ユーラシア北方林におけるMODIS MCD64A1焼失面積の検証 Validation of MODIS MCD64A1 burned area in boreal Eurasia

\*朱 春茂<sup>1</sup>、小林 秀樹<sup>1</sup>、金谷 有剛<sup>1</sup>、斎藤 正彦<sup>1</sup>
\*Chunmao Zhu<sup>1</sup>, Hideki Kobayashi<sup>1</sup>, Yuqo Kanaya<sup>1</sup>, Masahiko Saito<sup>1</sup>

#### 1. 海洋研究開発機構

1.Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Biomass burning plays an important role in affecting vegetation dynamics, biogeochemical cycle of carbon, nitrogen and other elements, atmospheric chemistry and the climate. Boreal Eurasia is one of the most important regions where large areas are burned every year. Numerous particles and greenhouse gases are emitted from these fires. These pollutants could be transported to the industrialized region in East Asia, the western North Pacific and the Arctic. Atmospheric transport of fire-emitted pollutants to the Arctic and the consequential deposition is believed to accelerate the arctic warming. To better understand the effect of fires in boreal Eurasia on the arctic, an accurate assessment of burned area from the boreal Eurasia is necessary.

The Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) Collection 5.1 direct broadcast monthly burned area product MCD64A1 is widely used for global burned area mapping. MCD64A1 data was also used for the estimation of global fire emissions such as Global Fire Emissions Database, Version 4 (GFED4). However, uncertainties in burned area estimations could be introduced due to the "moderate resolution" character of MCD64A1 (~500m). Therefore, a comparison of the burned areas of MCD64A1 with those generated from higher resolution satellite products could provide basic and crucial information for its accuracy assessment and further applications. However, there are few studies on the validation of MCD64A1, especially in the boreal Eurasia.

In this work, we used Landsat 7 surface reflectance, along with a few commercial satellite scenes from WorldView, GeoEye and RapidEye as the reference scenes to derive the burned areas in a burning season in 2012 (mostly July to September). A wide range of ecotypes over wide geographic regions spanning from the western Russia/Kazakhstan to the eastern Siberia were covered. Each of these burned areas was compared with the corresponding region of MCD64A1 for the same periods. Our preliminary results indicated that MCD64A1 could well capture the large fires, while those less than 100 ha are prone to be undetected. We also found that MCD64A1 tends to underestimate the burned area in general. Based on the error statistics, we suggested the accuracy levels and precautions for applications in each ecotype.

NICAM-TMデータ及び航空機観測データによるGOSAT/TANSO-FTS TIR CH4データの評価 Evaluation of GOSAT/TANSO-FTS TIR CH4 data using NICAM-TM and aircraft CH4 data

\*野々垣 亮介 $^{2,1}$ 、齋藤 尚子 $^2$ 、今須 良 $^3$ 、塩見 慶 $^4$ 、丹羽 洋介 $^5$ 、青木 周司 $^6$ 、森本 真司 $^7$ 、町田 敏暢 $^8$ 、松 枝 秀和 $^5$ 、澤 庸介 $^5$ 、坪井 一寬 $^5$ 

\*Ryosuke Nonogaki<sup>2,1</sup>, Naoko Saitoh<sup>2</sup>, Ryoichi Imasu<sup>3</sup>, Kei Shiomi<sup>4</sup>, Yosuke Niwa<sup>5</sup>, Shuji Aoki<sup>6</sup>, Shinji Morimoto<sup>7</sup>, Toshinobu Machida<sup>8</sup>, Hidekazu Matsueda<sup>5</sup>, Yousuke Sawa<sup>5</sup>, Kazuhiro Tsuboi<sup>5</sup>

- 1.千葉大学大学院融合科学研究科、2.千葉大学CEReS、3.東京大学大気海洋研究所、4.JAXA、5.気象庁気象研究所、6.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、7.東北大学大学院理学研究科、8.国立環境研究所
- 1.The Graduate School of Advanced Integration Science, Chiba university, 2.Center for Environmental Remote Sensing, 3.Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo, 4.JAXA, 5.Meteorological Research Institute, 6.Center for Atmospheric and Oceanic Studies, Graduate School of Science, Tohoku University, 7.Graduate School of Science, Tohoku University, 8.National Institute for Environmental Studies

GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) は主要な温室効果ガスである二酸化炭素とメタンの濃度を宇宙から観測することを主目的として2009年1月23日に打ち上げられた世界初の衛星である。本研究では、GOSATのTANSO/FTSセンサの熱赤外 (TIR) バンドのスペクトルから導出されたメタン濃度データを、全球大気輸送モデルNICAM-TM (Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model-based Transport Model) [Niwa et al., 2011]データ及び航空機観測データとの比較を通して評価をした。GRENE北極気候変動研究事業で実施されたCONTRAIL航空機観測(CONTRAIL/GRENE)による北半球高緯度のメタン濃度データ[Sawa et al., 2015]を用いて、上部対流圏、下部成層圏に分けて等温位面解析を行い、厚木ー南鳥島間を飛行する気象庁の航空機観測のメタン濃度データ[Niwa et al., 2014]を用いて、対流圏中上層におけるメタン濃度高度プロファイル比較を行った。ここでは、TANSO-FTSのTIRデータと各航空機データを比較する際のTIRデータの抽出条件を、航空機の観測地点から水平方向に±3°以内、観測日時から前後3日以内とした。

等温位面解析の結果、CONTRAIL/GRENEデータのメタン濃度が成層圏で大きな季節変動を示すのに対して、TIRデータのメタン濃度は季節変動が小さく、CONTRAIL/GRENEデータのメタン濃度よりも常に高い濃度を示した。また、NICAM-TMデータのメタン濃度の季節変動は、TIRデータのメタン濃度の変動よりもさらに小さいことがわかった。南鳥島上空のメタン濃度の高度プロファイル比較では、冬春季は高度6km付近でTIRデータと航空機観測データが30ppb以内で一致したのに対し、夏季においては両者の差は30-50ppbに広がることが分かった。さらに、比較の際のTIRデータの抽出条件を変更した際の比較結果への影響や、厚木-南鳥島間の航空機の水平飛行時におけるメタン濃度の緯度分布についても調査した。

## 謝辞

本研究で使用したシベリア域のメタンデータはGRENE北極気候変動研究事業で得られたデータです。また、南鳥島上空のメタンデータは気象庁の観測事業によって得られたデータです。

キーワード:GOSAT、CH4、評価 Keywords: GOSAT, CH4, evaluation 連続吸収の不確定性がGOSAT/TANSO-FTS TIRバンドのメタンリトリーバルに与える影響の評価 The impact on CH<sub>4</sub> retrieval of GOSAT/TANSO-FTS TIR band from the uncertainty of the continuum absorption

\*山田 明憲<sup>1</sup>、齋藤 尚子<sup>1</sup>、今須 良一<sup>2</sup>、久世 暁彦<sup>3</sup>、塩見 慶<sup>3</sup>
\*Yamada Akinori<sup>1</sup>, Naoko Saitoh<sup>1</sup>, Ryoichi Imasu<sup>2</sup>, Akihiko Kuze<sup>3</sup>, Kei Shiomi<sup>3</sup>

1.千葉大学環境リモートセンシング研究センター、2.東京大学大気海洋研究所、3.宇宙航空研究開発機構 1.Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, 2.Atmosphere and Ocean Research Institude, University of Tokyo, 3.Japan Aerospace Exploration Agency

The thermal infrared (TIR) band of Thermal and Near-infrared Sensor for Carbon Observation Fourier Transform Spectrometer (TANSO-FTS) onboard Greenhouse Gases Observing Satellite (GOSAT) observes CH  $_4$  profile at wavenumber range from 1210 cm $^{-1}$  to 1360 cm $^{-1}$  including CH $_4$  v $_4$  band. The current retrieval algorithm (V1.0) uses MT CKD continuum model (Mlawer et al., 2012) to calculate optical depth of continuum absorption for forward spectrum. The temperature coefficient of the water self continuum of MT CKD model overestimated about 30% at the CH $_4$  retrieval band compared to that of BPS continuum model (Paynter and Ramaswamy, 2011). We study the impact on CH $_4$  retrieval from the uncertainty of the continuum absorption.

We used 713 spectra observed by GOSAT/TANSO-FTS TIR band from March 2010 to September 2011. These observations satisfy following criteria. The coincidence criteria of distance and time between GOSAT-TIR observations and HIPPO aircraft observations (Wofsy et al., 2012) are 300 km and 72 hours, respectively, and the degrees of freedom for signal are greater than 0.7. We calculated forward spectrum using retrieved profile by LBLRTM V12.2 (Clough et al., 2005) and convolution of the forward spectrum and sinc function as an instrumental line shape function to set to low wavenumber resolution.

