

東アジアにおける下部対流圏オゾンの衛星観測とモデルシミュレーションの比較

Comparison of satellite observation of lower tropospheric ozone with model simulation over East Asia

*林田 佐智子¹、出牛 真²、梶野 瑞王²、山地 一代³、関山 剛²、眞木 貴史²

*Sachiko Hayashida¹, Makoto Deushi², Mizuo Kajino², Kazuyo Yamaji³, Thomas Sekiyama², Takashi Maki²

1.奈良女子大学理学部、2.気象研究所、3.神戸大学海事学研究科

1.Faculty of Science, Nara Women's University, 2.Meteorological Research Institute, 3.Graduate School of Maritime Sciences, Kobe University

OMI(Ozone Monitoring Instrument)の紫外線スペクトル観測からオゾン鉛直プロファイルのリトリバルした結果 (Liu et al., 2010)を使って、Hayashida et al.(2015)は中国中東部の下部対流圏オゾン増大現象を報告した。しかしながら、オゾン鉛直分布の導出には平滑化誤差が極めて大きいことから、対流圏最下層のオゾンを衛星観測から明らかにするためには、上部対流圏/下部成層圏 (UT/LS) におけるオゾン変動の影響に十分注意する必要がある。本研究ではUT/LSのオゾン増大が下部対流圏に与えるみかけの影響を除去するための手法を開発した。開発したスクリーニング手法を用いて下部対流圏オゾンに対するみかけの影響を取り除いた後においても、2006年6月には中国中東部においてオゾンの増大現象を明確に示すことができ、Hayashida et al. (2015)の結果を確認できた。6月におけるオゾン増大現象の理由を明らかにするために、気象研究所で開発された化学気候モデルMRI-CCM2(Deushi and Shibata, 2011)によるシミュレーションとの比較を行った。シミュレーションの結果はOMIで観測された6月のオゾン増大現象をよく再現しており、その原因は工業活動や自動車など人為起源のオゾン前駆物質放出と紫外線環境でほぼ説明できることが示された。さらにYamaji et al. (2010)のエミッション推定値を使って、冬小麦の収穫後の畑の残渣焼却の影響についても調べたところ、OMIのもつ鉛直分解能程度ではその影響はあまり大きく検知されず、たかだか1DU程度と推定された。

謝辞

本研究はハーバード大学Xiong Liu博士との共同研究です。本研究は文部科学省GRENE-ei プログラム炭素循環課題（代表:今須良一博士）の支援を受けて実施した成果の報告を含みます。茅場聡子さんと小野朗子さんの貢献に感謝します。

キーワード：オゾン、衛星、モデルシミュレーション、汚染

Keywords: ozone, satellite, model simulation, pollution

八方尾根におけるオゾンおよびCOベースライン濃度推定とその長期変動解析

Estimation and trend analysis of the tropospheric baseline ozone and carbon monoxide concentrations at Mt. Happo

*岡本 祥子¹、谷本 浩志¹、奈良 英樹¹

*Sachiko Okamoto¹, Hiroshi Tanimoto¹, Hideki Nara¹

1. 国立環境研究所

1. National Institute for Environmental Studies

東アジア酸性雨モニタリングネットワークEANET (Acid Deposition Monitoring Network in East Asia) のひとつである、長野県白馬村の国設八方尾根酸性雨測定所 (36.7°N, 137.8°E, 1840 m asl) では、1998年の観測開始以降、春季に大きな O_3 濃度の長期増加傾向が確認されている (Tanimoto, 2009)。その原因として、急激な経済成長を遂げる中国からの越境汚染が考えられるが、モデル計算では中国の寄与でその半分以上を説明できるものの、残り半分は依然として説明できない状況にある (Tanimoto et al., 2009)。八方尾根のような山岳基地における観測データは、局所のおよび領域的な排出・除去の直接的影響が少ないため、温室効果ガスやエアロゾルなどのベースライン濃度の推定に用いられてきた (e.g., Parrish et al., 2012)。しかしながら、遠隔地でも局所のおよび領域的な排出の影響を受けるため、地域代表性のあるベースライン濃度の推定にはデータのフィルタリングが必要である。

