日は、気象庁で西日本を中心に黄砂が観測された。得られた試料について、SEM-EDX を用いた個別粒子分析を行った結果、自由対流圏ではほとんど形態上変質した黄砂粒子は見つからなかった一方、接地混合層では非常に多くの黄砂粒子が半液滴状に変質していた。変質した黄砂からは Ca, Mg が高割合で検出された。また、形態上変質していない黄砂粒子を自由対流圏と接地混合層で比較したところ、接地混合層の方が S の含有割合が高かった。

自由対流圏を通過する黄砂粒子は、酸性ガス及び、水蒸気の流入が温度逆転層によって制限されることで、接地混合層に比べて変質を受けることなく観測値上空まで長距離輸送されたものと考えられる。

キーワード: 鉱物粒子, 自由対流圏, 接地混合層, SEM-EDX

Keywords: mineral dust, free troposphere, planetary boundary layer, SEM-EDX

屋久島西部森林域における燃料電池と太陽電池を用いた大気採取システムの実証試験結果—PM2.5 の評価  
Demonstration test of atmosphere sampling system using combination of solar and fuel battery at Western part of Yakushim

永淵 修<sup>1\*</sup>; 横田 久里子<sup>2</sup>; 尾坂 兼一<sup>1</sup>; 中澤 暦<sup>1</sup>; 手塚 賢至<sup>3</sup>  
NAGAFUCHI, Osamu<sup>1\*</sup>; YOKOTA, Kuriko<sup>2</sup>; OSAKA, Kenichi<sup>1</sup>; NAKAZAWA, Koyomi<sup>1</sup>; TEZUKA, Kenshi<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 滋賀県立大学, <sup>2</sup> 豊橋技術科学大学, <sup>3</sup> YOCA

<sup>1</sup> the University of Shiga prefecture, <sup>2</sup> Toyohashi University of Technology, <sup>3</sup> YOCA

We have measured PM 2.5 using solar panel and fuel cell system at Southern area of Yakushima island Japan.

In order to clarify the long-range transport of atmospheric pollutants in the East Asian regions, we have challenged the continuous observation at a mountainous area without the commercial power. Although, we are considered to be better the system with a solar battery, the pump was sometimes stopped for the brownout cause by the lack of insolation. Thereupon, we make an attempt the continuous observation of atmospheric pollutants using the combination of the solar and fuel battery. And thus we achieve the continuous observation of the atmospheric pollutants. Consequently, we will report new monitoring system.

## ブラックカーボン含有粒子の吸湿性を測定する新手法の開発 Development of a method to measure the hygroscopicity of black carbon-containing particles

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>; 近藤 豊<sup>1</sup>  
OHATA, Sho<sup>1\*</sup>; MOTOKI, Nobuhiro<sup>1</sup>; SCHWARZ, Joshua P.<sup>2</sup>; KONDO, Yutaka<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院理学系研究科, <sup>2</sup> アメリカ海洋大気庁

<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

化石燃料やバイオマスの燃焼により放出されたブラックカーボン (BC) 粒子は、大気中を輸送される過程で、ガス成分の凝縮や他のエアロゾルとの凝集により被覆を持つようになる。BC は元来疎水性であるため、BC 含有粒子の吸湿性は被覆成分の組成と被覆量により支配される。実大気における BC 含有粒子の吸湿性の測定は、BC 含有粒子の雲凝結核特性や光学特性を知る上で重要であるが、先行研究が極めて限られている (McMeeking et al. 2011; Liu et al. 2013)。そこで本研究では、既存の BC 分析装置 Single Particle Soot Photometer (SP2) を改造し、相対湿度制御機能を追加した humidified-SP2 (hSP2) の開発を行った。hSP2 は、レーザー内に導入された個々の BC 含有粒子の発する白熱光と散乱光を検出し、任意の相対湿度下における BC 質量と被覆量をオンラインで測定する。エアロゾル質量分級装置 (APM) や標準の SP2 と、新たに開発した hSP2 を組み合わせることにより、BC 含有粒子の吸湿成長率 (乾燥粒径に対する吸湿後の粒径の比) や吸湿パラメータ  $\kappa$  を BC 含有量の関数として高時間分解能で測定することができる。

hSP2 の評価を行うため、実験室内で発生させた BC と硫酸アンモニウムの内部混合粒子を APM により乾燥質量 7.4 fg (体積等価粒径約 200 nm) で分級し、分級した粒子を hSP2 により相対湿度 60-90% の範囲で測定した。この APM と hSP2 を直列に接続する手法 (APM-hSP2 法) では、APM により乾燥粒子の質量、hSP2 により BC 質量と吸湿成長後の被覆量、また乾燥粒子質量と BC 質量の差から乾燥時の被覆量が求まる。hSP2 のデータ解析には、BC 含有粒子の形態としてコアシェルモデルを仮定し、被覆成分の屈折率が吸湿成長により減少することを考慮したアルゴリズムを用いた。APM-hSP2 法による吸湿成長率の測定値は  $\kappa$ -Köhler 理論による理論値と測定誤差内で一致し、hSP2 を用いた新しい測定法が実大気観測に適用可能であることが確認された。

キーワード: ブラックカーボン, 吸湿性

Keywords: black carbon, hygroscopicity

## An Empirical Correction Factor for Filter-based Photo-absorption Black Carbon Measurements

IRWIN, Martin<sup>1\*</sup> ; KONDO, Yutaka<sup>1</sup> ; MOTOKI, Nobuhiro<sup>1</sup>  
IRWIN, Martin<sup>1\*</sup> ; KONDO, Yutaka<sup>1</sup> ; MOTOKI, Nobuhiro<sup>1</sup>

<sup>1</sup>The University of Tokyo

<sup>1</sup>The University of Tokyo

Long-term observations of black carbon (BC) aerosol provide important information regarding seasonal variations, emission source attribution, and regional distribution & transport. Filter-based BC measurement techniques such as the Continuous Soot Monitoring System (COSMOS) are particularly well suited to this application, due to their relative robustness and reliability. However, caution is required when determining the threshold transmittance,  $Tr_{thresh}$  (proportional to the time interval between filter changes), in order to ensure that acceptable measurement accuracy is maintained throughout the sampling period. We present a new, empirically derived transmittance-dependent correction factor used to interpret the response characteristics of filter-based aerosol absorption measurements performed by COSMOS. Simultaneous measurements of ambient BC aerosol mass ( $M_{BC}$ ) were conducted in Tokyo, Japan, using two identical COSMOS instruments operated with different threshold transmittance,  $Tr_{thresh}$ , values, of 0.95 and 0.6. The derived values for  $M_{BC}$  were consistently underestimated by the COSMOS operating at lower  $Tr_{thresh}$ , as a function of decreasing filter transmittance. The 1-hour averaged values of  $M_{BC}$  were underestimated by around 10 %, incorporating measurements across the entire range of filter transmittance (1 - 0.6), with a maximum underestimation at around 17 % immediately preceding filter advancement (i.e.  $Tr = \sim 0.60$ ), and a minimum of  $\sim 1$  % immediately following filter advancement (i.e.  $Tr = \sim 1$ ). An empirical second-order correction factor was derived from these ambient measurements, and was applied to  $M_{BC}$  as a function of filter transmittance, resolving the instruments to within 2 %.

Furthermore, the operational performance of COSMOS was tested for a new quartz fibre filter (HEPA). A comparison of different filter types demonstrated a systematic overestimation of  $M_{BC}$  of around 6 - 8 % when using HEPA filters. A sensitivity study of a radiative transfer model indicated that this enhanced absorption was primarily a result of the increased thickness of the HEPA filter.

キーワード: aerosol, black carbon, filter-based measurements, absorption  
Keywords: aerosol, black carbon, filter-based measurements, absorption

## 西部北太平洋及びベーリング海上における黒色炭素エアロゾルの船上観測 Ship-borne measurements of black carbon aerosols over northwestern Pacific and Bering Sea

宮川 拓真<sup>1\*</sup>; 金谷 有剛<sup>1</sup>; 竹谷 文一<sup>1</sup>; 潘 小楽<sup>1</sup>; 駒崎 雄一<sup>1</sup>

MIYAKAWA, Takuma<sup>1\*</sup>; KANAYA, Yugo<sup>1</sup>; TAKETANI, Fumikazu<sup>1</sup>; PAN, Xiaole<sup>1</sup>; KOMAZAKI, Yuichi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 海洋研究開発機構

<sup>1</sup> Japan Agency Marine-Earth Science and Technology

大気中の黒色炭素エアロゾル (Black carbon; BC) は、太陽光を効果的に吸収し、また雲凝結核としても機能することから、地球の放射収支に多大な影響を与えており、大気化学研究において、最重要物質の一つであると考えられている。[1] 低濃度であることが予想される外洋上での BC 濃度の測定例は測定法の限界から限られていた。近年、レーザー誘起白熱法に基づく BC 単一粒子計測器 (SP2, Droplet Measurement, Inc.) の開発により、高精度な BC 濃度の計測が行われている。[2] 本研究では、2013 年 8 月に実施された研究船「みらい」の研究航海 MR13-05 (東経 141-194 度、北緯 41-58 度) で SP2 を用いて得られた外洋上での BC 濃度・混合状態について発表する。

日本近海 (東経 145 度以東) では陸域からの空気塊の輸送により、BC 質量濃度は  $\sim 200 \text{ ng m}^{-3}$  まで上昇したが、西部太平洋・ベーリング海上では  $< \sim 40 \text{ ng m}^{-3}$  と低濃度であった。SP2 で得られる信号波形を基に BC 粒径別混合状態を「薄く被覆した/被覆なし」、「厚く被覆あり」、「非コアシェル型」の 3 種に分類した。薄く被覆した/被覆なしの BC 粒子は、西部太平洋・ベーリング海上では  $\sim 13\%$  であった。外洋上では厚く被覆された BC 粒子が支配的 ( $\sim 80\%$ ) であった。非コアシェル型 BC は量的には少ないが外洋上でも優位に存在していることがわかった。発表ではより詳細な解析結果を示す。

### References

[1] Bond et al., J. Geophys. Res., 118, 5380-5552, doi:10.1002/jgrd.50171, 2013.

[2] Schwarz et al., Geophys. Res. Lett., 37, L18812, doi:10.1029/2010GL044372, 2010.