The spectral residual (forward spectrum - GOSAT-TIR observation spectrum) had fine structure from -20 K to 20 K, which was made from line absorption. We calculated moving average with window width of 11 channels to separate continuum from line absorption. The average of the moving-averaged residual were -2.0 K. According to Saitoh et al. (2009), 1 K difference of surface temperature make 5% bias at the altitude of 400 mbar in  $\mathrm{CO}_2$  profile, there is a potential for bias in  $\mathrm{CH}_4$  profile. There exist  $\mathrm{H}_2\mathrm{O}$  self continuum,  $\mathrm{H}_2\mathrm{O}$  foreign continuum,  $\mathrm{CO}_2$  continuum, and  $\mathrm{O}_2$  continuum in this band. The wavenumber dependencies of  $\mathrm{H}_2\mathrm{O}$  self continuum and  $\mathrm{CO}_2$  continuum are small in this band, while that of  $\mathrm{H}_2\mathrm{O}$  foreign continuum and  $\mathrm{O}_2$  continuum are large.

We calculated forward spectra using 10% larger continuum absorption coefficient than MT CKD model to know the impact on brightness temperature spectrum from continuum absorption. The brightness temperature changed about -0.00001 K and 0.01 K when we used 10% larger  $\rm CO_2$  continuum absorption and 10% larger  $\rm H_2O$  self continuum absorption, respectively. The differences on brightness temperature were much smaller than the averaged residual. We are trying comparing GOSAT-TIR  $\rm CH_4$  profile retrieved using 10% bias continuum absorption and other continuum model with HIPPO profile. References:

Mlawer, E. J., et al. (2012) Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences 370, 2520-2556.

Paynter, D. and Ramaswamy, V. (2011) JGR 116, D20302.

Saitoh, N., et al. (2009) JGR 114, D17305.

Wofsy, S. C., et al. (2012) http://dx.doi.org/10.3334/CDIAC/hippo\_010.

GOSAT-2の検証に向けた流跡線解析による衛星データと地上観測データとのマッチアップ手法の開発 Development of a new match-up method of the satellite and ground-based greenhouse gases data by trajectory analysis for the GOSAT-2 data validation

\*中津留 高広1、森野 勇1、内野 修1、吉田 幸生1、井上 誠2

- 1.国立環境研究所、2.秋田県立大学
- 1.National Institute for Environmental Studies, 2.Akita Prefectural University

The GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) was launched in January 2009 and has been operating jointly by MOE, JAXA and NIES. GOSAT is the world's first spacecraft designed specifically to measure the concentrations of carbon dioxide and methane, the two in the major greenhouse gases. Currently, GOSAT-2 is under development. Many satellite data have been compared to ground-based data, which have higher accuracy and precision. Satellite and ground-based instruments generally observe target quantity with different spatial scale/position and different time. Therefore, it is important to find more plausible coincidence criteria between them to validate satellite data.

The SWIR (Short Wavelength InfraRed) surface scattered solar spectra observed by the TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation –Fourier Transform Spectrometer) onboard GOSAT is used to retrieve column-averaged dry-air mole fractions of carbon dioxide and methane (XCO 2 and XCH4). TCCON (Total Carbon Column Observing Network) is a ground-based observation network using Bruker IFS 120HR/125HR high-resolution fourier transform spectrometers. The GOSAT data, XCO2 and XCH4, has been validated using TCCON data. However, GOSAT and TCCON data are not completely spatio-temporally matched due to characteristics of the satellite orbit.

For example, one of the co-location methods uses a geometric distance between GOSAT and TCCON data to obtain matched data (Geophysical co-location method, e.g., Morino et al., 2011). Validation of GOSAT requires statistically significant match-up number but there is not enough match-up number with geophysical co-location method. In the case of  $\rm XCO_2$ , various methods for increasing the number of match-up data have been developed: the same potential temperature field at 700-hPa as a proxy for equivalent latitude for  $\rm CO_2$  gradients (Keppel-Aleks et al., 2011, Wunch et al., 2011), and the same concentration field predicted or assimilated with the atmospheric transport model (Guerlet et al., 2013). For the time gap, it has been used the same day or within the time range of GOSAT overpass time because GOSAT has three-day revisit and sun-synchronous orbit with a local time around 13h at descending. Increasing the number of match-up data in consideration of the gaps of time and space is important for advanced validation.

In this study, we develop a new match-up method utilizing the forward and backward trajectory analyses from GOSAT observation position by HYSPLIT model. The new method is applicable to other gases not only  $\mathrm{XCO}_2$  using flow of air masses. We show the result of analyzed bias variation with the spatio-temporal gap and the effectiveness of the developed method together with results using other match-up methods.

キーワード:GOSAT、TCCON、マッチアップ

Keywords: GOSAT, TCCON, match-up

<sup>\*</sup>Takahiro Nakatsuru<sup>1</sup>, Isamu Morino<sup>1</sup>, Osamu Uchino<sup>1</sup>, Yukio Yoshida<sup>1</sup>, Makoto Inoue<sup>2</sup>

Continuous measurement of  ${\rm CO_2}$  and  ${\rm CH_4}$  concentration from a tower network (JR-STATION) over Siberia

\*Motoki Sasakawa<sup>1</sup>, Toshinobu Machida<sup>1</sup>, Noritsugu tsuda<sup>2</sup>, Keiichi Katsumata<sup>1</sup>, Mikhail Arshinov<sup>3</sup>, Denis Davydov<sup>3</sup>, Alexandrov Fofonov<sup>3</sup>

1.National Institute of Environmental Studies, 2.Global Environmental Forum, 3.Institute of Atmospheric Optics, Russian Academy of Sciences, Siberian Branch, Russia

Continuous measurements of  $\mathrm{CO}_2$  and  $\mathrm{CH}_4$  concentration have been carried out with a tower network in Siberia (JR-STATION: Japan-Russia Siberian Tall Tower Inland Observation Network) in order to study the spatial and temporal variations of  $\mathrm{CO}_2$  and  $\mathrm{CH}_4$  in the forest, steppe, and wetland regions and estimate the distribution of the flux over this huge area (Sasakawa et al., 2010) where only a few atmospheric investigations were made.

The JR-STATION consists of 6 towers (Figure) located at Berezorechka (BRZ) since 2002, at Karasevoe (KRS) since 2004, at Demyanskoe (DEM) and Noyabrsk (NOY) since 2005, at Azovo (AZV) since 2007, and at Vaganovo (VGN) since 2008. Air samples taken at two heights (~85 m) on each tower were analyzed with an NDIR (LI-COR, LI-820) for  $\rm CO_2$  and a  $\rm SnO_2$  semiconductor sensor (Suto et al., 2010) for  $\rm CH_4$  after passing through the line with a glass water trap, a Nafion membrane dryer (PERMA PURE, MD-050-72F-2), and a magnesium perchlorate. Measurement precision was  $\pm 0.3$  ppm for  $\rm CO_2$  and  $\pm 5$  ppb for  $\rm CH_4$ .

Both  $\mathrm{CO}_2$  and  $\mathrm{CH}_4$  concentration showed clear diurnal variation during summer mainly due to the diurnal variation of the PBL height (Sasakawa et al., 2012), which is pronounced in inland continental locations such as Siberia. Sasakawa et al. (2013) reported that daytime (13:00-17:00 LST) mean data observed at the towers can capture the characteristic of  $\mathrm{CO}_2$  concentration in the PBL well during dormant season, and growing season (June-August) with a negative bias of -2.4±0.8 ppm (80 m inlet). This bias is characteristic of close ground observation at high source/sink region. Using the daytime mean, spatial and temporal variations in annual and decadal scale were obtained for Siberia; e.g. the  $\mathrm{CO}_2$  drawdown in the summer of 2010 in West Siberia was much shallower than in 2009. This result is consistent with the report that carbon uptake at Eurasia in the summer of 2010 was reduced because of the heat wave in Eurasia driving biospheric fluxes and fire emissions (Guerlet et al., 2013).

We have started to install a Cavity Ring-Down Spectroscopy (CRDS; Picarro inc., G2401) to renew the antiquated system. Branching before the magnesium perchlorate, sample air flowed into the CRDS through a Nafion dryer (PERMA PURE, MD-050-72S-1). The flow rate was controlled at the same value for the original path (35 ml/min) with a mass flow controller. The water vapor was kept at <0.01 % in this condition, which value is good enough for water correction of the CRDS (Nara et al., 2012). The CO<sub>2</sub> concentration in compressed dry natural air measured with the CRDS (391.85±0.04 ppm) showed good agreement with that measured with the NDIR (391.72±0.18 ppm). We will present preliminary atmospheric data observed with this modified system at KRS in the presentation.