本研究では、Ruckstuhl et al. (2012) のREBS (Robust Extraction of Baseline Signal) 法と呼ばれるロバスト回帰に基づいた統計的手法を用いて、八方尾根における O_3 (1998–2014年) とCO (1996–2004年および2013–2014年) のベースライン濃度と汚染濃度の推定をおこない、その長期変動について解析をおこなった。2013–2014年のCO濃度は1996–2004年に比べて有意に低く、その傾向は特に夏季と秋季に大きく、春季に最も小さかった。また、ベースラインCO濃度は、近年、春季以外減少しており、逆に春季にはやや増加していた。汚染CO濃度は全季節で減少しており、その減少量はベースラインCO濃度に比べて大きかった。一方、 O_3 濃度は2000年代半ばをピークに全季節で減少の傾向を示しており、その傾向は春季に最も大きく、夏季に最も小さかった。ベースライン O_3 濃度と汚染 O_3 濃度も全季節で減少傾向を示し、春季の減少速度はベースライン濃度と汚染濃度で同程度であった。以上のことから、春季の八方尾根でのCO濃度減少は汚染濃度の減少が主な原因だが、 O_3 濃度の減少は汚染と同程度にベースライン濃度の減少が原因と考えられる。

キーワード：オゾン、一酸化炭素、ベースライン

Keywords: Ozone, Carbon monoxide, Baseline level

福江島における大気中ブラックカーボン質量濃度の長期観測2009-2015：

東アジアからの排出量と湿性除去速度の解析

Long-term observations of black carbon at Fukue Island during 2009-2015:

Rates of emissions from East Asia and removal

*金谷 有剛^{1,2}、潘 小楽³、宮川 拓真^{1,2}、駒崎 雄一¹、竹谷 文一^{1,2}、鶴野 伊津志³、近藤 豊⁴

*Yugo Kanaya^{1,2}, Xiaole Pan³, Takuma Miyakawa^{1,2}, Yuichi Komazaki¹, Fumikazu Taketani^{1,2}, Itsushi Uno³, Yutaka Kondo⁴

1.国立研究開発法人海洋研究開発機構地球表層物質循環研究分野、2.国立研究開発法人海洋研究開発機構北極環境変動総合研究センター、3.九州大学、4.国立極地研究所

1.Department of Environmental Geochemical Cycle Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 2.Institute of Arctic Climate and Environment Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 3.Kyushu University, 4.National Institute of Polar Research

大気中の微小エアロゾル粒子の一成分であるブラックカーボンは重要な温暖化物質であり、排出量や大気中からの除去速度などを正確に理解することが必要となっているが、これまでの知見は十分とはいえない。我々は、巨大発生源である中国の影響を受ける長崎県・福江島(32.75°N, 128.68°E)においてCOSMOS装置を用いたブラックカーボン質量濃度の連続観測を2009年から長期で実施し、濃度の時間変動を明らかにするとともに、排出量や除去速度の理解を向上させるための統計的な解析を行った。年平均値は $0.36 \mu\text{g m}^{-3}$ であり、秋・冬・春にアジア大陸からの越境汚染の影響を受けて高濃度になる季節変動が見られた。観測されたデータを、過去3日間に後方流跡線(HYSPLIT)上で降水が見られたかどうかによって2つに大別し、また気塊の起源を6地域に大別して(中国東北部・中北部・中南部・南部、韓国、日本)、 $\Delta\text{BC}/\Delta\text{CO}$ 比を用いた解析を行った。降水がない場合に観測された $\Delta\text{BC}/\Delta\text{CO}$ 比については、発生源での排出比が保持されていると考え、地域による差($5.2\text{--}6.9 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$)は発源地域の特徴を表しているとして解釈した。とくに、中国中南部・南部の比の値は大きい傾向があり、家庭起源・バイオマス燃焼の影響を受けたためと考えられた。ボトムアップ型のエミッションインベントリREAS2では、中国・韓国での排出比は $6.5\text{--}23 \text{ ng m}^{-3} \text{ ppb}^{-1}$ と仮定されており、実態を大幅に過大評価している可能性が示された。また、REAS2では、暖房需要の影響で中国では冬季にBC排出量が増加することが見込まれているが、中国中南部からの気塊でこの点を裏付ける結果を得た。また、降水が見られたデータの解析では、流跡線上での過去3日間の降水積分量(APT)の増加に対し、 $\Delta\text{BC}/\Delta\text{CO}$ 比が減少する傾向が明らかであった。COは降水による除去を受けないパッシブなトレーサーであるため、降水によるBC除去を捉えたものと解釈された。降水のあった場合に計測された $\Delta\text{BC}/\Delta\text{CO}$ 比を、無降水の場合の比の値で規格化して輸送効率(TE)を算出し、APTに対する依存性を解析した。その結果、TEはAPTに対して単調減少し、Stretched exponential 式($\text{TE} = \exp(-A_1 \times \text{APT}^{A_2})$)でよく近似できること、空気塊の起源地域による違いは小さく、一般性が高いこと、平均的には、15mmの降水量によってBC濃度が半減することが示された。この関係式によって、大気化学輸送モデルシミュレーションの妥当性を検証することも可能と考えられる。