キーワード: ブラックカーボン, 混合状態, レーザー誘起白熱法, 船舶観測, 海洋大気

Keywords: Black carbon, Mixing state, Laser Induced Incandescence, Ship-borne measurement, Marine atmosphere

## エアロゾル質量分析計で測定される二次有機エアロゾルの質量スペクトルに占める高質量数イオン信号の比率 High-m/z ion signal to total mass signal ratios measured for secondary organic aerosol using aerosol mass spectrometer

佐藤 圭<sup>1\*</sup>; 藤谷 雄二<sup>1</sup>; 田邊 潔<sup>1</sup>; 森野 悠<sup>1</sup>; 伏見 暁洋<sup>1</sup>; 高見 昭憲<sup>1</sup>; 今村 隆史<sup>1</sup>; 疋田 利秀<sup>2</sup>; 下野 彰夫<sup>2</sup>  
SATO, Kei<sup>1\*</sup>; FUJITANI, Yuji<sup>1</sup>; TANABE, Kiyoshi<sup>1</sup>; MORINO, Yu<sup>1</sup>; FUSHIMI, Akihiro<sup>1</sup>; TAKAMI, Akinori<sup>1</sup>; IMAMURA, Takashi<sup>1</sup>; HIKIDA, Toshihide<sup>2</sup>; SHIMONO, Akio<sup>2</sup>

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

<sup>1</sup>NIES, <sup>2</sup>Shoreline Science Inc.

揮発性基底関数 (VBS) のさらなる精度向上のため、オリゴマー生成を考慮したモデルが検討されるようになった<sup>1)</sup>。オリゴマー化の速度や SOA の質量スペクトルに高質量数の成分が占める割合を調べるため、スモッグチャンバー実験で生成した SOA をエアロゾル質量分析計 (AMS) によって分析した。 $\alpha$ -ピネン、イソプレン、トルエン、1,3,5-トリメチルベンゼン (TMB) の光酸化を  $\text{NO}_x$  存在下で調べた。 $\alpha$ -ピネンおよびイソプレンのオゾン分解も調べた。AMS の捕集管にステンレス管を用いた。AMS によって  $m/z = 10 \sim 675$  の領域で測定した有機エアロゾル (OA) の質量スペクトルを 7 つの質量数領域に分け各領域の全信号強度の時間変化を調べた。いずれの実験でも質量数 500 以下の領域に OA の生成に伴う信号の増加が見られた。オリゴマーは核形成から 1 時間以内に生成した。オリゴマーの生成後には、全 OA の信号に占める各質量領域の信号の寄与率の時間変化はなかった。次に、OA の質量スペクトルのうち  $m_1$  よりも高い質量数の信号が全 OA の信号に占める割合 ( $\phi$ ) を評価した:

$$\phi = \text{OA} (m/z > m_1) / \text{OA}(\text{total})$$
$$m_1 = n m_C (\text{OM/OC})$$

ここで  $n$  は SOA 前駆物質の炭素数、 $m_C$  は炭素の原子量、OM/OC は AMS で測定された有機物有機炭素比を表す。 $\alpha$ -ピネン、イソプレン、トルエン、および TMB の  $m_1$  は、それぞれ 217、147、180、および 204 と決定された。 $m_1$  よりも高い質量数ではモノマー由来の信号の寄与が小さいとみなした。AMS の電子イオン化によって測定される信号は有機物の親イオンによる信号だけでなく分解イオンによる信号も含む。 $\phi$  は SOA に占めるオリゴマーの比率の指標であり、オリゴマーの比率の絶対値でないことに注意が必要である。同じ前駆物質から生成した SOA の  $\phi$  は粒子濃度が増加するほど減少した (Fig. 1)。この結果は高濃度であるほどオリゴマーを形成しにくいことを示している。 $10 \sim 100 \mu\text{g m}^{-3}$  の濃度領域で比較すると  $\phi$  はトルエン由来 SOA の場合に一番高く、 $\alpha$ -ピネン由来 SOA の場合に一番低かった。酸化方法 (光酸化またはオゾン酸化) による違いはなかった。

【謝辞】本研究は文部科学省の科学研究費補助金 (No. 25340021, FY2013-2015) および国立環境研究所の分野横断型研究 (No. 1214AO001, FY2012-2014) によって支援された。

【参考文献】<sup>1)</sup> Trump and Donahue, Oligomer formation within secondary organic aerosol: equilibrium and dynamic considerations. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **13**, 24605-24634 (2013).

キーワード: 二次有機エアロゾル, オリゴマー生成, エアロゾル質量分析計, エアロゾル質量濃度, 化学構造

Keywords: secondary organic aerosol, oligomerizations, aerosol mass spectrometer, aerosol mass loading, chemical structure

AAS22-P10

会場:3 階ポスター会場

時間:5 月 1 日 18:15-19:30

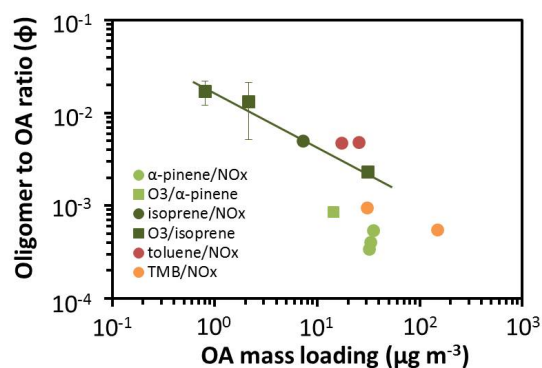


Fig. 1. Effects of OA mass loading on the oligomer to OA signal ratio ( $\phi$ ).

## 航空機観測による東アジアにおけるエアロゾル粒径分布の支配要因の解明 Controlling factors of aerosol size distribution over East Asia

橋岡 秀彬<sup>1\*</sup>; 芝野 佑樹<sup>1</sup>; 茂木 信宏<sup>1</sup>; 北 和之<sup>2</sup>; 松井 仁志<sup>3</sup>; 小池 真<sup>1</sup>; 近藤 豊<sup>1</sup>  
HASHIOKA, Hideaki<sup>1\*</sup>; SHIBANO, Yuki<sup>1</sup>; MOTEKI, Nobuhiro<sup>1</sup>; KITA, Kazuyuki<sup>2</sup>; MATSUI, Hitoshi<sup>3</sup>; KOIKE, Makoto<sup>1</sup>  
; KONDO, Yutaka<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> 茨城大学理学部, <sup>3</sup> 海洋研究開発機構

<sup>1</sup>Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, University of Tokyo, Japan, <sup>2</sup>Faculty of Science, Ibaraki University, Mito, Japan, <sup>3</sup>Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, Tokyo, Japan

エアロゾルは地球気候への直接的・間接的効果が知られている。温室効果ガスの代表例として知られる二酸化炭素の放射強制力の見積もりに比べ、エアロゾルや、エアロゾルによって生じる雲の変化についての見積もりは現在も極めて不確定性が大きなものである。直接・間接効果共にエアロゾル粒子の大きさが強く影響しており、気候への影響の不確定性の重要な一因であるため、その粒径分布を調べる事は重要である。

エアロゾルは局在する物質であり、空間的分布は、エアロゾルの発生・輸送・湿性除去といった過程に支配される。粒径分布は、前述の過程の他、新粒子生成や、凝集等でも変化を受ける。よってエアロゾルの実態把握においては、リアルタイム観測と、エアロゾルを含む空気塊が経た過程を踏まえた解析の双方が必要となるが、過去の観測において過程を踏まえ、必要な粒径範囲を十分な時間解像度により分析した事例はない。本研究では航空機観測において新たに超高感度エアロゾル測定機 (Ultra High Sensitivity Aerosol Spectrometer: UHSAS) を導入し、東アジア上空における粒径分布の取得と、特に湿性除去プロセスを考慮した解析を試みた。

UHSAS は個々のエアロゾルの散乱光を効率的に集め、感度の異なる二種類のセンサーを用いることで、従来よりも幅広い粒径測定範囲 (70 - 1500 nm) を実現した光散乱エアロゾル測定装置である。航空機観測に対応するため、UHSAS のソフト・ハード両面において改良を行った。航空機観測での気圧変化に対応する為、内部の流量制御システムを整備した。またエアロゾルのレーザー光散乱による信号波形をすべて保存し、ノイズとシグナルの判別を行うシステムを構築した。加えて、光学系の集光立体角を、偏光状態の測定と粒径既知屈折率既知の粒子を導入することで正確に推定した。この推定の結果、70 nm - 1500nm に対して粒径と信号値が 1 対 1 対応する事も確認した。こうして、個々の粒子に基づくエアロゾルの数濃度と粒径分布を、高時間分解能かつ信頼性の高いデータとして取得・解析できるシステムを確立した。なお本システムにおいては、粒径はエアロゾル粒子が屈折率 1.52 であり球形であるという仮定で算出される。

UHSAS を搭載した観測キャンペーン A-FORCE2013W が 2013 年 2 月下旬から 3 月上旬に行われた。航空機外部のインレットから大気を採取し、各種測定器に導入した。この観測において UHSAS により得られた測定データは他の観測機器と一貫性があった。

この観測において測定された粒径分布は、高度上昇に伴い粒径が小粒径側にシフトする傾向が見られた。次に、湿性除去の指標である Black Carbon (BC) の輸送効率 (TE: Transport Efficiency) を BC 質量濃度と CO 濃度から算出したところ、高度上昇に伴い湿性除去をより強く受ける傾向が観測された。また、この湿性除去の指標と粒径分布の関係も、湿性除去を受けるほど粒径分布が小粒径側にシフトする傾向にあった。

高度と湿性除去のどちらが粒径分布に対して支配的な要因であるかを判断する為、各高度における粒径分布を TE ごとの値により区分したところ、粒径分布の傾向はどの高度においても湿性除去の度合いに依存しており、かつ同一 TE の区分において粒径分布の形状はよく一致していた。この結果は粒径分布の高度依存性のメカニズムは湿性除去であることを示唆するものであり、かつ湿性除去がエアロゾルの粒径に依存することを初めて観測的に示したものである。

UHSAS により初めて観測された粒径分布の動態は、直接・間接効果双方の定量的な理解にとって重要なものである。

キーワード: エアロゾル, 粒径分布, 湿性除去, ブラックカーボン, 輸送効率, UHSAS

Keywords: aerosol, size distribution, wet removal process, black carbon, transport efficiency, UHSAS

## 都市郊外域の森林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 distribution in small forest within a western suburb of Tokyo

矢吹 正教<sup>1\*</sup>; 高橋 けんし<sup>1</sup>; 津田 敏隆<sup>1</sup>; 松田 和秀<sup>2</sup>

YABUKI, Masanori<sup>1\*</sup>; TAKAHASHI, Kenshi<sup>1</sup>; TSUDA, Toshitaka<sup>1</sup>; MATSUDA, Kazuhide<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 京都大学生存圏研究所, <sup>2</sup> 東京農工大学