#### References

Guerlet, S. et al., Geophys. Res. Lett. 40, 2378-2383, 2013.

Nara, H. et al., Atmos. Meas. Tech. 5, 2689-2701, 2012.

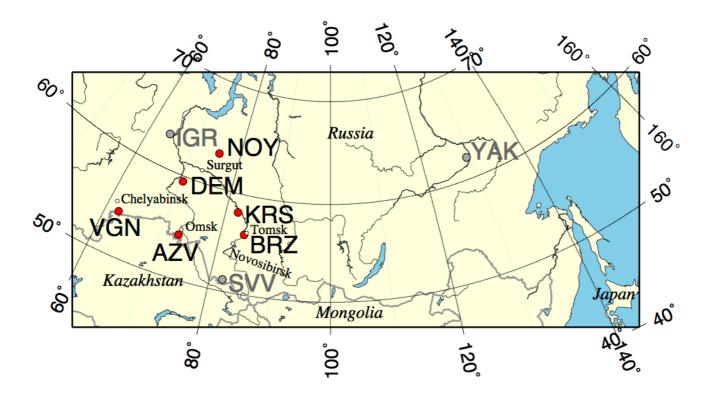
Sasakawa, M. et al., Tellus 62B, 403-416, 2010.

Sasakawa, M. et al., Tellus 64B, doi:10.3402/tellusb.v64i0.17514, 2012.

Sasakawa, M. et al., J. Geophys. Res. 118, 1-10, doi:10.1002/jgrd.50755, 2013.

Suto, H. et al., J. Atmos. Ocean. Tech. 27, 1175-1184, 2010.

Keywords: Siberia, Carbon dioxide, Methane, tower observation, CRDS



酸素や炭素同位体の測定に基づく大気 $\mathrm{CO}_2$ 濃度変動成分の起源推定法の開発 Estimation of the  $\mathrm{CO}_2$  source by measuring oxygen and carbon isotopes in atmosphere

\*保科 優<sup>1</sup>、遠嶋 康徳<sup>1</sup>、寺尾 有希夫<sup>1</sup>、勝又 啓一<sup>1</sup>、向井 人史<sup>1</sup>、町田 敏暢<sup>1</sup>、遅野井 祐美<sup>1</sup>
\*Yu Hoshina<sup>1</sup>, Yasunori Tohjima<sup>1</sup>, Yukio Terao<sup>1</sup>, Keiichi Katsumata<sup>1</sup>, Hitoshi Mukai<sup>1</sup>, Toshinobu Machida<sup>1</sup>, Yumi Osonoi<sup>1</sup>

#### 1.国立環境研究所

1.National Institute for Environmental Studies

都市部や大陸、またはその周辺部で観測される大気中の二酸化炭素( $CO_2$ )濃度には比較的短期間(数時間~数日)の変動がしばしば観測される。このような変動の主な原因は生物圏や化石燃料燃焼(これには石炭、石油、天然ガス等の燃焼が含まれる)から発生する $CO_2$ の直接の影響と考えられる。もし観測される濃度変動に対する発生源ごとの寄与率が分かれば、大気輸送モデルを用いて推定される各放出量の不確かさを低減できると期待される。そこで本研究では $CO_2$ 濃度と同時に酸素濃度や炭素安定同位体、放射性炭素同位体を測定することで各種発生源の寄与率を推定する手法の確立を目指す。燃焼過程では酸素と $CO_2$ が交換するが、その際の $O_2$ :C交換比は化石燃料の種類によって異なる。また、化石燃料の炭素には $CO_2$ が含まれないため、 $CO_2$ の測定によって生物起源と化石燃料起源を分別することができる。さらに、 $CO_2$ の濃度変動に伴う酸素、 $CO_2$ の変動を総合的に解析することにより、各種発生源の寄与率を推定できると考えられる。

本発表では上記手法の応用として、つくばで実施した大気観測の結果について発表する。なお、 $CO_2$ および酸素濃度は連続測定により、また、 $^{13}$ Cおよび $^{14}$ Cはボトルサンプリングにより求めた。一例として、2015年7-8月の日中の結果を示すと、 $CO_2$ とその $\Delta^{14}$ Cとの関係からは、 $CO_2$ 濃度変化の $\delta$ 、7割が化石燃料起源と推定された。また、 $^{14}$ Cの結果を用いて生物起源成分を除いた化石燃料成分の $-O_2$ :C比を求めると1.37-1.41となり石油の交換比率(R=1.44)に近い値となった。この傾向は $^{13}$ Cの結果とも整合的であった。

FTIRで観測されたつくばにおけるエタンの経年変化

Temporal variation of the total column of ethane observed with FTIR at Tsukuba

\*村田 功<sup>1</sup>、中島 英彰<sup>2,3</sup>、森野 勇<sup>2</sup> \*Isao Murata<sup>1</sup>, Hideaki Nakajima<sup>2,3</sup>, Isamu Morino<sup>2</sup>

1.東北大学大学院環境科学研究科、2.国立環境研究所、3.内閣府 総合科学技術・イノベーション会議事務局 1.Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, 2.National Institute for Environmental Studies, 3.Council for Science, Technology and Innovation, Cabinet Office, Government of Japan

東北大学と国立環境研究所では、国立環境研究所所有の高分解能フーリエ変換型赤外分光計(FTIR)を用い て、つくばにおいて1998年12月より大気微量成分の地上観測による研究を行っている。今回報告するC,H,はCH, に次いで多く存在する炭化水素類であり、化学反応過程も類似した部分が多い。そのため、 $C_2H_6$ が $CH_4$ の濃度に 影響することによる間接的な温室効果がある。また、汚染大気中のオゾン生成に寄与する他、CyHgの酸化過程 で生成するアセトアルデヒド(CH₂CHO)とNO₂からPeroxyacetyl nitrate(PAN)が生成され、これが窒素酸化物の 長距離輸送に寄与することから、越境大気汚染にも寄与する。発生源は天然ガス、バイオ燃料、バイオマス燃 焼等人為起源が主であり、そのため地表付近の濃度は北半球では数ppbv程度である一方、南半球では数百 pptvといった値が報告されている。しかし、FTIRによるスイス・ユングフラウでの観測 [Franco et al., 2015]ではモデルが観測値より30%近く低く、発生量を過小評価している可能性が高い。また、経年変化につい ては近年若干減少傾向にあったものが2009年頃から増加に転じているが、原因はまだよく分かっていない。 FTIR観測の国際的グループであるNDACC/IRWGではこのようなC,Hgの変動要因を解明するため、世界各地の FTIR観測の結果を総合して解析することになり、我々もつくばの観測結果を提供する予定である。解析にはロ ジャーズ法を用いたスペクトルフィッティングプログラムSFIT2を使用し、Franco et al., [2015]と同様のパ ラメータで行っている。ただし、解析に用いる波数領域は3μm付近の①2976.66 - 2977.059 cm<sup>-1</sup>と②2983.20 -2983.50 cm<sup>-1</sup>のふたつで、Franco et al., [2015]で用いているもう一つの領域③2986.45 - 2986.85 cm<sup>-1</sup>は用 いない。これは③の領域にはH,0の強い吸収線があり、日本のような高湿度地域では解析に適さないためであ る。

現在は初期プロファイルの最適化が済んでおらずpreliminaryな解析ではあるが、2012年1年間について解析したところ、カラム全量で1.5 -3.5 x  $10^{16}$  molecule/cm<sup>-2</sup>程度となり、春に極大、秋に極小の季節変化が見られた。この値は同じくFTIRによる北海道での観測結果の1.76 - 3.36 x  $10^{16}$  molecule/cm<sup>-2</sup> [Zhao et al., 2002]と整合的で、やはりモデルから予測されるカラム全量よりかなり大きい。季節変化についてはユングフラウの結果も含めて一致する。この季節変化の要因は0Hとの反応による消滅が夏季に卓越するためと考えられる。講演では経年変化についての解析結果から、ユングフラウと同様な減少から増加へのトレンド変化が見られるかを議論する。

キーワード:フーリエ変換型分光計、温室効果気体、エタン

Keywords: FTIR, Greenhouse Gas, ethane

## 波長変調分光法を用いた大気中一酸化炭素のリアルタイム測定装置の開発

Development of a real-time measurement device of atmospheric carbon monoxide combined with mid-infrared wavelength modulation spectroscopy

\*橋本 知加良1、金田一 勇介1、戸野倉 賢一1

\*Chikara Hashimoto<sup>1</sup>, Yusuke Kindaichi<sup>1</sup>, Kenichi Tonokura<sup>1</sup>

#### 1.東京大学大学院新領域創成科学研究科

1.graduate school of frontier sciences

Carbon monoxide (CO) is emitted from incomplete combustion of fossil fuels and biomass. It affects the concentration of  $\mathrm{CO}_2$  and  $\mathrm{CH}_4$  through the reactions with hydroxyl radicals. The major method of the measurements of CO is NDIR. This method is highly sensitive and highly stable. There are a lot of data of the concentration of CO measured with NDIR, but they show only hourly average. In this study, we developed a mid-IR laser absorption spectrometer that uses a 4.57  $\mu$ m quantum cascade laser with wavelength modulation spectroscopy (WMS).