キーワード：エアロゾル粒子、越境大気汚染、気候影響、収支解析、過程解析

Keywords: aerosol particles, trans-boundary air pollution, climate Effect, budget analysis, process analysis

中国域におけるエアロゾルの収支解析：濃度と流出量の経年変動

Budget analysis of aerosols in China: interannual variation in aerosol concentration and outflow

*山下 剛史¹、須藤 健悟¹*Tsuyoshi Yamashita¹, Kengo Sudo¹

1.名古屋大学大学院環境学研究科

1.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

汚染域から排出されるエアロゾルやその前駆気体は、周辺領域だけでなく、風によって輸送されることにより、下流のリモートな領域の気候や大気環境にも大きな影響を及ぼす。したがって、汚染物質の気候・環境影響を検討するためには、汚染域での濃度変動に加えて、域外への流出量の変動にも着目する必要がある。本研究では、黒色炭素BCと硫黄酸化物SO_x (SO₂+SO₄²⁻) に着目し、化学気候モデルCHASERを用いたエアロゾル収支解析により、中国域(18°N—46°N, 104°E—123°E)のエアロゾル濃度変化や域外への流出量変化の要因を評価した。この結果、中国域外へのエアロゾル流出量は冬季に最大となる季節性を示し、中国域の東面からの流出量および西面からの流入量はともに3月頃にピークとなることがわかった。また、中国域からの流出量の経年変動には東西面を通じた正味流出量の変化が大きく寄与していることが示された。中国域内におけるエアロゾル濃度の年々変動は、流出量の年々変動に大きく支配されており、域内の沈着量の寄与は比較的小さいことが確認された。また、正の放射強制力を持ち、気候への影響が大きいとされるBCを対象としたエミッション感度実験により、中国域におけるBCの対流圏カラム量には、ローカル（中国域）起源、インド起源が、それぞれ75%および12%寄与していることが推定された。中国域西面からのBC流入量のうち約半分はインド起源であり、中国域東面からのBC流出量のうち約6割が中国起源、約2割がインド起源であった。以上のことより、インドなどの南アジアにおけるBCの収支変化が、中国域のBC濃度変化に影響を与えている可能性が示唆され、一部はさらに長距離輸送され、日本や北太平洋にも寄与している可能性がある。

キーワード：エアロゾル、長距離輸送、ブラックカーボン、中国

Keywords: aerosol, long-range transport, black carbon, China

東アジアの対流圏二酸化窒素濃度、10年前のレベルに回復

Return to the decade-ago level of tropospheric nitrogen dioxide pollution in East Asia

*入江 仁士¹、武藤 拓也¹、板橋 秀一²、黒川 純一³、鵜野 伊津志⁴*Hitoshi Irie¹, Takuya Muto¹, Syuichi Itahashi², Jun-ichi Kurokawa³, Itsushi Uno⁴