<sup>1</sup>Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University, <sup>2</sup>Tokyo University of Agriculture and Technology

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）、および、それらが大気中で化学反応を起こして生成される物質は、太陽放射の吸収・散乱や、雲凝結核としての働きなどを通じて、グローバルな気候に影響を及ぼしていると考えられている。森林は、これら微量物質の発生源および消失源として重要である。森林樹冠内外を含む大気境界層における大気微量成分の時空間変動は、二次粒子の生成などの化学過程のほか、地形等の環境要因による複雑な拡散・輸送過程が関わっている。

本研究では、2013 年 7 月 27 日から 8 月 3 日にかけて東京農工大学フィールドミュージアム（FM）多摩丘陵で実施した、エアロゾル粒径分布の鉛直プロファイル観測について報告する。FM 多摩丘陵は、都市圏にある小規模な森林集水域という特徴があり、人為起源物質と植物起源物質が入り交じる興味深いサイトである。観測では、森林内の高度 30 m の研究用タワーをプラットフォームとし、合計 5 つの高度に計測点を設けて、樹冠内と森林上空のエアロゾル粒径分布の高度変化を連続で捉えることを試みた。講演では、観測システムの概要や、樹冠内外におけるナノ粒子およびサブミクロン粒子の個数濃度変動の特徴について紹介する。

キーワード: エアロゾル, 粒径分布, 鉛直構造, 樹冠

Keywords: Aerosol, Size distribution, Vertical distribution, Forest canopy

## 西部太平洋における蛍光性エアロゾル粒子の測定 Measurement of fluorescent particles over the western Pacific

竹谷 文一<sup>1\*</sup>; 潘 小楽<sup>1</sup>; 宮川 拓真<sup>1</sup>; 駒崎 雄一<sup>1</sup>; 金谷 有剛<sup>1</sup>; 松本 和彦<sup>1</sup>; 本多 牧生<sup>1</sup>  
TAKETANI, Fumikazu<sup>1\*</sup>; PAN, Xiaole<sup>1</sup>; MIYAKAWA, Takuma<sup>1</sup>; KOMAZAKI, Yuichi<sup>1</sup>; KANAYA, Yugo<sup>1</sup>; MATSUMOTO, Kazuhiko<sup>1</sup>; HONDA, Makio<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 海洋研究開発機構

<sup>1</sup>JAMSTEC

Recently, fluorescence from suspended single particles has been employed to identify and classify the certain types of organic/biological particles. Bioaerosols, including bacteria and other particles derived from living organisms, may explain large unidentified fraction of organic aerosols and play important roles in the cloud formation. In this study, we employed a single-particle fluorescence sensor, WIBS-4, to understand the abundance of bioaerosol particles over the western Pacific.

We conducted ambient air measurements over the western Pacific at July 2011, 2012, and 2013 by R/V MIRAI cruise. In order to avoid analyzing the particles emitted by ship's funnel, we eliminated the data by the wind direction. In the cruises, the bioaerosol particles based on fluorescent pattern were in the range of 0.1-2 particles/cc over the western Pacific. In the presentation, we will compare ocean surface chlorophyll data with detected fluorescence particles.

キーワード: エアロゾル粒子, 蛍光

Keywords: aerosol particles, fluorescence

## 黒潮暖水域の下層雲への影響：平滑化海面水温を用いた数値実験 Impact of the Kuroshio warm SST on low altitude clouds: Numerical model simulation with smoothed SST

浅野 匠彦<sup>1\*</sup>; 小池 真<sup>1</sup>; 松井 仁志<sup>2</sup>; 中村 尚<sup>3</sup>

ASANO, Naruhiko<sup>1\*</sup>; KOIKE, Makoto<sup>1</sup>; MATSUI, Hitoshi<sup>2</sup>; NAKAMURA, Hisashi<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院理学系研究科, <sup>2</sup> 海洋研究開発機構, <sup>3</sup> 東京大学先端科学技術研究センター

<sup>1</sup>University of Tokyo, <sup>2</sup>Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, <sup>3</sup>RCAST, University of Tokyo

Along the Kuroshio ocean current, high sea surface temperature (SST) is maintained even in winter and a steep SST gradient is formed across the current. In winter and spring, cold northwesterly air often flows from the Asia continent into the East China Sea. Once this cold air reaches the Kuroshio warm current, a large temperature contrast between sea surface and surface air (SAT) causes the marine boundary layer unstable and affect low altitude cloud formation. The northwesterly wind also transports a large amount of anthropogenic aerosols to East China Sea. These aerosols work as cloud condensation nuclei (CCN) and they affect microphysical properties of clouds. Because the marine boundary layer stability affects aerosol activation to form cloud particles, the large contrast between SST and SAT over the Kuroshio can also affect the aerosol-cloud interaction as proposed by Koike et al. [2012].

In order to assess the impact of Kuroshio warm SST on low clouds, we made WRF model calculations for a period between 21 Mar and 30 Apr 2009. In addition to the control calculation, we made sensitivity calculations, in which artificially smoothed SST was given for a lower boundary condition. In this smoothed SST, the SST gradually decreases toward higher latitudes and the maximum along the Kuroshio current no longer exists.

In the control calculation, the monthly mean cloud fraction (frequency of cloud occurrence in April 2009) was high in the south of Kuroshio and had a steep north-south gradient, corresponding to the SST steep gradient. A monthly mean liquid water path (LWP) was large along Kuroshio and small in East China Sea, although it enhanced when cyclones passed. As compared with the control calculation, both the cloud fraction and LWP decreased over the Kuroshio in smoothed-SST calculations, and their north-south gradients became gentler.

LWP differences between control and sensitivity calculations varied depending on the wind direction. In northerly wind conditions, the LWP decreased in warmer flank (downwind) of a SST front. Under calm and horizontally homogeneous wind conditions, water vapor transport convergence was relatively small over the Kuroshio and column-integrated water vapor increased mainly by evaporation from the sea surface. In such case, LWP decreased on the Kuroshio in sensitivity calculation. This suggests that warm SST associated with Kuroshio enhances the evaporation and contributes to increase LWP of low clouds.

キーワード: 下層雲, 黒潮

Keywords: low clouds, Kuroshio

## HTDMA-AMS 装置を用いたエアロゾル粒子の吸湿成長度分布および個別粒子の質量スペクトルの測定 Measurement of the hygroscopic growth factor distributions of aerosol particles and the mass spectra of single particles

川名 華織<sup>1\*</sup>; 中山 智喜<sup>2</sup>; 持田 陸宏<sup>1</sup>  
KAWANA, Kaori<sup>1\*</sup>; NAKAYAMA, Tomoki<sup>2</sup>; MOCHIDA, Michihiro<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 名古屋大学大学院環境学研究科, <sup>2</sup> 名古屋大学太陽地球環境研究所

<sup>1</sup>Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, <sup>2</sup>Solar-Terrestrial Environmental Laboratory, Nagoya University

Hygroscopicity is a property that relates to the lifetime, chemical reactivity and cloud condensation nucleus activity of atmospheric aerosol particles. The amount of water retained by the particles as a function of relative humidity (RH) is governed by the phase state and chemical composition. In this study, hygroscopic growth factor distributions of atmospheric aerosol particles and mass spectra of single particles selected by the growth factors were measured using a combination of hygroscopicity tandem differential mobility analyzer (HTDMA) and a high resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer (AMS) in Nagoya.

The observation of urban aerosols was performed on Higashiyama campus of Nagoya University in June and July, 2013. After aerosols were passed through PM1 cyclone and dried in diffusion driers, 300 nm particles were selected in the first DMA of the HTDMA. The growth factor distributions of the particles were measured under humidified conditions (setting RH: 37%, 65%, and 87%). The measurements were performed in both humidification and dehumidification modes. The mass spectra of single particles with specific hygroscopic growth factors  $g$  (1.0 at setting RH of 37%; 1.0, 1.1, and 1.25 at setting RH of 65%; 1.0 and 1.5 at setting RH of 87%) were measured using the AMS. The size distributions of aerosol particles were measured separately. The concentrations of organic carbon and elemental carbon in parts of the study period were also obtained.

In the humidification mode, the averages of the growth factor distributions at setting RH of 37% and 65% did not show substantial hygroscopic growth in terms of mean  $g$  (1.00 and 1.02, respectively), and those at setting RH of 87% showed large mean  $g$  (1.48). In the dehumidification mode, mean  $g$  of the averages of the growth factor distributions at setting RH of 37% and 65% (1.07 and 1.18, respectively) were substantially larger than those in the humidification mode, suggesting the presence of metastable-state aqueous solutions in the particles. At setting RH of 87%, the mean  $g$  in the dehumidification mode was large (1.44) as in the case of the humidification mode. The mass spectra of single particles with specific  $g$  were extracted from the obtained data; the number of these spectra was 349.

キーワード: 吸湿性, 個別粒子

Keywords: hygroscopicity, single particle

## CCN activity of aerosol and its relation to air mass origins: an analysis based on year-round observation at Noto, Japan

### CCN activity of aerosol and its relation to air mass origins: an analysis based on year-round observation at Noto, Japan

IWAMOTO, Yoko<sup>1\*</sup>; KINOUCHI, Kento<sup>2</sup>; MATSUKI, Atsushi<sup>1</sup>  
IWAMOTO, Yoko<sup>1\*</sup>; KINOUCHI, Kento<sup>2</sup>; MATSUKI, Atsushi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, <sup>2</sup>Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University

<sup>1</sup>Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, <sup>2</sup>Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University

Atmospheric aerosols play an important role in controlling the earth's radiation balance and/or the hydrological system by acting as cloud condensation nuclei (CCN). For a quantitative evaluation of CCN characteristics in the East Asia, CCN activity of atmospheric aerosols in submicrometer size range were measured at Noto Ground-based Research Observatory (NOTOGRO), located at the tip of Noto peninsula, facing the Sea of Japan. The observation was conducted from October 2012 to September 2013, to investigate the seasonal variability in CCN activity of the atmospheric aerosols.

CCN efficiency spectra, where CCN number fraction is plotted against the diameter of aerosols, were obtained at four different supersaturation (SS) conditions (0.1%, 0.2%, 0.5% and 0.8%) by using a scanning mobility CCN analysis (SMCA) system (Moore et al., 2010). Hygroscopicity parameters kappa (Petters and Kreidenweis, 2007), which depends on the chemical composition of aerosols, were estimated through analyses of the CCN spectra. The bulk chemical composition of non-refractory submicrometer-sized aerosols was also measured by an aerosol chemical speciation monitor (ACSM). Seven-days backward trajectories at the height of 500 m above the sea level were calculated by using NOAA/HYSPLIT4 model.