The absorption line for the measurements of CO was at 2190.02 cm $^{-1}$ . The laser was scanned at 1 Hz. The beam was collimated with  $CaF_2$  lens and introduced into the cell. The optical path length was 29.91 m. The signal from a photodetector was processed by the lock-in amplifier.

To assess signal stability and detection limit, 1.02 ppm CO gas was introduced into the WMS system. From the Allan variance plot, an optimum integration time of 145 s was derived. Averaging 145 times, the precision  $(1\sigma)$  of the measurement was 6.5 %.

For the measurement of the detection limit of this instrument, we collected the signal of different CO mixing ratio and made the calibration curve. From the slope and the averaged baseline deviation, the detection limit (SNR = 2) was found to be 0.094 ppm.

Measurements of outside air were conducted on the Kashiwa campus of The University of Tokyo over October 24-27, 2015. During the measurements of ambient air, the calibration was performed every 6-9 hours.

Outside air measurements were conducted over October 24-27, 2015. The CO mixing ratio during the measurements ranged from 0.097 ppm to 1.8 ppm. On the night of October 24, the concentration of CO increased continuously. The wind brew from south-southwest. In that direction, there is Keihin industrial area, so the emission from the factories in the area may have contributed to the CO mixing ratio increase. On October 25 the wind brew from northwest throughout the day. There are no big industrial areas in that direction. Car entrance was restricted because the campus was opened to the public. These may be the reasons the concentration of CO was steady and low.

We performed in situ measurements of CO mixing ratios in ambient air with a near-IR laser absorption spectrometer using WMS. We successfully detected CO mixing ratio change in the ambient air instantly.

2015 年夏季フィールドミュージアム多摩丘陵での光化学オゾン生成速度直接測定 Direct measurement of photochemical ozone production rate at the Field Museum Tamakyuryo in summer 2015

\*定永 靖宗 $^1$ 、川﨑 梓央 $^1$ 、鶴丸 央 $^2$ , $^3$ 、Sathiyamurthi Ramasamy $^2$ 、坂本 陽介 $^2$ 、伊東 賢介 $^2$ 、藤井 富秀 $^2$ 、加藤 俊吾 $^4$ 、中山 智喜 $^5$ 、松見 豊 $^5$ 、中嶋 吉弘 $^6$ 、松田 和秀 $^6$ 、梶井 克純 $^2$ , $^7$ 

\*Yasuhiro Sadanaga<sup>1</sup>, Shio Kawasaki<sup>1</sup>, Hiroshi Tsurumaru<sup>2,3</sup>, Ramasamy Sathiyamurthi<sup>2</sup>, Yosuke Sakamoto<sup>2</sup>, Ito Kensuke<sup>2</sup>, Fujii Tomihide<sup>2</sup>, Shungo Kato<sup>4</sup>, Tomoki Nakayama<sup>5</sup>, Yutaka Matsumi<sup>5</sup>, yoshihiro nakashima<sup>6</sup>, Kazuhide Matsuda<sup>6</sup>, Yoshizumi Kajii<sup>2,7</sup>

- 1.大阪府立大学、2.京都大学、3.現:金沢大学、4.首都大学東京、5.名古屋大学、6.東京農工大学、7.国立環境研究所
- 1.Osaka Prefecture University, 2.Kyoto University, 3.Now at Kanazawa University, 4.Tokyo Metropolitan University, 5.Nagoya University, 6.Tokyo University of Agriculture and Technology, 7.National Institute for Environmental Studies

Photochemical production processes of ozone are non-linear with respect to concentrations of ozone precursors such as nitrogen oxides (NO<sub>w</sub>) and volatile organic compounds (VOCs). In addition, ozone concentration variations are influenced by meteorological factors such as transport and deposition as well as photochemistry. It is useful if the meteorological and photochemical factors can be divided to discuss ozone budgets. In order to discuss only "photochemical" factors for ozone production, a direct measurement system of a photochemical ozone production rate has been recently developed. Actually, this system measures oxidant  $(0x = 0_x + N0_y)$  production rate (P-L(0x)). The use of 0x can ignore the concentration variations of  $\mathrm{O}_{x}$  by the reaction of  $\mathrm{O}_{x}$  with NO. Details of a P-L(0x) were described in JPGU Meeting 2015, Briefly, this system has "reaction" and "reference" chambers. The reaction and reference chambers are made of quartz and Pyrex, respectively. In addition, an outer wall of the reference chamber is coated with a UV-cut film. Both the chambers were put in an outside to be exposed directly to sunlight. Ambient air is introduced into both the chambers. Photochemical reactions proceed to generate Ox in the reaction chamber while Ox is not generated in the reference chamber. The difference of Ox concentrations ( $\Delta$ Ox) in air from the two chambers is the photochemical net Ox production in the reaction chamber. The P-L(0x) is obtained by dividing  $\Delta 0x$  by a mean residence time of air in the reaction chamber. 0xconcentrations were obtained as follows. Ozone in Ox is converted into NO<sub>2</sub> by the reaction of O<sub>3</sub> with large excess of NO, and then the  $\mathrm{NO}_{2}$  concentration is measured by a cavity attenuated phase shift spectroscopy technique.

The field campaign was performed at the Field Museum Tamakyuryo (FM Tama) of the Tokyo University of Agriculture and Technology from July 20 to August 10, 2015. Total OH reactivity, photolysis frequencies (e.g.  $J(0^1D)$ ), meteorological parameters,  $O_3$ , CO,  $NO_x$ , VOCs concentrations, and so on as well as P-L(Ox) were observed simultaneously. In this presentation, the main factor of ozone concentration increases (photochemical or meteorological factor), and relationship among P-L(Ox),  $J(O^1D)$  and concentrations of ozone precursors were discussed. In addition, P-L(Ox) variations by addition of NO or isoprene into this instrument were investigated on August 3 and 7, and the results of this experiment will also be briefly reported.

キーワード:オゾン、光化学生成速度、窒素酸化物、揮発性有機化合物

Keywords: Ozone, Photocheimcal production rate, Nitrogen oxides, Volatile organic compounds

地上からのリモートセンシングによる水蒸気の鉛直カラム量・高度分布観測の相互比較 Intercomparisons of water vapor vertical column amount and vertical distribution observed by ground-based remote sensing techniques

\*小沼 聡<sup>1</sup>、入江 仁士<sup>2</sup>、Khatri Pradeep<sup>2</sup>
\*Satoshi Onuma<sup>1</sup>, Hitoshi Irie<sup>2</sup>, Pradeep Khatri<sup>2</sup>

- 1. 千葉大学大学院融合科学研究科、2. 千葉大学環境リモートセンシング研究センター
- 1.Graduate School of Advanced Integration Science, Chiba University, 2.Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