1.千葉大学、2.電力中央研究所、3.アジア大気汚染研究センター、4.九州大学

1.Chiba University, 2.Central Research Institute of Electric Power Industry, 3.Asia Center for Air Pollution Research, 4.Kyushu University

Long-term (2005-2015) tropospheric nitrogen dioxide (NO₂) column data recorded by the satellite-borne Ozone Monitoring Instrument (OMI) in East Asia were analyzed to investigate annual trends quantitatively and their potential causes. We found an evident decrease in the NO₂ level over China after 2011 and then a return to the 2005 level in 2015. The grid-basis trend analysis implies that the rapid decrease occurred on a provincial or larger spatial scale and was likely due to a nationwide action such as the widespread use of denitrification units. Other prominent features were seen in Japan. Despite a significant substitution from nuclear to thermal power after 2011 as a consequence of a massive earthquake off the Pacific coast of northern Japan, the NO₂ level continued to decrease for both periods (2005-2011 and 2011-2015). The decrease contributed to a return to the decade-ago level of tropospheric NO₂ pollution in East Asia.

キーワード：NO₂、トレンド解析、東アジア、OMIKeywords: NO₂, trend, East Asia, OMI

デリー上空でのCONTRAIL観測から明らかになった冬期農作物によるCO₂吸収
Rabi-crop CO₂ uptake inferred from CONTRAIL measurements over Delhi, India

*梅澤 拓¹、丹羽 洋介²、澤 庸介²、町田 敏暢¹、松枝 秀和²

*Taku Umezawa¹, Yosuke Niwa², Yousuke Sawa², Toshinobu Machida¹, Hidekazu Matsueda²

1.独立行政法人国立環境研究所、2.気象庁気象研究所

1.National Institute for Environmental Studies, 2.Meteorological Research Institute

Recent studies propose that growing agriculture has altered atmospheric CO₂ variations and the global carbon cycle. In this study, we show a clear evidence of significant impact of Indian wintertime (*rabi*) agriculture (mainly wheat) on the regional carbon budget based on high-frequency atmospheric CO₂ measurements onboard commercial airliners over Delhi, India. While a general increasing gradient toward the ground was observed throughout December–April, we have frequently observed sharp decreases near the ground during January–March. In this period, CO₂ concentration at altitudes below 2 km was at seasonal stagnation. Meteorology in the season infers influence from neighboring croplands with patchy urban areas located upwind. We conclude that the observed CO₂ decrease is attributable to active uptake by *rabi*-crop growing in the season and that the uptake is comparable in magnitude to urban CO₂ emissions from the Delhi metropolitan area.

キーワード：CO₂、冬期農作、航空機観測

Keywords: CO₂, rabi crop, aircraft measurements

スヴァールバル諸島ニーオルスンにおける大気中CO₂濃度および炭素同位体比の時間変動Temporal variations of the atmospheric CO₂ concentration and d¹³C at Ny-Ålesund, Svalbard*後藤 大輔¹、森本 真司²、石戸谷 重之³、青木 周司²、中澤 高浩²、弓場 彬江¹*Daisuke Goto¹, Shinji Morimoto², Shigeyuki Ishidoya³, Shuji Aoki², Takakiyo Nakazawa², Akie Yuba¹

1.国立極地研究所、2.東北大学、3.産業技術総合研究所

1.National Institute of Polar Research (NIPR), 2.Tohoku University, 3.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

Long-term measurements of the atmospheric CO₂ concentration and its carbon isotope ratio (d¹³C) have been used for partitioning CO₂ sinks into the terrestrial biosphere and the ocean. However, the CO₂ sinks estimated from d¹³C suffer with uncertainties in isotopic disequilibrium flux between the atmosphere and the ocean and between the atmosphere and the terrestrial biosphere (so-called isoflux). For a better understanding of the global carbon cycle, we have been carrying out the systematic observation of the atmospheric CO₂ concentration and d¹³C at Ny-Ålesund (78.93°N, 11.83°E), Svalbard since 1991 by weekly air sampling with subsequent analysis in NIPR. Here, we will present the observational results of CO₂ concentration and d¹³C for 1991–2013 and 1996–2013, respectively. The d¹³C data before 1996 were removed from our analysis due to experimental and sample quality problems (Morimoto et al., 2001).