The CCN activation diameters of the atmospheric aerosols were clearly larger than those of pure ammonium sulfate throughout the year. The mean kappa values ranged between those of pure ammonium sulfate (0.61) and several pure organic compounds (0 to 0.25). These evidences suggest that the atmospheric aerosols were mixture of ammonium sulfate and organics. The bulk chemical composition derived by ACSM also showed that organics, sulfate and ammonium were three major components throughout the observation period. The contribution of organics to the CCN activity of the atmospheric aerosols observed in this study was more apparent than those obtained in the previous studies in the East Asia. As most of the previous CCN studies in East Asia were conducted in the season significantly affected by Asian outflow of pollutants, current numerical models might overestimate CCN concentrations in the East Asia.

The mean kappa values were 0.30, 0.26, and 0.18 during the spring, autumn and summer, respectively. The difference in kappa values among the seasons might be caused by difference in air mass origin. Air masses to the NOTOGRO site came mainly from NW across the Sea of Japan during the autumn and spring, whereas air masses of Pacific origin, those passed over the Japan islands, prevailed in the summer. Relatively high kappa values were observed under the influence of continental polluted air masses with high sulfate concentration. On the other hand, organic aerosols derived by photochemical oxidation were dominant in summer, resulted in low kappa values. The variation in kappa values of organics with air mass origins will also be discussed.

#### References

- Petters and Kreidenweis (2007), *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1961-1971.  
Moore et al. (2010), *Aerosol Sci. Tech.*, 44, 861-871.

キーワード: atmospheric aerosol, cloud condensation nuclei, organic aerosol, hygroscopicity parameter, East Asia  
Keywords: atmospheric aerosol, cloud condensation nuclei, organic aerosol, hygroscopicity parameter, East Asia

## 能登半島における活性化させた CCN の初期成長の通年観測 Long-term observation of initial droplet growth of activated CCN at Noto peninsula, Japan

木ノ内 健人<sup>1\*</sup>; 岩本 洋子<sup>2</sup>; 鏡味 沙良<sup>3</sup>; 松本 篤<sup>2</sup>

KINOUCHI, Kento<sup>1\*</sup>; IWAMOTO, Yoko<sup>2</sup>; KAGAMI, Sara<sup>3</sup>; MATSUKI, Atsushi<sup>2</sup>

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

<sup>1</sup>Graduate School of Natural Science & Technology, Kanazawa university, <sup>2</sup>Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa university, <sup>3</sup>College of Science and Engineering, Kanazawa university

大気エアロゾルは雲凝結核 (Cloud Condensation Nuclei: CCN) として働き、雲の光学特性や大気中での寿命などを変化させることで、間接的に気候変動に影響を与える。また、雲粒の粒径はその大小によって雲のアルベドや降水頻度に影響するため気候変動を考える上で重要な要素の 1 つと言える。この雲粒の成長に関わる要素として、1. 大気の過飽和度 (Supersaturation: SS)、2. CCN の粒径、3. CCN の化学組成が挙げられる。近年、CCN の化学組成が雲粒の成長を左右するのではないかと報告がある。特に、CCN として働く大気エアロゾル中に占める有機物の割合の高さが指摘されており (Zhang et al., 2007)、その成分が活性化後の雲粒の成長にどう影響するのかに注目が集まっている。さらに、東アジアは世界の中でも最もエアロゾル濃度が高い地域の 1 つであり、CCN 計測を行うには非常に興味深い地域であると言える。そこで、本研究では能登半島において CCN カウンタ (CCN counter: CCNC, CCN-100, DMT) を用いた実大気中 CCN の活性化初期における粒径の計測と同時に、エアロゾル質量分析計 (Aerosol Chemical Speciation Monitor: ACSM, Aerodyne Inc.) による化学組成の測定も行い、化学組成の変化に伴う初期段階の雲粒粒径の成長の変化を観測した。

本研究では、能登半島先端の珠洲市に設置した能登スーパーサイト (NOTO Ground-based Research Observatory: NOTOGRO) において観測を行った。大気エアロゾル試料は地上 14.7 m の高さにある PM10 インレットから採取した。その試料を拡散ドライヤーで乾燥させ、電荷を中和したサブミクロンサイズの粒子を微分型移動度分級器 (Differential Mobility Analyzer: DMA, TSI) へ導入した。DMA で粒径選別した大気試料を分岐させ、凝結核計数器 (CN カウンタ) と CCN カウンタに導入し、高時間分解能で CN と CCN の数粒径分布を得た。CCN カウンタは 4 つの SS (0.1%、0.2%、0.5%、0.8%) に設定して操作した。また、同一インレットから採取した試料を ACSM に導入し、サブミクロンサイズの大気エアロゾルのバルク化学組成も同時計測した。解析には Moore et al. (2010) の手法を用い、雲粒の粒径を得た。本研究では、無機 CCN の代表格である硫酸アンモニウムからできたもの ( $D_{AS}$ ) と実大気エアロゾルから成長してできた雲粒の大きさ ( $D_{ambient}$ ) を比較した。

各季節を通して、SS が大きい場合 (0.5% 及び 0.8%) では  $D_{AS}$  と  $D_{ambient}$  で顕著な違いは見られなかった。しかし、SS が小さい条件下 (0.1% 及び 0.2%) では、秋季と春季に  $D_{AS}$  に比べ  $D_{ambient}$  の成長が抑制されている期間があった。このことから、SS が小さい場合にはより強くエアロゾルの化学組成の影響を受けることが考えられる。ACSM によるバルク化学組成の結果によると、観測期間を通してサブミクロン粒子はほぼ有機物と硫酸塩、アンモニウムで構成されていたが、雲粒の成長が抑制されていた期間は特に有機物の割合が高い時期と一致することが示された。有機物の割合と雲粒の粒径には負の相関が見られることから、雲粒の成長を抑制した要因は、有機物が大きく影響したと考えられる。一方、冬季の雲粒粒径の変動は SS が小さい条件においても顕著ではなかった。冬季の能登半島は他の季節と異なり、日本海側特有の季節風の影響下にあり、輸送されてくる CCN 中に含まれる化学種に違いがあると考えられる。

キーワード: 雲凝結核, 雲粒, 化学組成

Keywords: cloud condensation nuclei, cloud droplet, chemical composition

## 能登半島珠洲における PANs および有機硝酸エステルの季節変動 Seasonal variations of peroxyacyl nitrates and alkyl nitrates concentration at Suzu, the Noto Peninsula

石山 絢菜<sup>1\*</sup>; 高治 諒<sup>1</sup>; 定永 靖宗<sup>1</sup>; 松本 篤<sup>2</sup>; 佐藤 啓市<sup>3</sup>; 長田 和雄<sup>4</sup>; 坂東 博<sup>1</sup>  
ISHIYAMA, Ayana<sup>1\*</sup>; TAKAJI, Ryo<sup>1</sup>; SADANAGA, Yasuhiro<sup>1</sup>; MATSUKI, Atsushi<sup>2</sup>; SATO, Keiichi<sup>3</sup>; OSADA, Kazuo<sup>4</sup>; BANDOW, Hiroshi<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>4</sup> 名古屋大学

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

NO<sub>x</sub> emissions have been increasing in East Asia with recent remarkable economic progress. NO<sub>x</sub> has relatively short lifetime and NO<sub>x</sub> concentrations are governed by local NO<sub>x</sub> emissions. On the other hand, descendant photochemical products of NO<sub>x</sub> such as T.NO<sub>3</sub> (the sum of gaseous nitric acid and particulate nitrates), PANs (peroxyacyl nitrates) and ANs (alkyl nitrates) have longer lifetime than NO<sub>x</sub>, so that they can be transported over a long-distance. In order to understand influences of the cross-border pollution, it is important to clarify the long-range transport of T.NO<sub>3</sub>, PANs, and ANs.

We have been continuously observing several pollutants at NOTOGRO (Noto Ground-based Research Observatory) super-site in Suzu, the Noto Peninsula. NOTOGRO is located at 37.45N and 137.36E. NO<sub>x</sub> were determined by an LED photolytic converter / NO-O<sub>3</sub> chemiluminescence method. NO<sub>y</sub> and T.NO<sub>3</sub> were observed by a scrubber difference / NO-O<sub>3</sub> chemiluminescence method. CO was monitored by a non-dispersive infrared photometer. PANs and ANs were measured by a thermal dissociation / cavity attenuated phase shift spectroscopy method.

In this presentation, observational results and discussion from December, 2012 to July, 2013 are described, focusing on seasonal variations of PANs and ANs. The air mass origins arriving at Suzu were classified into the following four groups, Russia and North China (RC), Korea and Middle China (KC) and Japan (JP) and Sea (S) using backward trajectory analyses. From winter to spring, both PANs and ANs concentrations from KC were higher than those from the other air mass origins. From spring to summer, their concentrations were independent of air mass origins.

From winter to spring, the lifetimes of PANs and ANs are long because of low temperature and weak solar radiation. In addition, their in-situ photochemical generation rates are low, so that PANs and ANs concentrations in this season are governed by long-range transport. From spring to summer, the lifetimes of PANs and ANs become shorter and their photochemical production rates become higher, that is, local photochemical productions of PANs and ANs are relatively important. Diurnal variations of PANs and ANs also support these concentration variation factors. From winter to spring, no diurnal variations were observed. Meanwhile, PANs and ANs concentrations began to be higher and lower in the daytime and nighttime, respectively, from spring to summer.

キーワード: パーオキシアシルナイトレイトおよび有機硝酸エステル, 長距離輸送, 季節変動

Keywords: peroxyacyl nitrates and alkyl nitrates, long-range transport, seasonal variation

## 大気中 PANs・有機硝酸エステル連続測定装置の開発および能登半島珠洲における観測

### Development of a continuous measurement system of PANs and alkyl nitrates in the atmosphere and observations at Suzu, th

高治 諒<sup>1\*</sup>; 石山 絢菜<sup>1</sup>; 定永 靖宗<sup>1</sup>; 松本 篤<sup>2</sup>; 佐藤 啓市<sup>3</sup>; 長田 和雄<sup>4</sup>; 坂東 博<sup>1</sup>

TAKAJI, Ryo<sup>1\*</sup>; ISHIYAMA, Ayana<sup>1</sup>; SADANAGA, Yasuhiro<sup>1</sup>; MATSUKI, Atsushi<sup>2</sup>; SATO, Keiichi<sup>3</sup>; OSADA, Kazuo<sup>4</sup>; BANDOW, Hiroshi<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>4</sup> 名古屋大学

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

Peroxyacyl nitrates (PANs) and alkyl nitrates (ANs) are generated in the atmosphere by oxidation of  $\text{NO}_x$  in the presence of solar ultraviolet. They have a comparatively long lifetime, and are important as transboundary air pollutants. On the other hand, PANs and ANs act as the reservoirs of  $\text{NO}_x$ . In order to clarify transboundary pollution of nitrogen oxides, comprehensive measurements of total odd nitrogen species ( $\text{NO}_y$ ), including PANs and ANs, are required. In this research, a continuous measurement system of total PANs and ANs has been developed by a thermal dissociation / cavity attenuated phase shift spectroscopy (TD/CAPS) method.