水蒸気は自然起源の温室効果の約6割を占めるなど、地球の気候を決定する重要な役割を果たしている。対流圏中の水蒸気の鉛直カラム量(可降水量; PWC)や鉛直分布の定常連続観測を行うために、地上からのリモートセンシングは極めて有効であるが、定量的な評価は限られている。こういった背景の下、本研究では、2015年12月22-31日の10日間、千葉大学において3台の地上設置型のマイク口波放射計(WVR1125、MP1502、MP1504)の同時観測を実施した。加えて、4台の多軸差分吸収分光法(MAX-DOAS)装置をそれぞれ東西南北に向けた4AZ-MAXDOASシステム、および、NASA AERONETのCIMELサンフォトメータによる観測も実施した。まず、10日間のうち比較的天気が安定していた25-31日の7日間に着目し、WVR1125を基準としてPWC値の差を算出したところ、マイク口波放射計同士の比較では、検定定数の不確かさに起因して、約20%の系統的な差が見られた。一方、CIMELや4AZ-MAXDOASとの差は約10%以内と比較的小さいことが分かった。これらの結果を踏まえ、23-24日の降雨の前後において比較を行ったところ、降雨後はマイク口波放射計同士において検定定数の違いでは説明できないほどの大きな差が生じていた。これは、降雨および降雨後にマイク口波放射計のレドームに付着した雨滴による干渉の影響だと考えられた。この影響は雨が止んだ後、12時間残った。さらに、降雨直前に着目したところ、MAX-DOASがマイク口波放射計の値に比べ過小となっていた事例が見つかった。MAX-DOASとMP1504による水蒸気の鉛直分布を比較したところ、MAX-DOASの感度が低い高高度(7-8km)に水蒸気を多く含んだ空気が移流したことが原因であることが示唆された。

キーワード:水蒸気、マイクロ波放射計、MAX-DOAS、CIMEL

Keywords: Water vapor, microwave radiometer, MAX-DOAS, CIMEL

# MAX-DOASによって観測された九州の二酸化硫黄濃度の要因解析

Causes leading to enhancements in sulfur dioxide concentration observed by MAX-DOAS in Kyusyu

- \*奥﨑 昂也1、入江 仁士1
- \*Takaya Okuzaki<sup>1</sup>, Hitoshi Irie<sup>1</sup>
- 1.千葉大学
- 1.Chiba University

代表的な大気汚染物質のひとつである二酸化硫黄( $SO_7$ )は、酸性雨やエアロゾル(近年問題になっているPM2.5を 含む)の重要な前駆気体としての役割を通じて、人体や生態系、気象などに影響を及ぼすため、その濃度変動要 因を解明することは重要である。SO,の観測はこれまでは主に地表濃度に焦点が当てられ、エアロゾルの予測モ デルへのデータ同化等の応用研究に利用する上では空間代表性に留意する必要があった。そのような中、本研 究では、アジア大陸からの長距離輸送や火山ガスなど様々な影響を受けることが考えられる九州地方(福岡県春 日市)で多軸差分吸収分光法(Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy: MAX-DOAS)と呼ぶ 地上リモートセンシング手法による連続観測を行った。波長域310-320 nmの測定スペクトルをDOAS法で解析 し、高度0-1 km層内のSO<sub>2</sub>平均濃度を水平スケール10 km程度で導出した。2014年7-8月の期間で連続的な観測が できている日において、SO2濃度が5 ppbvを超える日を7日間特定できた。これらの日を対象にバックトラ ジェクトリー解析を行ったところ、火山起源と大陸起源の2つのケースに分類できることが分かった。火山起源 については、桜島付近を通過した空気塊が7月8日に、阿蘇山を通過した空気塊が7月30日、8月7日および8月 13日に観測地点に到達したことが分かった。特に阿蘇山の影響を受けていると考えられる3日間はいずれも10 ppbvを超える値を示していた。これらのケースに加え、8月14日の高濃度ケースについては影響を及ぼした火山 を特定することは難しかったが、九州南部の火山の影響を示唆した。他方、7月12日と21日は両日とも火山の影 響は受けていなかった。7月12日は中国からの長距離輸送の影響が示唆された。7月21日はおよそ20 ppbvまで達 する濃度上昇が観測されたが、これは韓国南部を通過した空気塊が短期間で春日市まで輸送されたためと考え られた。

キーワード:二酸化硫黄、MAX-DOAS、火山

Keywords: SO2, MAX-DOAS, valcano

太陽光発電駆動型MAX-DOAS(Eco-MAXDOAS)装置の開発 Development of photovoltaic-driven MAX-DOAS system (Eco-MAXDOAS)

\*入江 仁士<sup>1</sup>、加藤 知道<sup>1</sup>
\*Hitoshi Irie<sup>1</sup>, Tomomichi Kato<sup>1</sup>

#### 1.千葉大学

1.Chiba University

It is recognized that the Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) technique is suitable for routine observations of atmospheric constituents as its setup is simple, power consumption is low, and fully automated long-term operation without absolute radiometric calibration is possible. In addition, it is also a powerful technique with abilities enabling simultaneous measurements of aerosols and their gaseous precursors, such as nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) and sulfur dioxide  $(SO_2)$ . To exploit its further applications, we are developing the photovoltaic-driven MAX-DOAS system, called Eco-MAXDOAS. By utilizing the Eco-MAXDOAS, we expect to make multi-component air quality observations possible in areas with problems on stable power supply. For this development, we removed a temperature controller to reduce the power consumption. Instead, a shutter was introduced just before the entrance slit of the spectrometer. With this modification, it was made possible to take dark count measurements more often than for the normal MAX-DOAS instrument by closing the shutter between observations at different elevation angles. We tested the Eco-MAXDOAS and found that the spectrometer temperature varied by less than ±0.3 degrees for 3 minutes interval of changing elevation angles. Using dark count data taken before and after scattered sun light observations, the SNR was estimated to be about 10,000. This supports that analysis for a differential absorption as small as  $10^{-4}$  (0.01%) is possible. In addition, we compared the aerosol and NO2 data retrieved from Eco-MAXDOAS and MAX-DOAS observations, and we confirmed that the two retrieved values were usually almost the same but occasionally showed significant differences. To investigate the cause, we devised the 4AZ-MAXDOAS system, a set of 4 MAX-DOAS instruments directed toward different azimuth angels of north, south, east, and west. The observation with the 4AZ-MAXDOAS confirmed that the data can show significant differences depending on the azimuth angle. We concluded that the differences were caused by the spatial inhomogeneity of atmospheric components, supporting the consistency between Eco-MAXDOAS and MAX-DOAS data.

キーワード: MAX-DOAS、太陽光発電、NO2、HCHO

Keywords: MAX-DOAS, PV, NO2, HCHO

# ナノ粒子分析法評価のための凝縮粒子発生法の開発

Development of a particle production method for calibration of a nanoparticle composition analyzer

\*村上 功一1、大竹 啓記1、竹川 暢之1

\*Koichi Murakami<sup>1</sup>, Hiroki Otake<sup>1</sup>, Nobuyuki Takegawa<sup>1</sup>

#### 1.首都大学東京大学院理工学研究科

1.Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Metropolitan University

### 1. 背景

大気中に浮遊する微粒子(エアロゾル)は大気汚染や気候変動に大きな影響を及ぼす。エアロゾルの生成過程を理解する上で、直径100 nm以下のナノ粒子の化学組成をオンライン分析することが重要である。そのような分析法(例えばエアロゾル質量分析法)の性能評価において、適切な粒径分布を持つテスト粒子を発生させることが必要となる。本研究の目的は、凝縮法に基づくナノ粒子発生装置を新たに試作し、粒径分布を決める要因とその制御方法を確立することである。

#### 2. 実験

本研究で試作する凝縮粒子発生装置は、オレイン酸の均一核生成とそれに続いて起こる凝縮成長に基づくものである。オレイン酸はこの方法に適した蒸気圧を持ち、取扱が容易である。また、発生した粒子は常温で液体であるため衝突時の跳ね返りが無視できるという利点がある。実験装置は蒸発器、冷却管、粒径分布測定器の三要素からなる。蒸発器はオレイン酸の液体を加熱し蒸気を作り出す。冷却管では急激な温度差に伴うオレイン酸の均一核生成で粒子を生成する。粒径分布測定器には走査型移動度分級装置(SMPS)を用いる。粒径分布を支配する主な要因には、蒸発器温度、流速、活性炭スクラバーが挙げられる。流速は過飽和度、経路内の滞留時間、冷却管下流への蒸気輸送量に影響を及ぼす。活性炭スクラバーは冷却器通過後の余剰のオレイン酸蒸気を取り除き、冷却器下流での凝縮成長を抑制する。これらのパラメータを変化させて粒径分布の変化を測定した。

## 3. 結果

粒径分布の各パラメータ(ピーク粒径、幅、モードの数)は、蒸発器温度、流量、活性炭スクラバーの有無に複雑に依存することが示された。特に、ピーク粒径の流量依存性は活性炭の有無によって逆の傾向を示した。活性炭有りの条件で流速を増加させることで、ナノ粒径域の実験に適した粒径分布(ピーク粒径40-50 nm)が得られることが分かった。発表では、近似的な理論計算に基づき粒径分布の変化を支配するメカニズムについて議論する。

キーワード:エアロゾル、ナノ粒子 Keywords: Aerosol, Nanoparticle 異なる大気環境下での新粒子生成:京都市内と東京多摩丘陵での観測の比較