The CO₂ concentrations show a clear seasonal cycle with peak-to-peak amplitude of about 17 ppmv, which reaches the maxima in late April to early May and the minima in late August, superimposed on a secular increase with an average rate of 2.0 ppmv/yr for the period of 1996–2013. On the other hand, the d¹³C decreases secularly at an average rate of -0.018 ‰/yr, and varies seasonally in opposite phase with the CO₂ concentration. We have also maintained atmospheric d(O₂/N₂) measurements at Ny-Ålesund since 2001 (Ishidoya et al., 2012). Using the atmospheric d(O₂/N₂) and CO₂ concentration records, the terrestrial and oceanic CO₂ sinks are estimated to be 1.7 ± 0.8 GtC/yr and 2.2 ± 0.7 GtC/yr, respectively, for the 13-year period (2001–2013). Using these values of CO₂ sinks and the d¹³C record, the average isoflux for the period of 2001–2013 is estimated to be 99 ± 28 Gt ‰/yr.

References

Ishidoya et al. (2012) Oceanic and terrestrial biospheric CO₂ uptake estimated from atmospheric potential oxygen observed at Ny-Ålesund, Svalbard and Syowa, Antarctica. *Tellus B*, 64, 18924, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.18924>.

Morimoto et al. (2001) Temporal variations of atmospheric CO₂ concentration and carbon isotope ratio in Ny-Alesund, Svalbard, *Mem. Natl Inst. Polar Res.*, Spec. Issue, 54, 71–79.

キーワード：二酸化炭素、炭素同位体比、酸素/窒素比

Keywords: atmospheric CO₂, carbon isotope ratio, O₂/N₂ ratio

スバルバル諸島ニーオルスンにおける大気主成分濃度・同位体比の観測から示唆される下層大気
分子拡散分離

Diffusive separation of the lower atmosphere suggested by Ar/N_2 , $\delta^{15}\text{N}$ of N_2 , $\delta^{18}\text{O}$ of O_2 observed at Ny-Ålesund, Svalbard.

*石戸谷 重之¹、後藤 大輔²、菅原 敏³、森本 真司⁴、青木 周司⁴、村山 昌平¹、中澤 高晴⁴

*Shigeyuki Ishidoya¹, Daisuke Goto², Satoshi Sugawara³, Shinji Morimoto⁴, Shuji Aoki⁴, Shohei Murayama¹, Takakiyo Nakazawa⁴

1.産業技術総合研究所、2.国立極地研究所、3.宮城教育大学、4.東北大学

1.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), 2.National Institute of Polar Research, 3.Miyagi University of Education, 4.Tohoku University