This instrument consists of heated quartz tubes to decompose PANs and ANs into  $\text{NO}_2$ , and a CAPS- $\text{NO}_2$  analyzer. This system has three intake lines;  $\text{NO}_2$ , PANs and ANs lines. The  $\text{NO}_2$  line equip of a quartz tube without heating. The PANs and ANs line equip quartz tubes heated at 433 K and 633 K, respectively for thermally decomposing them into  $\text{NO}_2$ . 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 calibrated to be 100 and 95%, respectively, for all kinds of PANs and ANs examined.

Continuous field observations of PANs and ANs have been being performed at NOTOGRO (Noto ground-based Research observatory) supersite in Suzu, the Noto Peninsula, since November 2012. Continuous measurements of  $\text{NO}_x$ ,  $\text{NO}_y$ ,  $\text{T.NO}_3$  (the sum of gaseous nitric acid and particulate nitrate)  $\text{O}_3$ , and CO have also been being conducted.  $\text{NO}_y$  concentrations were in agreement with the sum of observed  $\text{NO}_y$  components ( $= \text{NO}_x + \text{T.NO}_3 + \text{PANs} + \text{ANs}$ ) regardless of seasons.  $\text{NO}_x$  fractions were the highest in  $\text{NO}_y$  constituents. Fractions of  $\text{T.NO}_3$  in January and February were lower than those in other months. This reflects that wet deposition of  $\text{T.NO}_3$  would be accelerated in winter due to snowfall. On the other hand, PANs fractions in spring and summer were smaller than those in winter. This suggests that temperature increasing promotes decomposition of PANs.

キーワード: ペルオキシアシル硝酸 (PANs), 有機硝酸エステル, 反応性総窒素酸化物, キャビティ減衰位相シフト分光法

Keywords: peroxyacyl nitrates (PANs), alkyl nitrates, total odd nitrogen species, cavity attenuated phase shift spectroscopy

## NO<sup>+</sup>を試薬イオンにした化学イオン化質量分析法によるアルカンのオンライン計測 On-line measurements of multiple alkanes by chemical ionization mass spectrometry using NO<sup>+</sup> as the reagent ion

猪俣 敏<sup>1\*</sup>; 谷本 浩志<sup>1</sup>; 山田 裕之<sup>2</sup>

INOMATA, Satoshi<sup>1\*</sup>; TANIMOTO, Hiroshi<sup>1</sup>; YAMADA, Hiroyuki<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 国立環境研究所, <sup>2</sup> 交通安全環境研究所

<sup>1</sup>NIES, <sup>2</sup>NTSEL

大気中のエアロゾルは地球大気の大気熱収支に影響を及ぼし、一般的には冷却に作用する。しかし、その放射強制力の見積りの誤差は大きく、全放射強制力の誤差の大部分を占めている。エアロゾルの見積もりにおいて、二次生成の寄与を過小評価していることが指摘されている。その原因の1つとしては、半揮発性、中間揮発性（揮発性と半揮発性の中間）の揮発性有機化合物（VOC）を十分に捉えられていない可能性が考えられている。半揮発性、中間揮発性の VOC は、蒸気圧が低いため、壁、ライン等への吸着が考えられ、そのために過小評価している可能性が考えられる。そこで、これら半揮発性、中間揮発性の VOC をリアルタイムで、しかも多種類を同時に測定することが必要と考えている。

H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>を試薬イオンとした陽子移動反応質量分析法（PTR-MS）では、従来の GC 法等では定量が困難であった含酸素 VOC を含め、ほとんどの VOC を検出することができるが、ただアルカンに関してはイオン化が起ころなかったり、あるいはフラグメンテーションが起ったりして、測定ができなかった。アルカンは GC 法を用いて安定して測定することは可能であるが、炭素数 12 以上の中間揮発性のものになると、キャニスター内で消失が起ることが指摘されており、そこで我々は炭素数 12 以上のアルカンを主に検出対象としたリアルタイム計測手法の開発に取り組んだ。

最近、PTR-MS の試薬イオンを切り替えられる手法が開発され、NO<sup>+</sup>を試薬イオンにして、アルカンの検出特性について調べた。ノルマルトリデカン（分子量 184）の一例を示している。従来の H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>でのイオン化では、フラグメンテーションが起り、多くのアルキルラジカルイオンが検出されることになり、この質量スペクトルを見ても何をイオン化したのかわからない。一方、NO<sup>+</sup>を試薬イオンに用いると、質量数 183 のイオンシグナルが 1 本だけ強く検出された。このことから、分子量 184 の化合物が存在することがわかり、C<sub>13</sub>のアルカンと帰属することができる（ただし異性体は区別できない）。

この手法を用いて、シャシーダイナモメータで過渡走行モードを走行する自動車から排出される多種類のアルカンをリアルタイムで計測した。実際、C<sub>4</sub>からC<sub>16</sub>の多種類のアルカンの秒オーダーでの濃度変化を捉えることに成功した。濃度レベルも ppmv オーダーから ppbv オーダーの変化を検出できた。ガソリン車は、スタート時、エンジン、三元触媒が温まっていない時に、アルカンの多くの排出が見られた。一方のディーゼル車では、急激な加速時の排出が見られた。また、ディーゼル車のほうがガソリン車よりも重いアルカンが検出され、これらのアルカンの排出は燃料（ガソリン・軽油）由来であることを示している。今後、自動車排ガスからの中間揮発性 VOC の排出が二次粒子生成に及ぼす影響に関する研究を行う予定である。

キーワード: PTR-MS, アルカン, NO<sup>+</sup> 化学イオン化, ガソリン車, ディーゼル車, 排ガス

Keywords: PTR-MS, alkane, NO<sup>+</sup> chemical ionization, Gasoline vehicle, Diesel vehicle, Exhaust gas

## 2013 年の千葉とつくばにおける MAX-DOAS 法によるホルムアルデヒドとグリオキサル濃度変動の観測 Observation of formaldehyde and glyoxal variations by MAX-DOAS in Chiba and Tsukuba in 2013

陳 誠<sup>1\*</sup>; 倪 聞涛<sup>1</sup>; 入江 仁士<sup>1</sup>  
CHIN, Sei<sup>1\*</sup>; NI, Wentao<sup>1</sup>; IRIE, Hitoshi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 千葉大学

<sup>1</sup>Chiba university

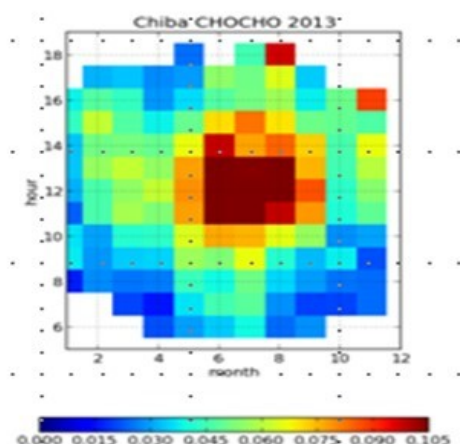
BVOC(Biogenic Volatile Organic Compounds) は常温常圧で大気中に容易に揮発する有機化学物のうち植物から放出されるものの総称のことである。BVOC の大気中の反応は、大気の酸化能を左右する OH ラジカルの収支に大きな影響を及ぼす。また、BVOC の反応で生成するオゾンは、人の健康や植物に悪影響を及ぼすほか、強力な温室効果気体としてもはたらく。更に、BVOC の酸化反応の生成物の一部はエアロゾルを形成し、放射収支や雲の形成に関与する。この様に、BVOC は人間や植物を取り巻く大気の質や気候と深く関わっている。グリオキサルとホルムアルデヒドは BVOC の重要な指標の一つであるが、観測データは限られている。本研究では MAX-DOAS 法によって観測された、グリオキサルとホルムアルデヒド濃度を日変動や季節変動の観点から詳しく解析し、その変動要因を議論する。

本研究で使用した MAX-DOAS(Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy) 法は、複数の仰角(本研究の仰角は 2 度、4 度、8 度、15 度、30 度と 70 度)について紫外可視域の太陽散乱光のスペクトルを測定する方法である。我々は千葉大学(北緯 35.62 度、東経 140.10 度)およびつくばの気象研究所(北緯 36.06 度、東経 140.13 度)において 2013 年に通年観測を実施した。グリオキサルとホルムアルデヒド濃度の情報はそれぞれ、436.0-457.0nm と 336.5-359.0nm の波長域を DOAS 法を用いて解析して得た。インバージョン法と放射伝達モデルを利用して、地表付近(高度 0-1km)の濃度を導出した。

2013 年の一年間、千葉で観測されたグリオキサル濃度のデータを図 1 に示す。季節変化と日変化を調べるために、各月において 1 時間毎の平均値を計算した。グリオキサルの濃度が日中に高く、また、夏季に高いという明瞭な日変化・季節変化が起きていることが分かった。夏季の正午には、0.105ppbv 以上まで増大した。同様な日変化・季節変換はつくばでも観測された。本発表ではホルムアルデヒドのデータも合わせて解析し、2013 年の一年間の千葉とつくばで観測したのデータを整理し、一年間の変化原因を議論する。

キーワード: ホルムアルデヒド, グリオキサル, MAX-DOAS, 日変化, 季節変化

Keywords: Formaldehyde, Glyoxal, MAX-DOAS, diurnal variation, seasonal variation



## 光化学オゾン生成速度直接測定装置の開発 Development of a direct measurement system of photochemical ozone production rate in the troposphere

川崎 梓央<sup>1\*</sup>; 定永 靖宗<sup>1</sup>; 田中 悠基<sup>1</sup>; 梶井 克純<sup>2</sup>; 坂東 博<sup>1</sup>

KAWASAKI, Shio<sup>1\*</sup>; SADANAGA, Yasuhiro<sup>1</sup>; TANAKA, Yuki<sup>1</sup>; KAJII, Yoshizumi<sup>2</sup>; BANDOW, Hiroshi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 大阪府立大学, <sup>2</sup> 京都大学

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

Recently, ozone concentrations in the troposphere have been rising in spite of a steady decrease in concentrations of ozone precursors such as  $\text{NO}_x$  and volatile organic compounds. Photochemical production processes of ozone are non-linear to concentrations of ozone precursors. In addition, ozone concentration variations are influenced by meteorological factors such as transport and deposition processes as well as photochemistry. It is useful that the meteorological and photochemical factors could be divided to discuss ozone concentration variations. In order to discuss only "photochemical" factors for ozone production, a direct measurement system of photochemical ozone production rate has been developed.