New particle formation in different atmospheric environments: Comparison of Kyoto and Tokyo-Tama observations

\*車 裕輝 $^1$ 、中山 智喜 $^1$ 、松見 豊 $^1$ 、鶴丸 央 $^2$ 、Sathiyamurthi Ramasamy $^2$ 、坂本 陽介 $^2$ 、入江 学 $^2$ 、井田 明 $^2$ 、加藤 俊吾 $^3$ 、中嶋 吉弘 $^4$ 、松田 和秀 $^4$ 、梶井 克純 $^{2,5}$ 

\*Yuki Kuruma<sup>1</sup>, Tomoki Nakayama<sup>1</sup>, Yutaka Matsumi<sup>1</sup>, Hiroshi Tsurumaru<sup>2</sup>, Ramasamy Sathiyamurthi<sup>2</sup>, Yosuke Sakamoto<sup>2</sup>, Manabu Irie<sup>2</sup>, Akira Ida<sup>2</sup>, Shungo Kato<sup>3</sup>, yoshihiro nakashima<sup>4</sup>, Kazuhide Matsuda<sup>4</sup>, Yoshizumi Kajii<sup>2,5</sup>

1.名古屋大学、2.京都大学、3.首都大学東京、4.東京農工大学、5.国立環境研究所

1.Nagoya University, 2.Kyoto University, 3.Tokyo Metropolitan University, 4.Tokyo University of Agriculture and Technology, 5.National Institute for Environmental Studies

新粒子生成は大気エアロゾル粒子の重要な起源のひとつであり、その後の様々な物理・化学過程を経て地域・全球規模の気候や大気質に重大な影響を及ぼす。そのため新粒子生成の詳細なメカニズムを理解することは重要であり、都市域・森林・山岳での観測研究および室内実験研究が広く行われているが、依然として核生成とその後の粒子成長に関して未解明な部分が大きい。本研究では夏季に京都市内と東京多摩丘陵でエアロゾルの粒径分布測定を行うとともに、粒子生成に寄与しうる気相成分濃度の同時観測を行い新粒子生成発生の決定要因について検討した。

京都での観測は 2013 年 8 月 19 日から 9 月 11 日に京都市京都大学吉田キャンパスで行った。東京での観測は 2015 年 7 月 24 日から 8 月 8 日に八王子市東京農工大学フィールドミュージアム多摩丘陵で行った。エアロゾル粒径分布の測定には走査型移動度粒径測定器 (SMPS; TSI) を用いた。揮発性有機化合物 (VOC) 濃度の測定には陽子移動反応質量分析計 (PTR-MS; IONICON) を用いた。 $SO_2$  や  $O_3$  などの気相成分の同時測定も行った。また本研究での新粒子生成イベントの判定条件は Dal Maso ら<sup>1)</sup> の方法を参考に、新たな核生成モード (<30 nm) が出現後、そのモードが継続した場合を新粒子生成イベントとした。この新粒子イベントを粒径が時間とともに増大した場合と増大しなかった場合の 2 つに分類した。

京都観測では 23 日間の観測期間中少なくとも 7 日間で、 $\mathrm{SO}_2$ , VOC 濃度の増加に対応した新粒子生成イベントが発生した。一方で東京多摩観測では 16 日間の観測期間中では新粒子生成イベントは発生しなかった。両観測の間には全粒子表面積と  $\mathrm{SO}_2$  濃度に大きな差は無かったのに対し、東京多摩観測では VOC 濃度のうち、新粒子生成が発生しやすい昼間においてイソプレン濃度はモノテルペン濃度よりも非常に大きかった。本発表では新粒子生成イベント発生時と発生しなかった時のエアロゾル粒径分布の違いや、各種気相成分濃度の違いについて報告する予定である。

#### 参考文献

1) M. Dal Maso, M. Kulmala, I. Rippinen, R. Wagner, T. Hussein, P. P. Aalto, K. E. J. Lehtinen: *Boreal Env. Res.*, 10, 323 (2005).

キーワード:新粒子生成、エアロゾル粒径分布、二酸化硫黄、揮発性有機化合物

Keywords: new particle formation, aerosol particle number distribution, sulfur dioxide, volatile organic compounds

## 能登半島における新粒子生成の観測

Observation of new particle formation in Noto peninsula

\*表野 宏之1、松木 篤2、木ノ内 健人1

\*Hiroyuki Hyono<sup>1</sup>, Atsushi Matsuki<sup>2</sup>, Kento Kinouchi<sup>1</sup>

# 1.金沢大学 自然科学研究科、2.金沢大学 環日本海域環境研究センター

1.Graduate School of Natural Science & Technology Kanazawa University, 2.Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

## Introduction

The process by which new particles (Ultrafine particles having diameter of the range from several nm to several tens of nm) are formed from precursor gases in the atmosphere is one of the main factors that affect the number size distribution of aerosol particles. Since new particle formation is a first step for the aerosol particles to take shape and eventually act as Cloud Condensation Nuclei (CCN), it has important implications in understanding contributions of aerosols on the climate. Recently, studies in various observation sites have pointed out conditions favorable for the new particle formation (NPF). For example, if there are a lot of existing particles in atmosphere, NPF is less likely to occur (Kerminen et al.,2001), because gas molecule preferentially condense to existing particle. However, there have been few reports so far on the seasonality of NPF in coastal East Asia.

#### Method

We selected Noto Ground-based Research Observatory (NOTOGRO), located at the tip of the Noto Peninsula as observation site mainly for the following reasons. Firstly, the station is away from any densely populated areas such as Kanazawa city, where one can expect less anthropogenic effect from nearby cities. Secondly, we may be able to observe influence caused by the unique monsoon facing the coast of the Japan Sea. Number size distributions of aerosol particles were measured using a scanning mobility particle sizer (SMPS) system that consists of a differential mobility analyzer (DMA, Model 3081) and a condensation particle counter (CPC, Model 3776). The field measurement was conducted from September 2012 to October 2014. In addition,  $SO_2$  gas was continuously measured using (Model, 43B  $SO_2$  Analyzer), from which we calculated  $H_2SO_4$  proxy (Petäjä et al.,2009).

## Result&Discussion

Analysis of aerosol number size distributions confirmed that NPF events occurred frequently throughout the year. From two years of observation, some similarities were found in the seasonality of the occurrence frequency. We focused on the variation of  $SO_2$  gas which is considered as the main precursor of aerosol particles. Comparison with the number size distributions revealed that, the values of the  $H_2SO_4$  proxy were high in most cases when NPF events occurred. The daytime maximum values of the  $H_2SO_4$  proxy were extracted and compared among the days with and without NPF. As a result, the values of  $H_2SO_4$  proxy were relatively higher when the event occurred. These results suggested that the conditions favorable for the formation of sulfuric acid vapor are the major factors controlling the NPF in the studied region.

キーワード:エアロゾル、新粒子生成

Keywords: aerosol, new particle formation

開発したエアロゾル散乱全角度分布同時計測装置を用いた実大気粒子の測定 -散乱角度分布と化学組成の比較-

Measurement of ambient particles using a newly developed polar nephelometer -Relationship between scattering angular distributions and chemical compositions-

\*中川 真秀 $^1$ 、中山 智喜 $^1$ 、笹子 宏史 $^1$ 、車 裕輝 $^1$ 、矢井 ひかり $^2$ 、小川 修平 $^2$ 、鄧 彦閣 $^2$ 、持田 陸宏 $^2$ 、松見  $\overset{1}{=}$ 

\*Maho Nakagawa<sup>1</sup>, Tomoki Nakayama<sup>1</sup>, Hiroshi Sasago<sup>1</sup>, Yuki Kuruma<sup>1</sup>, Hikari Yai<sup>2</sup>, Shuhei Ogawa<sup>2</sup>, Yange Deng<sup>2</sup>, Michihiro Mochida<sup>2</sup>, Yutaka Matsumi<sup>1</sup>

- 1.名古屋大学宇宙地球環境研究所・大学院理学研究科、2.名古屋大学大学院環境学研究科
- 1. Graduate School of Science and Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, 2.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

## [はじめに]

エアロゾル粒子の地球温暖化への寄与の推定には、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。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。散乱角度分布は、粒子の化学組成、粒径、複素屈折率、形状に依存して複雑に変化することから、単一粒子の散乱角度分布を計測することで、粒子を分類でき、混合状態に関する情報が得られる可能性がある。尚、散乱角度分布は、入射光の偏光方向により異なることから、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(ポーラーネフェロメータ)を開発した<sup>1)</sup>。本研究では、実大気観測を実施し、得られた散乱角度分布と、エアロゾルの化学特性との関係について調べ、開発した装置が都市域の実大気エアロゾルの分類や混合状態の理解にどの程度有用であるか調べた。