Recent technical advances has made it possible to observe a molecular diffusive separation of the atmosphere based on high precision measurements of the composition of atmospheric major components. In the middle to lower stratosphere, Ishidoya et al. (2013) reported the existence of observable gravitational separation based on the measurements of stratospheric air samples collected using a balloon-borne cryogenic air sampler. In the lower atmosphere, Adachi et al. (2006) reported the diffusive separation of Ar and N_2 , mainly due to thermal diffusion, in the center of a wide desert during the nighttime when vertical temperature inversions are generated. To examine whether the diffusive separation of the atmosphere is also detectable near the surface in polar region, air samples collected at Ny-Ålesund, Svalbard (79°N, 12°E) have been analyzed for $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$, $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$, $\delta^{15}\text{N}$ of N_2 , $\delta^{18}\text{O}$ of O_2 and $\delta^{40}\text{Ar}$ by using a mass spectrometer (Ishidoya and Murayama, 2014) since January 2013. It was found that $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ show small but significant seasonal cycles, with the seasonal maxima and minima in winter and summer, respectively. The peak-to-peak amplitudes of the respective seasonal cycles of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ were about 2 and 4 per meg. On the other hand, no significant seasonal cycle was seen in $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$. If we assume the seasonal cycles of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ are attributed mainly to gravitational separation in a temperature inversion layer during polar night in winter and corrected the $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ for the separation by subtracting $12 \times (\delta^{15}\text{N} + \delta^{18}\text{O}/2)/2$ ($\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)_{\text{cor}}$), then the $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)_{\text{cor}}$ show clear seasonal cycle with a maximum in August. The peak-to-peak amplitude of the seasonal $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)_{\text{cor}}$ cycle is about 25 per meg, and the appearance time of seasonal maximum agrees with that of the sea surface temperature around Ny-Ålesund. These results suggest that gravitational separation is observable near the surface at Ny-Ålesund. Our suggestion would be supported by Keeling et al. (2004) who reported the $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ observed in the polar region may be detectably enriched near the ground by gravitational separation or thermal diffusion under condition of strong surface inversions.

References

- Adachi, Y. et al. (2006) Diffusive separation of the lower atmosphere, *Science*, 311, 1429.
 Ishidoya, S. et al. (2013) Gravitational separation in the stratosphere –a new indicator of atmospheric circulation. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8787–8796, www.atmos-chem-phys.net/13/8787/2013/, doi:10.5194/acp-13-8787-2013.
 Ishidoya, S. & Murayama, S. (2014) Development of high precision continuous measuring system of the atmospheric O_2/N_2 and Ar/N_2 ratios and its application to the observation in Tsukuba, Japan. *Tellus B*, 66, 22574, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v66.22574>.
 Keeling, R. F. et al. (2004) Measurement of changes in atmospheric Ar/N_2 ratio using a rapid-switching, single-capillary mass spectrometer system, *Tellus B*, 56, 322–338.

キーワード：大気成分拡散分離、Ar/N₂比、主成分同位体比、気温逆転層

Keywords: diffusive separation of the atmosphere, Ar/N₂ ratio, delta15N of N₂, delta18O of O₂,
vertical temperature inversions

南極昭和基地におけるエアロゾル粒径分布の季節変化

Seasonal cycle of aerosol size distribution at Syowa Station, Antarctica

*原 圭一郎¹、西田 千春²、長田 和雄³、矢吹 正教⁴、山内 恭⁵*Keiichiro Hara¹, Chiharu Nishita-Hara², Kazuo Osada³, Masanori Yabuki⁴, Takashi Yamanouchi⁵

1.福岡大学理学部地球圏科学科、2.福岡大学福岡から診る大気環境研究所、3.名古屋大学大学院環境学研究科、4.京都大学生存圏研究所、5.国立極地研究所

1.Fukuoka University, 2.Fukuoka University, FIT, 3.Nagoya Univ., GSES, 4.Kyoto Univ., RISH, 5.NIPR