Ambient air is introduced into "reaction" and "reference" chambers. The reaction and reference chambers (171-mm inner diameter and 500-mm length) are made of quartz and Pyrex, respectively. Inner walls of both the chambers are coated with Teflon to avoid wall loss of ozone. An outer wall of the reference chamber is coated with a UV-cut film (50%-cutoff wavelength of 405 nm). In the reaction chamber, photochemical reactions proceed to generate ozone. On the other hand, ozone is not produced photochemically in the reference chamber. Air passed from the reaction and reference chambers is introduced into "NO-reaction" tubes to convert  $\text{O}_3$  to  $\text{NO}_2$  in the presence of a high concentration of NO, and then the air is introduced into an  $\text{NO}_2$  measurement system by a laser-induced fluorescence technique. Increment of ozone ( $\Delta\text{O}_3$ ) is defined by the difference of  $\text{NO}_2$  concentrations derived from the reaction chamber and those from reference chamber. The ozone production rate is obtained by dividing  $\Delta\text{O}_3$  by a mean residence time of air in the reaction chamber ( $\tau$ ). In this system,  $\text{O}_3$  concentrations are not directly measured but  $\text{NO}_2$  concentrations converted by the reaction of  $\text{O}_3$  with excess NO are observed. This is because the photostationary states between  $\text{NO}_x$  and  $\text{O}_3$  are different between in the reaction and reference chambers, and ozone concentrations vary apparently. The sum of ozone and  $\text{NO}_2$  concentrations (abbreviated as PO) are kept in the different photostationary states, so that this instrument measures production rates of PO instead of those of ozone practically.

Important parameters in this system are (1) ultraviolet transmittance of the reaction and reference chambers, (2)  $\tau$ , and (3) conversion efficiency of  $\text{O}_3$  to  $\text{NO}_2$  in the NO-reaction tube. For (1), we measured solar spectra at inside and outside of the chambers using a spectroradiometer. Almost a hundred % of solar UV was transmitted into the reaction chamber. A wall of the reference chamber cut off solar UV adequately. For (2), about 10 ppmv of pulsed  $\text{NO}_2$  was added into the reaction chamber and temporal variations of LIF signals were measured.  $\tau$  was calculated to be  $22.1 \pm 0.5$  min using the temporal variation the signals. For (3), quantitative conversions of  $\text{O}_3$  up to 160 ppbv by NO in the NO-reaction tube were confirmed under the excess NO condition 0.97 ppmv.

キーワード: 光化学オゾン, オゾン生成速度の直接測定, レーザー誘起蛍光法

Keywords: photochemical ozone, direct measurement of ozone production rate, laser-induced fluorescence

## 中国から日本へのオゾン越境汚染の事例解析 Transboundary ozone pollution from China to Japan; a case study

毛家村 友里子<sup>1\*</sup>; 林田 佐智子<sup>1</sup>  
YURIKO, Keyamura<sup>1\*</sup>; HAYASHIDA, Sachiko<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 奈良女子大学

<sup>1</sup> Faculty of Science, Nara Woman's University

しばしば観測される日本における対流圏オゾンの増加は、風上にある中国から高濃度オゾンが長距離輸送されたためではないかと疑われている。

本研究では、日本の環境基準値である 60ppbv を超える高濃度オゾンが下部対流圏において連続的に観測された事例に対し、その観測地点から 1 時間毎に後方流跡線解析を行った。流跡線解析には、本研究室で開発された SPIRAL を用いた。本研究では、気象研究所のオゾンライダーで得られたオゾン濃度の鉛直分布と日本全国で取得された地上オゾン観測データを使用した。オゾンライダーは Nakazato et al. (Applied Optics, 2007) で述べられているように、従来よりも短い波長を用いて昼夜連続での観測を行っている。一方、大気環境時間値データは、1 時間ごとに直接大気中に含まれるオゾンの濃度を測定している。両者のデータは短い時間間隔で得られているため、流跡線解析の結果と観測されたオゾン濃度の時系列変動を詳細に対応させる事が出来る。さらに、流跡線解析の結果と、Aura 衛星に搭載された Ozone Monitoring Instrument (OMI) のオゾン鉛直分布データを比較する。ここで使用した OMI のデータは X.Liu らにより、紫外・可視スペクトルを用いて、対流圏を 3 層に区切った層ごとのオゾン濃度として直接導出されたものである [Liu et al., 2010]。このように、本発表では、地上観測データや衛星データを用いて空気塊の輸送過程を解析することで、中国から高濃度オゾンが流出し日本に長距離輸送された可能性について議論する。

本研究は Grant-in-Aid from the Green Network of Excellence, Environmental Information(GRENE - ei) の支援のもと実施されている。さらに、OMI のデータはハーバード大学の Xiong.Liu 氏と Kelly.Chance 氏から提供を受けた。オゾンライダーは中里真久氏より提供を受けた。

キーワード: 対流圏, オゾン, 越境汚染, 長距離輸送, 中国

Keywords: troposphere, ozone, trajectory, transport, China

## リモートセンシングによる下部対流圏オゾン量導出のための検証観測 Validation observation for the derivation of lower tropospheric ozone by remote sensing

谷中 郁哉<sup>1\*</sup>; 北 和之<sup>2</sup>; 山口 裕樹<sup>1</sup>; 福寿 旅人<sup>1</sup>; 板橋 良平<sup>1</sup>; 木名瀬 健<sup>1</sup>; 入江 仁士<sup>3</sup>; 野口 克行<sup>4</sup>; 中山 智喜<sup>5</sup>; 松見 豊<sup>5</sup>; 永井 智広<sup>6</sup>; 酒井 哲<sup>6</sup>; 財前 祐二<sup>6</sup>; 森野 勇<sup>7</sup>; 内野 修<sup>7</sup>; 井上 誠<sup>7</sup>; 田中 智章<sup>8</sup>  
YANAKA, Fumiya<sup>1\*</sup>; KITA, Kazuyuki<sup>2</sup>; YAMAGUCHI, Yuuki<sup>1</sup>; FUKUJU, Tabito<sup>1</sup>; ITABASHI, Ryohei<sup>1</sup>; KINASE, Takeshi<sup>1</sup>; IRIE, Hitoshi<sup>3</sup>; NOGUCHI, Katsuyuki<sup>4</sup>; NAKAYAMA, Tomoki<sup>5</sup>; MATSUMI, Yutaka<sup>5</sup>; NAGAI, Tomohiro<sup>6</sup>; SAKAI, Tetsu<sup>6</sup>; ZAIZEN, Yuji<sup>6</sup>; MORINO, Isamu<sup>7</sup>; UCINO, Osamu<sup>7</sup>; INOUE, Makoto<sup>7</sup>; TANAKA, Tomoaki<sup>8</sup>

<sup>1</sup> 茨城大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup> 茨城大学理学部, <sup>3</sup> 千葉大学環境リモートセンシング研究センター, <sup>4</sup> 奈良女子大学理学部, <sup>5</sup> 名古屋大学太陽地球環境研究所, <sup>6</sup> 気象研究所, <sup>7</sup> 国立環境研究所, <sup>8</sup> NASA エイムズ研究センター

<sup>1</sup>Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University, <sup>2</sup>College of Science, Ibaraki University, <sup>3</sup>Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, <sup>4</sup>Faculty of Science, Nara Women's University, <sup>5</sup>Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University, <sup>6</sup>Meteorological Research Institute, <sup>7</sup>National Institute for Environmental Studies, <sup>8</sup>NASA Ames Research Center

対流圏下部のオゾンは光化学スモッグを引き起こす光化学オキシダントの主成分であり、高濃度になると人体の健康や農作物・生態系に悪影響を及ぼす。そのため大気汚染物質として、その挙動を把握することが重要である。近年日本ではオゾン前駆気体の現象に反して下部対流圏オゾン量の増加傾向が認められており、その原因の一つとして中国大陸などからの越境汚染が考えられているが、未だその実態は明らかではない。越境汚染のような広域な現象を観測するためには、人工衛星などからのリモートセンシングが有効であると考えられるが、下部対流圏オゾンの観測については観測される光強度、地表面反射スペクトルの影響などにより従来困難であった。そのため本研究では、衛星リモートセンシングによる下部対流圏オゾン観測の実現に向けて多波長同時分光観測を提案し、その検証のための航空機観測を実施した。

多波長同時分光観測は、オゾンが紫外・可視・赤外光など異なる波長域の光を吸収し、かつ各波長域で吸収の高度依存性が異なることを利用して、その違いから下部対流圏オゾン濃度を推定する手法である。本研究では紫外域と可視域での太陽散乱光スペクトルを観測することによって、主にレイリー散乱の散乱強度の違いにより下部対流圏で生じる光路長の差を利用して、下部対流圏オゾン量の導出を試みる。

この手法について、2012 年 9 月 10 日および 13 日に筑波上空で航空機による検証観測を行った。航空機には、分光器 Maya2000pro とオゾン計を搭載し、25000ft(7600m) と 2500ft(760m) の 2 つの高度で紫外・可視散乱光スペクトルとオゾンの直接観測を行った。同時に、気象研究所で CRDS や PASS、PSAP による地上エアロゾル観測、オゾン計による地表オゾンの観測、ライダー観測によるオゾンおよびエアロゾルの高度分布観測が行われた。また、オゾンゾンデによるオゾン高度分布の直接観測を行った。航空機からは、紫外(波長 300~380nm) および可視(波長 400~700nm) 域での天頂散乱光、鉛直下方散乱光を観測している。特に下方からの散乱光には地表反射光が大きく関与しており、オゾン量の精度良い推定のためには地表反射スペクトルの正確な推定が不可欠となる。今回、低高度(2500ft)にて緑地帯、刈田(農場)、裸地、市街地などの異なる地表利用状況での地表反射スペクトルを測定した。地表反射スペクトルの推定には、航空機周辺やその下方での散乱の影響を考慮しなければならない。そのため観測時の幾何学条件およびエアロゾルの条件を設定し、放射伝達モデル SCIATRAN(Rozanov et al., 2005) にて天頂方向、鉛直下方それぞれのスペクトルを計算し、観測されたスペクトルからエアロゾル散乱を考慮して推定を行った。