## [ポーラーネフェロメータの概要]

開発したポーラーネフェロメータでは、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。光源には、YAGレーザーの第二高調波(A= 532 nm)を使用しており、粒子は42個の光検出器の中心でレーザーと当たり、その散乱光強度が前方散乱11.7度から後方散乱168.3度まで約7.8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Mie散乱領域での散乱の角度分布を測定した。

#### [実大気エアロゾル粒子の測定]

2015年7月1日から7月7日に名古屋大学東山キャンパス(35°09¢N, 136°58¢E, 60 m asl) において実大気エアロゾルの測定を行った。粒子は拡散ドライヤーを通した後、300°Cに加熱したステンレス管もしくは、室温のバイパスラインを通し、その後、微分型静電分級器(DMA) で粒径を選別した上で、ポーラーネフェロメータに導入した。加熱管とバイパスラインは、電磁バルブを用いて、15分毎に切り替えた。また、DMAでの選別粒径は、300 nmと500 nmを30分ごとに切り替えた。粒子の300°Cに加熱することで、無機塩や有機物の大部分は揮発し、除去され、主にブラックカーボン粒子が観測されると考えられる²)。そこで、加熱の有無により、散乱角度分布にどのように変化するか検討した。また、加熱管とフィルター光吸収法(PSAP)を組み合わせた手法によりブラックカーボンの重量濃度を、エアロゾル質量分析計(AMS)で有機物、硫酸塩、硝酸塩、アンモニウムの重量濃度を測定し、散乱角度分布の時間変化との比較を行った。本発表ではこれらの結果について報告する。Reference

- 1) Nakagawa, M., Nakayama. T., Sasago, H., Ueda, S., Venables. D. S., Matsumi, Y., Design and Characterization of a Novel Single-Particle Polar Nephelometer, *Aerosol Sci. Technol.* (in press).
- 2) Nakayama, T., Ikeda, Y., Sawada, Y., Setoguchi, Y., Ogawa, S., Kawana, K., Mochida, M., Ikemori, F., Matsumoto, K., Matsumi, Y., Properties of light-absorbing aerosols in the Nagoya urban area, Japan, in August 2011 and January 2012: Contributions of brown carbon and lensing effect, *J.*

Geophys. Res. Atmos., 119, 12721-12739 (2014).

キーワード: 散乱全角度分布、ポーラーネフェロメータ、化学組成

Keywords: scattering angular distribution, polar nephelometer, chemical compositions

## レーザー誘起蛍光-白熱法を利用した大気粒子の混合状態解析

Analysis of the Mixing State of Airborne Particles using a Tandem Combination of Laser-induced Fluorescence and Incandescence Techniques

\*竹谷 文一 $^1$ 、金谷 有剛 $^1$ 、中村 貴之 $^2$ 、武田 直樹 $^2$ 、小泉 裕之 $^2$ 、宮川 拓真 $^{1,3}$ 、Xiaole Pan $^1$ 、茂木 信宏 $^3$ 、平山 紀友 $^2$ 、竹川 暢之 $^{3,4}$ 

\*Fumikazu Taketani<sup>1</sup>, Yugo Kanaya<sup>1</sup>, Takayuki Nakamura<sup>2</sup>, Naoki Takeda<sup>2</sup>, Hiroyuki Koizumi<sup>2</sup>, Takuma Miyakawa<sup>1,3</sup>, Xiaole Pan<sup>1</sup>, Moteki Nobuhiro<sup>3</sup>, Noriyuki Hirayama<sup>2</sup>, Nobuyuki Takegawa<sup>3,4</sup>

## 1.海洋研究開発機構、2. 富士電機株式会社、3.東京大学、4.首都大学東京

1.Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 2.Fuji Electric Co. Ltd., 3.University of Tokyo , 4.Tokyo Metropolitan University

エアロゾル (大気中に浮遊する0.01-10 µmの微粒子)は、気候変動 (地球温暖化) へ大きな影響を及ぼすことが指摘されている。不完全燃焼などで発生するブラックカーボン(BC)粒子に関しては、直接効果、間接効果を通して気候変動に影響を強く及ぼしていることが示されており、その動態解明には精度の高い観測および測定が強く求められている。特に、BC粒子の混合状態はレンズ効果などの光学特性や、粒子の消失速度などに大きな影響を及ぼしていることが知られている。BC粒子の混合状態の知見をリアルタイムで取得することは、粒子の変質過程を理解する上で非常に重要である。これまで、我々の研究グループはレーザー誘起蛍光、レーザー誘起白熱検出装置をそれぞれ、開発、改良させてきた。本研究では、これらの装置を組み合わせることにより、同一の単一粒子からの蛍光および白熱光をリアルタイムに検出することに成功した。講演では、実大気計測の結果を報告する。

キーワード:ブラックカーボン、蛍光粒子、混合状態

Keywords: Black carbon, Fluorescent particles, Mixing state

リモートセンシングによる日本上空のエアロゾルトレンド解析とその評価

Trend analyses of aerosol optical thickness over Japan using long-term remote sensing observations and their evaluation

- \*畠山 嵩大<sup>1</sup>、入江 仁士<sup>2</sup>、Khatri Pradeep<sup>2</sup>
- \*Takehiro Hatakeyama<sup>1</sup>, Hitoshi Irie<sup>2</sup>, Pradeep Khatri<sup>2</sup>
- 1. 千葉大学大学院融合科学研究科、2. 千葉大学環境リモートセンシング研究センター
- 1.Graduate School of Advanced Integration Science, Chiba University, 2.Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

大気中のエアロゾルは、地球の気候を左右する極めて重要な因子である。しかし、その生成メカニズムは複雑 であるうえ、特に東アジア域においては年々の前駆気体の排出量の変動が激しいため、近年のエアロゾルの 年々のトレンドは十分に理解されていない。そこで、本研究では、SKYNET国際地上観測ネットワークの枠組み の下、日本の4地点(千葉、福江島、辺戸岬、宮古島)で長期にわたって取得したスカイラジオメータの500nmの エアロゾル光学的厚さ(AOT)のデータを用いて、日本上空のエアロゾルのトレンドを調べた。定量的なトレン ド解析を行うために、2015年11-12月に千葉においてNASA/AERONETのCIMELサンフォトメータやWMO/GAWのPFRラ ジオメータとの同時観測を行い、スカイラジオメータの精度評価を実施した。それぞれの比較から、CIMELサン フォトメータとの差が0.003±0.006、PFRラジオメータとの差が-0.007±0.004と非常に小さいことが分 かった。この結果を踏まえ、日本の4地点においてAOTの年々のトレンドを解析したところ、千葉では 2006-2014年に平均で約4%(0.01)/年、福江島では2008-2013年に約6%(0.02)/年、辺戸岬では2007-2013年に約 2%(0.005)/年、宮古島では2006-2012年に約3%(0.008)/年で減少したことが見積もられた。これはMODISの AOTデータから見積もられたトレンドと整合することが分かった。日本上空で観測されたこれらのエアロゾルの 減少トレンドの要因を探るために、オングストローム指数を用いて粒径別の解析を行ったところ、粒径が比較 的小さい場合においても同様に減少していることが分かった。このことは、少なくとも千葉においては、国内 の人為起源のエアロゾルが減少したことを示唆する。一方、他3地点での減少トレンドの要因を理解するため に、2009-2015年に中国上空で得られたMODISのAOTデータを解析したところ、山東省を中心とした限られた領域 を除いて減少トレンドを示した。本講演では、こういった中国のエアロゾル変動の影響も含め、日本上空の AOT減少トレンドの要因を詳細に議論する。

キーワード:エアロゾル、スカイラジオメータ、CIMEL、PFR、MODIS

Keywords: Aerosol, Sky radiometer, CIMEL, PFR, MODIS

# Study of aerosols and clouds using sky radiometer of SKYNET

\*Pradeep Khatri<sup>1</sup>, Hitoshi Irie<sup>1</sup>, Tamio Takamura<sup>1</sup>

1.Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

Long-term observations of aerosol chararacteristics over four typical SKYNET sites (Chiba, Fukuejima, Miyakojima, and Hedo) within Japan are analyzed to clarify the seasonal dependent characteristics of aerosols of different origins and their impacts on atmospheric heat budget. We found optically thicker aerosols with significant amount of light absorbing coarse-mode particles in the spring season. Such light-absorption phenomenon of coarse-mode aerosols is found to be the effect of not only mixed light-absorbing aerosols such as black-carbon, but also due to the effect of aerosol size. The aerosol radiative forcings at the surface and top of the atmosphere in the spring season can be roughly two times of the values in the winter season. We further present our new retrieval method of cloud parameters from sky radiometer of SKYNET, and discuss the optical characteristics of clouds obtained from the sky radiometer of SKYNET and Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS). Our analysis suggests that MODIS cloud optical depth (COD) may be underestimated, which in turn may lead to overestimate calculated shortwave flux.