航空機観測では、2013 年 5 月 31 日に取得した太陽直達光スペクトルと、各直下視方向の観測スペクトルの比から差分分光フィッティングにより傾斜オゾンカラム量を導出する。推定された地表反射スペクトルを考慮して、導出された傾斜オゾンカラム量の結果、および考察について、講演会にて報告を行う。

謝辞: 本研究は、科学研究費補助金「可視紫外同時分光観測による地表境界層オゾンのリモートセンシング手法の開発」によるものです。ここに記し、深く感謝します。

キーワード: リモートセンシング, 下部対流圏オゾン  
Keywords: Remote Sensing, Lower tropospheric ozone

## 中国華北平原における CO と火災件数の関係 The Relationship between CO Concentration and Biomass Burning over the North China Plain

茅場 聡子<sup>1\*</sup>; 林田 佐智子<sup>1</sup>; 小野 朗子<sup>1</sup>  
KAYABA, Satoko<sup>1\*</sup>; HAYASHIDA, Sachiko<sup>1</sup>; ONO, Akiko<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 奈良女子大学

<sup>1</sup> Faculty of Science, Nara Women's University

CO は化学過程においてメタンや対流圏オゾン濃度に関与することから、重要な間接的温室効果ガスと見なされており、その時空間変動を把握することは重要である。

中国華北平原で 6 月初旬に行われる冬小麦収穫後の残渣焼却は大気中 CO 濃度に大きな影響を及ぼしていることが指摘されており [Wang et al., JGR, 2002]、更に 2006 年の中国泰山における現地観測とモデルシミュレーションによって確認されている [Kanaya et al., ACP, 2013 及び ACP 特集号参照]。また、近年の急速な経済成長に伴い、工業活動による CO の放出が急増している [Ohara et al., ACP, 2007]。この様に、火災 (バイオマスバーニング) と火災以外のソースが混在するこの地域において、火災発生地域と CO 濃度の関係を調べることは、ソースの違いを把握することに繋がると考えられる。そこで本研究では、衛星観測データを用いて中国華北平原における火災発生地域と CO 濃度の関係を調べた。

解析したデータは以下の通りである。CO 濃度データは Terra 衛星搭載の MOPITT センサ (Ver5) による混合比プロダクト、火災件数データは Terra, Aqua 衛星搭載の MODIS センサによる熱異常値データ (Thermal Anomalies & Fire) に火災検知アルゴリズム [Giglio et al., RSE, 2003] を適用して作成されたアジア域森林火災プロダクト [Takeuchi and Yasuoka, 2006] である。解析期間は 2001~2012 年と定めた。

火災件数と CO 濃度の時空間分布を調べたところ、毎年 6 月には火災件数の急増に伴う CO 濃度の上昇が見られ、上記で述べた畑作の残渣焼却が大気中 CO 濃度へ与える影響が衛星観測からも捉えられていた。一方で秋から冬にかけては、火災はほぼ検知されていないにもかかわらず CO 濃度は増加する。これは工業活動や暖房の影響である可能性が高い。更に、6 月と秋から冬の時期では CO 濃度の年々変動の様相は異なっていた。

本研究は、文部科学省の Green Network of Excellence, Environmental Information (GRENE-ei) 事業の支援を受けて実施しています。

## 南米チリ・アルゼンチンにおける大気環境リスク管理システムの開発プロジェクト Development of Atmospheric Environmental Risk Management System in Chile and Argentina

水野 亮<sup>1\*</sup>; 杉本 伸夫<sup>2</sup>; 長浜 智生<sup>1</sup>; 大山 博史<sup>1</sup>; 中島 拓<sup>1</sup>; 杉田 考史<sup>2</sup>; 秋吉 英治<sup>2</sup>; 中根 英昭<sup>3</sup>; 山岸 久雄<sup>4</sup>; 小川 英夫<sup>5</sup>

MIZUNO, Akira<sup>1\*</sup>; SUGIMOTO, Nobuo<sup>2</sup>; NAGAHAMA, Tomoo<sup>1</sup>; OHYAMA, Hirofumi<sup>1</sup>; NAKAJIMA, Tac<sup>1</sup>; SUGITA, Takafumi<sup>2</sup>; AKIYOSHI, Hideharu<sup>2</sup>; NAKANE, Hideaki<sup>3</sup>; YAMAGISHI, Hisao<sup>4</sup>; OGAWA, Hideo<sup>5</sup>

<sup>1</sup> 名古屋大学太陽地球環境研究所, <sup>2</sup> 国立環境研究所, <sup>3</sup> 高知工科大学, <sup>4</sup> 国立極地研究所, <sup>5</sup> 大阪府立大学

<sup>1</sup>Solar-Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya University, <sup>2</sup>National Institute for Environmental Studies, <sup>3</sup>Kochi University of Technology, <sup>4</sup>National Institute of Polar Research, <sup>5</sup>Osaka Prefecture University

我々、名古屋大学太陽地球環境研究所と国立環境研究所の研究者を核としたグループでは、昨年度より JST - JICA SATREPS(地球規模課題対応国際科学技術協力) プログラムの下で、標記の国際協力プロジェクトをスタートさせた。本プロジェクトでは、先端的観測施設の空白域である南米地域での地上大気観測網、特にオゾン・紫外線およびエアロゾルの観測網をアルゼンチンおよびチリとの国際協力の下で整備し、その観測網で得られた情報を一般市民や関係諸機関に準リアルタイムで伝達するための情報通信システムを開発することを目的とした5年間のプロジェクトである。南半球に位置する(南極を除く)3大陸のうち、最も南まで広がっている南米大陸の南端の上空はオゾンホールがしばしば到来し、パタゴニアの南部地域に居住している住民にとっては、オゾンホールは日常の生活に密着した現象となっている。また、アンデスの山々を間に挟むチリとアルゼンチンでは、大きな火山の噴火が数年に一度の割合で起きており、火山灰の飛散が航空機の運航に影響を与えているが、火山灰の動きを迅速に把握し予測するための有効な観測網が存在していなかった。

そこで、本プロジェクトでは、アルゼンチンの CEILAP(レーザー応用技術研究センター) およびチリのマゼラン大学と協力しながら、両国におけるオゾン・紫外線・エアロゾルの観測網を新たに整備する。オゾンに関しては、アルゼンチン南端部に位置するリオ・ガジェゴスで差分吸収ライダー、ミリ波分光計、ブリュワー分光計等を設置した総合的な観測施設を充実させ、エアロゾルについては6台のラマンライダーと3台の高分散スペクトルライダーの計9台からなるライダーの広域観測網を整備する。また観測網で取得されたデータを集約し、短期予測を行うためのデータ解析システムやモデルの構築を目指す。取得されたデータは、チリ・アルゼンチンの関係諸機関の間で共有されるだけでなく、国際的なデータベースにも供出し、関連分野の研究者が活用できるように整備していく計画である。

発表では、プロジェクトの概要と初年度終了時点での進捗、初期成果の報告等を行う。

キーワード: エアロゾル, オゾンホール, ライダー, ミリ波分光, 国際協力, 社会貢献

Keywords: Aerosol, Ozonehole, Lidar, Millimeter-wave spectroscopy, International cooperation, Contribution to society

## MAX-DOAS 法による大気汚染物質の水平分布観測 Observations of horizontal distributions of air pollutants by MAX-DOAS

倪 聞涛<sup>1\*</sup>; 入江 仁士<sup>1</sup>; 陳 誠<sup>1</sup>; 高村 民雄<sup>1</sup>; KHATRI Pradeep<sup>1</sup>  
NI, Wentao<sup>1\*</sup>; IRIE, Hitoshi<sup>1</sup>; CHEN, Cheng<sup>1</sup>; TAKAMURA, Tamio<sup>1</sup>; KHATRI, Pradeep<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 千葉大学

<sup>1</sup>Chiba University

2012 年 6 月に我々は千葉大学に MAX-DOAS 装置を設置し、それ以来、連続観測を実施している。MAX-DOAS 法は複数の仰角で太陽散乱光の紫外可視域のスペクトルを測定し、それらを放射伝達モデルやインバージョン法を利用してエアロゾル・ガス成分の鉛直分布/対流圏積算量を算出する手法である (Irie et al., 2008, 2009; Vlemmix, 2010)。本研究ではまず、MAX-DOAS 装置で測定したエアロゾル光学的厚さ (AOD) のデータとスカイラジオメーターのデータを比べて、一致性を調べた。両者は概ね 30 % 以内で一致したことが分かった。次に、2 台の装置 (1 号機、2 号機) を同じ場所に同じ方位に向けて設置し、同時観測を実施した。両方の装置とも、460-490 nm および 338-370 nm の波長範囲を DOAS 法で解析し、O<sub>4</sub>(O<sub>2</sub>-O<sub>2</sub>; 酸素分子の衝突錯体) の差分スラントカラム濃度 (DSCD) を導出した。仰角の系統的誤差が及ぼす O<sub>4</sub> DSCD 値への影響を定量化するために、2 号機の仰角設定に ± 0.5 度、± 1.0 度のオフセットを与えた実験を行い、1 号機と 2 号機の O<sub>4</sub> DSCD 値の比較を行った。相関解析等による詳細な比較を行ったところ、O<sub>4</sub> DSCD 値は概ね 20% 以内で一致した、± 0.5 度程度の小さなオフセットによって有意な系統的な影響が認められないことが分かった。このような詳細な誤差評価を踏まえ、2013 年 12 月より、1 号機を北、2 号機を西に向けた水平分布観測を実施している。本講演ではその結果についても議論する。

キーワード: MAX-DOAS, 仰角オフセット, 鉛直分布, 対流圏積算量, スラントカラム濃度

Keywords: MAX-DOAS, Elevation angle offset, vertical profile, tropospheric column amount, differential slant column density

## GOSAT SWIR xCH<sub>4</sub> の検証 (地上観測ネットワーク TCCON と航空機観測を用いて) Validation of GOSAT SWIR xCH<sub>4</sub> using TCCON and Airborne Measurements

岩崎 千沙<sup>1\*</sup>; 林田 佐智子<sup>1</sup>; 小野 朗子<sup>1</sup>; 町田 敏暢<sup>2</sup>  
IWASAKI, Chisa<sup>1\*</sup>; HAYASHIDA, Sachiko<sup>1</sup>; ONO, Akiko<sup>1</sup>; MACHIDA, Toshinobu<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 奈良女子大学, <sup>2</sup> 国立環境研究所

<sup>1</sup>Faculty of Science, Nara Women's University, <sup>2</sup>NIES

メタン (CH<sub>4</sub>) は短寿命大気汚染物質 (Short-Lived Climate Pollutants; SLCPs) のひとつであり, その発生源と消失源を推定するために, 世界規模で正確な観測をおこなうことが求められている. CO<sub>2</sub> と CH<sub>4</sub> の全球濃度分布を調べるため, 2009 年に GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) が打ち上げられ, 現在も観測を続けている. しかし, 雲が多く発生する地域では衛星観測が困難であるため, この地域での CH<sub>4</sub> 収支を理解するには, 適切な雲スクリーニングによりデータを選別し, 検証する必要がある.