Keywords: SKYNET, aerosol, cloud

Analysis of temporal evolution of Angstrom coefficients derived from spectrometric measurements of New Year 2013 aerosols in Manila Observatory (14.67N, 121.07E)

\*JohnPaolo Durana Miranda<sup>1,2</sup>, Daniel Luis Bautista<sup>1,2</sup>, Nofel Lagrosas<sup>1,2</sup>

1.Manila Observatory, 2.Ateneo de Manila University

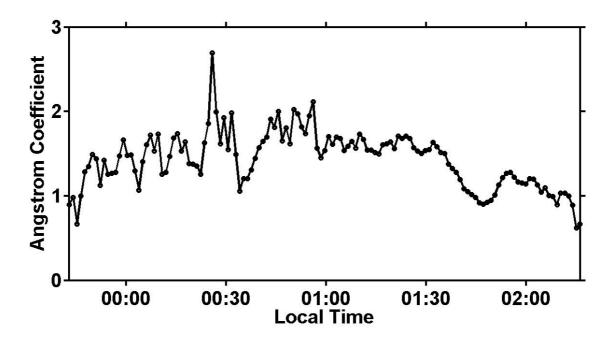
Spectrometric measurements were done during New Year of 2013 at Manila Observatory (14.67N, 121.07E) for the purpose of characterizing optical properties of New Year aerosols. Intensity measurements from xenon lamp located ~150m from the spectrometer were gathered from 22:00 (local time) of 31 December 2012 to 09:00 (local time) of 01 January 2013, using a USB 2000 Ocean Optics Spectrometer. The sources of New Year aerosols were from burning firecrackers and firework activities from nearby residential areas. From 22:00 to 23:30, sporadic fireworks were observed and the frequency of burning and firework activities increased as the New Year approached. Data were acquired every 1 minute to look at the temporal evolution of optical characteristics of aerosols. The aerosol optical thickness were derived from 8 wavelengths: 387.3, 400.0, 440.0, 472.1, 600.0, 616.2, 764.3, and 823.1 nm. The reference intensity used to measure aerosol optical thickness was the measured intensity at 22:07 when the air could be considered as relatively clean even though isolated burning of firecrackers was observed. The aerosol optical thickness at a particular wavelength is computed from the negative of the logarithm of the ratio of the intensity and the reference intensity. The Angstrom coefficient, which is a measure of the dominance of fine or coarse particles, is obtained from the slope of the line fitting the logarithm of optical thickness and the logarithm of wavelength. Higher (>2) and lower (<1) Angstrom coefficients correspond to the dominance of fine and coarse particles, respectively. Figure 1 shows the Angstrom coefficient values from 23:30 of 31 December 2012 to 02:30 of 01 January 2013. The computed Angstrom coefficients before 23:30 and after 03:00 were not valid because there are no clear differences between the measured intensities and the reference intensity. From 23:30 to 1:00, Angstrom coefficient values noticeably increased and this could be attributed to the increase in firework activities near and just after New Year. The maximum intensity of firework activities is at around midnight. The spike of Angstrom coefficient at 00:30 can be attributed to aerosols transported to the place of measurement from a source where intense firework activities at midnight happened. The visibility at 550nm increased up to 5 km and stayed constant until 12:30. After that, the visibility started to decrease gradually up to 1 km until 01:45. The Angstrom coefficient is roughly constant at a value of 1.5 from 01:00 to 01:30 even though the visibility started decreasing to 1 km. From 01:30 to 02:30, a gradual decrease of Angstrom coefficient up to ~1.0 is observed. This can be attributed to increasing relative humidity in this time interval. Increase in relative humidity can bring about an increase in aerosol size by coagulation (Seinfeld and Pandis, 2006). This suppresses and increases the number of fine and coarse particles in the atmosphere, respectively. This would imply that aerosols would take less space to block light and this is manifested in the increase in visibility (up to 2.5 km) during this time interval. Even though fine particles were generated during the firework activities, the measured Angstrom coefficient values are still relatively low indicating a possible bimodal size distribution of aerosols in the atmosphere (Schuster et al, 2006).

## References:

Seinfeld, J. and Pandis, S. (2006). *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change 2*<sup>nd</sup> *ed.* Wiley-Interscience, USA.

Schuster, G., Dubovik, O., Holben, B. (2006). *Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions*. J. Geophys. Res, 111, D7.

Keywords: Angstrom coefficient, Aerosols, Optical thickness, Relative Humidity



Derived volume size distribution function from 2012 New Year spectrometric measurements in Manila Observatory (14.64N, 121.07E)

\*Daniel Luis Bautista<sup>1,2</sup>, John Paolo Miranda<sup>1,2</sup>, Nofel Lagrosas<sup>1,2</sup>

1.Manila Observatory, 2.Ateneo de Manila University

Optical properties of New Year aerosols are characterized by spectrometric measurements performed in Manila Observatory during the 2012 New Year celebration. Data were obtained using an Ocean Optics USB2000 spectrometer from 20:00 (local time) of 31 December 2011 to 05:00 of 01 January 2012. Local time is 8 hours ahead of coordinated universal time (UTC). A xenon lamp was used as light source and was located ~150m from the spectrometer. Sources of these aerosols came from fireworks and burning of firecrackers from residential areas near Manila Observatory. Between 20:00 and 23:30, sporadic fireworks and firecracker burning were observed. The intensity and frequency of firework activities increased as midnight approached. Data were collected every 20s to look at temporal evolution of aerosol optical properties during this time interval. In this study we derive the aerosol volume size distribution function using the parametric inversion method of Kaijser (1983). In this method, we selected 8 wavelengths (387.30, 400.00, 440.00, 470.30, 500.30, 530.00, 550.10, 600.00nm) to derive the volume size distribution functions. Optical depths from these wavelengths were derived using a reference intensity obtained at 20:00 (local time) of 31 December 2011 when the air was considered relatively clean even with the occurrence of sporadic firework activities. A least-square minimization process was implemented between the measured optical depths and computed optical depths using Mie theory and assuming a 33 bimodal log-normal distribution functions with geometric mean radii between 0.003 to 1.2um and standard deviation of 2. The result of the least-square minimization process outputs the coefficients of the log-normal volume size distribution functions. This allowed the log-normal volume size distribution functions of the aerosols to be determined and plotted to indicate changes over time. Fig. 1 shows the temporal development of derived aerosol volume size distribution from 20:00 (local time) of 31 December 2011 to 05:00 of 01 January 2012. From 20:00 to 22:00, the aerosols exhibit a unimodal volume size distribution centered at 0.3um. This can be attributed to background urban aerosols, i.e., without any contamination from aerosols contributed by firecrackers and fireworks. From 22:00 to 00:30, small size aerosols with radius 0.04um started to emerge due to increasing firework activities which intensified until 00:00 creating a bimodal volume size distribution. From 00:00 to 00:30, urban background aerosols have developed into larger aerosols of radius 0.8um due to high relative humidity. From 00:30 to 03:00, the intensities measured by the spectrometer were very low because of low visibility conditions. During this time period, there was an abundance of smoke lingering in the atmosphere as a result of the firework activities and relatively low wind speed conditions. The measured low light intensities from the xenon lamp caused the inversion process to fail for the data set during this time interval. At 03:00 up to 04:30, when the visibility slightly improved, the data obtained by the spectrometer provided sufficiently high light intensities for the inversion process to succeed and yield a relatively constant mean radii for both modes, indicating constant relative humidity. From 04:30 to 05:00 the volume size distribution decreases significantly suggesting a sudden clearing of the atmosphere. With these observations, we have shown the possibility of obtaining the aerosol volume size distribution functions under heavy aerosol loading in the atmosphere. In the future, we intend to improve this method to show aerosol growth under increasing relative humidity conditions.

Reference:

Kaijser, T. (1983). A simple inversion method for determining aerosol size distributions. J. Comp.

Phys., 52, 80-104.

Keywords: Volume size distribution, Aerosols, Parametric inversion, Spectrometer