本研究では, GOSAT の短波長赤外域 (Short-Wavelength InfraRed; SWIR) での観測から求められたメタン混合比 (xCH<sub>4</sub>) プロダクトを, 地上観測ネットワーク TCCON (Total Carbon Column Observing Network) のデータと比較し, 検証した. NIES (National Institute for Environmental Studies) プロダクトに対する同様の解析の結果が Yoshida et al. (AMT, 2013) で既に報告されているが, 本研究は解析期間を延長し, 観測地点を拡げて TCCON のデータを使用した. 先行研究は 2009 年 6 月から 2012 年 12 月について, 13 地点で観測された TCCON のデータを用いたのに対し, 本研究は 2009 年 6 月から 2013 年 8 月について, 17 地点で観測された TCCON のデータを用いた. 全期間の平均の NIES プロダクトと TCCON のデータの差は,  $-6.0 \pm 16.1$  ppbv であった.

また, "proxy 法" によって得られた RemoTeC-MACC プロダクトに対し, 3 つの異なる条件で雲スクリーニングをおこない, 適切な条件を検討した. "proxy 法" は, 雲の多い状態に対しても, 多くのプロダクトを作成することができるという利点がある. さらに, シベリアを中心に, GOSAT のデータと航空機観測のデータとの比較もおこなったので, 併せて結果を報告する.

### 謝辞

本研究は, 環境省・環境 研究総合推進費の平成 24-26 年度課題 (A-120) により実施しています. RemoTeC-MACC プロダクトは, Andre Butz 博士 (IMK-ASF, Karlsruhe Institute of Technology; KIT) より提供していただきました.

キーワード: GOSAT, 検証, メタン, 雲スクリーニング, 航空機

Keywords: GOSAT, validation, methane, cloud screening, aircraft

## 1988-2010 年の日本上空の対流圏メタンの変動 Variations of tropospheric methane over Japan during 1988-2010

梅澤 拓<sup>1\*</sup>; 後藤 大輔<sup>1</sup>; 青木 周司<sup>1</sup>; 石島 健太郎<sup>2</sup>; Patra Prabir<sup>2</sup>; 菅原 敏<sup>3</sup>; 森本 真司<sup>1</sup>; 中澤 高清<sup>1</sup>  
UMEZAWA, Taku<sup>1\*</sup>; GOTO, Daisuke<sup>1</sup>; AOKI, Shuji<sup>1</sup>; ISHIJIMA, Kentaro<sup>2</sup>; PATRA, Prabir<sup>2</sup>; SUGAWARA, Satoshi<sup>3</sup>; MORIMOTO, Shinji<sup>1</sup>; NAKAZAWA, Takakiyo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東北大学大学院理学研究科大気海洋変動観測研究センター, <sup>2</sup> 海洋研究開発機構地球環境変動領域, <sup>3</sup> 宮城教育大学  
<sup>1</sup>Center for Atmospheric and Oceanic Studies, Graduate School of Science, Tohoku University, <sup>2</sup>Research Institute for Global Change, JAMSTEC, Yokohama, Japan, <sup>3</sup>Miyaigi University of Education, Sendai, Japan

Mixing ratios of greenhouse gases and related trace gases have been measured using chartered and commercial aircraft in the lower to upper troposphere (LT and UT) over Japan by Tohoku University. We present variations of CH<sub>4</sub> during 1988-2010. The analysis is aided by simulation results using an atmospheric chemistry transport model (i.e. ACTM). Tropospheric CH<sub>4</sub> over Japan shows altitude-dependent interannual and seasonal variations, reflecting differences in air mass origins at different altitudes. The long-term trend and interannual variation of CH<sub>4</sub> in the LT are consistent with previous reports of measurements at surface baseline stations in the northern hemisphere. However, those in the UT show excursions from those in the LT. In the UT, CH<sub>4</sub> mixing ratios show seasonal maximum in August due to efficient transport of air masses influenced by continental CH<sub>4</sub> sources, while LT CH<sub>4</sub> reaches its seasonal minimum during summer due to seasonally maximum chemical loss. Vertical profiles of the CH<sub>4</sub> mixing ratios also vary with season, reflecting the altitude-dependent seasonal cycles. In summer, transport of CH<sub>4</sub>-rich air from Asian regions elevates UT CH<sub>4</sub> levels, forming the uniform vertical profile above the mid troposphere. On the other hand, CH<sub>4</sub> decreases nearly monotonically with altitude in winter-spring. The ACTM simulations with different emission scenarios reproduce general features of the tropospheric CH<sub>4</sub> variations over Japan. Tagged tracer simulations using the ACTM indicate substantial contributions of CH<sub>4</sub> sources in South Asia and East Asia to the summertime high CH<sub>4</sub> values observed in the UT. This suggests that our observation data over Japan are highly valuable for capturing CH<sub>4</sub> emission signals, particularly from the Asian continent.

キーワード: 航空機観測, メタン, 対流圏, 日本上空

Keywords: aircraft observation, methane, troposphere, over Japan

## 中赤外レーザー分光法を用いた CO<sub>2</sub> 安定同位体の測定：都市の CO<sub>2</sub> 循環の解析 Measurement of CO<sub>2</sub> stable isotope ratio by mid-infrared laser absorption spectrometry; analysis of CO<sub>2</sub> cycle in urban

弓場 彬江<sup>1\*</sup>; 高橋 けんし<sup>2</sup>; 中山 智喜<sup>1</sup>; 松見 豊<sup>1</sup>

YUBA, Akie<sup>1\*</sup>; TAKAHASHI, Kenshi<sup>2</sup>; NAKAYAMA, Tomoki<sup>1</sup>; MATSUMI, Yutaka<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 名古屋大学 太陽地球環境研究所, <sup>2</sup> 京都大学 生存圏研究所

<sup>1</sup>Solar-terrestrial environment laboratory, Nagoya university, <sup>2</sup>Research Institute for Sustainable Humanosphere, Kyoto University

CO<sub>2</sub> concentration has been increasing from the range of 275 ppmv (parts per million by volume) to 285 ppmv in the previous industrial period to about 400 ppmv in 2013. IPCC reported that CO<sub>2</sub> has the most effective on the positive radiative force. The insight of CO<sub>2</sub> emission and absorption flux helps us to estimate the variation of radiative forcing and atmospheric environment. CO<sub>2</sub> concentration changed with the anthropogenic and biogenic emission and absorption. The stable isotope ratio of CO<sub>2</sub> ( $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{18}\text{O}$ ) is associated with the CO<sub>2</sub> source such as combustion and biogenic respiration. The contribution of each CO<sub>2</sub> source in the urban area was estimated by using the stable isotope ratio of CO<sub>2</sub>.

We conducted the continuous measurement for CO<sub>2</sub> concentration and stable isotope ratio of CO<sub>2</sub> using the mid-infrared absorption spectrometry which can obtain CO<sub>2</sub> concentration and its isotope ratio with high time resolution. The water vapor and stable isotope ratios of water vapor ( $\delta\text{D}$  and  $\delta^{18}\text{O}\text{-H}_2\text{O}$ ) were measured to show the relationship between H<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub> due to the isotopic exchange reaction. CO and NO<sub>x</sub> concentrations were obtained as a tracer of anthropogenic emission. The measurement was conducted for two weeks in summer and winter. The seasonal variation of CO<sub>2</sub> source was shown according to the comparison of CO<sub>2</sub> concentration and stable isotope ratio. Especially, we focused on the contribution of biogenic process to CO<sub>2</sub> concentration variation in the urban area.

CO<sub>2</sub> concentration and stable isotope ratio of CO<sub>2</sub> in the summer showed the diurnal variation. On the other hand, those in the winter had no diurnal variation. CO<sub>2</sub> concentration variation in the winter was correlated with CO concentration variation. These results suppose that CO<sub>2</sub> concentration variation in the winter was mainly dominated by the anthropogenic emission and that in the summer was related with biogenic process as well as anthropogenic emission. We will discuss the relationship between stable isotope ratio and meteorological condition or water vapor isotope ratio to identify the detail of CO<sub>2</sub> source.

キーワード: CO<sub>2</sub>, 都市域, CO<sub>2</sub> 循環, 中赤外レーザー分光法

Keywords: CO<sub>2</sub> stable isotope ratio, Urban area, CO<sub>2</sub> cycle, mid-infrared laser absorption spectrometry

## 北西太平洋上の大気中ラドン濃度の時空間変動 Temporal and spatial variations of Radon-222 in the western North Pacific

坪井 一寛<sup>1\*</sup>; 松枝 秀和<sup>1</sup>; 澤 庸介<sup>1</sup>; 丹羽 洋介<sup>1</sup>; 村山 昌平<sup>2</sup>

TSUBOI, Kazuhiro<sup>1\*</sup>; MATSUEDA, Hidekazu<sup>1</sup>; SAWA, Yousuke<sup>1</sup>; NIWA, Yosuke<sup>1</sup>; MURAYAMA, Shohei<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 気象研究所, <sup>2</sup> 産業技術総合研究所

<sup>1</sup>Meteorological Research Institute, <sup>2</sup>National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

A new compact radon measuring system has been developed for high-resolution observation of low-level radon-222 (Rn) for the remote sites, in collaboration with the MRI and AIST. The Rn measuring system was installed at 4 stations of Minamitorishima (MNM), Yonagunijima (YON), Chichijima (CCJ) and Ryori (RYO) operated by Japan Meteorological Agency (JMA) since 2007. The Rn measurements clearly show that distinct seasonal variations as well as frequent episodic events with Rn enhancement peaks on a synoptic scale are successfully captured at all 4 stations. Although the seasonal cycles depended on the stations, significant correlations between the Rn and other trace gases were found for the most of the synoptic-scale events, indicating a large impact of widespread pollutions from the East-Asian countries on the regional air quality over the western North Pacific.

キーワード: ラドン

Keywords: Radon