Atmospheric aerosols are related closely to the climate change through direct and indirect effects. Number concentrations and size distributions of aerosols are one of the most important properties. Recently, aerosol size distributions have been measured even in the Antarctic regions during summer (e.g., Virkkula et al., 2007; Asmi et al., 2010; Pant et al., 2011; Park et al., 2004). These studies focused on the respect of new particle formation. However, only a few wintering-measurements of aerosol size distributions in fine - ultrafine modes have been made in the Antarctic regions (Ito, 1993; Hansen et al., 2009; Järvinen et al., 2013). This study aims to understand seasonal cycle of aerosol size distribution and new particle formation at Syowa Station, Antarctica. For measurement of size distribution in ultrafine - fine modes (D_p : 5-168 nm), a scanning mobility particle sizer (SMPS: 3936-N-25; TSI Inc.) was used from February 2004 - December 2006 at Syowa Station, Antarctica. The scanning time for one scan was set to 5 min in SMPS measurement. Local contaminated data were filtered using CN data (aerosol monitoring data) and wind data (observed by JMA). Log-normal fitting was used to compare modal structure of aerosol size distributions in this study. All daily-mean aerosol size distributions were fitted using the following lognormal modes: fresh nucleation mode ($D_p < 10$ nm), aged nucleation mode ($D_p = 10-25$ nm), 1st Aitken mode ($D_p = 25-50$ nm), 2nd Aitken mode ($D_p = 50-100$ nm), and accumulation mode ($D_p > 100$ nm). Aerosol size distribution showed 2 - 4 modal structures from early September -end-March. Fresh nucleation mode appeared occasionally in March-April, and August-November, and rarely in December-February and May-July. The number concentrations in aged nucleation -2nd Aitken modes increased in summer. In contrast, most of size distribution showed 1 - 2 modal structures during April - August. Strong mono-modal distribution appeared in 2nd Aitken and/or accumulation modes under/after the storm conditions in the winter -early spring. This seasonal feature might be associated with seasonal cycles of (1) the concentrations of condensable vapors linked to photochemical reactions and biogenic activity, and (2) sea-salt particles released from sea-ice surface in the winter - spring. Here, we discuss and characterize seasonal cycle of aerosol size distribution in ultrafine -fine modes in the Antarctic coasts.

キーワード：エアロゾル、粒径分布、南極

Keywords: aerosols, size distribution, Antarctica

南極昭和基地周辺における表面積雪中BC濃度および粒径分布の季節的傾向

Seasonal variation of the concentration of black carbon and the size distribution of the surface snow sampled in the Syowa station in the Antarctica

*木名瀬 健¹、北 和之²、東 久美子^{3,4}、小川 佳美³、近藤 豊^{3,5}、茂木 信宏⁵、大畑 祥⁵、森 樹大⁵、林 政彦⁶、原 圭一郎⁶、塩原 匡貴^{3,4}、川島 洋人⁷

*Takeshi Kinase¹, Kazuyuki Kita², Kumiko Goto-Azuma^{3,4}, Yoshimi Ogawa³, Yutaka Kondo^{3,5}, Moteki Nobuhiro⁵, Sho Ohata⁵, Tatsuhiko Mori⁵, Masahiko Hayashi⁶, Keiichiro Hara⁶, Masataka Shiobara^{3,4}, hiroto kawashima⁷

1.茨城大学大学院理工学研究科、2.茨城大学理学部、3.国立極地研究所、4.総合研究大学院大学、5.東京大学大学院理学系研究科、6.福岡大学理学部、7.秋田県立大学システム科学技術部

1.Graduate School of Science and Technology, Ibaraki University, 2.College of Science, Ibaraki University, 3.National Institute of Polar Research, 4.SOKENDAI(The Graduate University of Advanced Studies), 5.Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo, 6.Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 7.Department of Management Science and Engineering, Faculty of Systems Science & Technology, Akita Prefectural University

黒色炭素エアロゾル(以下BC)は化石燃料やバイオマスの燃焼時に発生する煤が主なものとされ、大気中で太陽放射を吸収することで強い温暖化効果をもたらす。さらにBCは雪氷面に沈着することで、雪のアルベドを下げ温暖化に寄与する。IPCC (2013)は積雪に沈着したBCの放射強制力を1875年からで $0.04 \text{ (W m}^{-2}\text{)}$ と見積もられ90%の大きな不確定が残ると報告しており、雪氷面におけるBCはさらなる研究が求められている。雪氷面のアルベド計算は、雪氷表面及び内部での雪粒子とBCなどの含有不純物を考慮した放射伝達モデルで見積もられ、積雪中に含まれるBCの全重量濃度及びその粒径分布の情報が必要となる。そのため、雪氷中のBC粒径分布を正しく測定することは、BCの気候への影響を定量的に見積もる上で非常に重要だが、積雪中のBC粒径分布を測定する手法が開発されたのは比較的最近であり、特に南極のような観測が困難な地点では積雪中BCの粒径分布測定例はまだない。

本研究では第52次南極観測隊活動時(2010-2012)に昭和基地で採取した29個の雪サンプル中のBC濃度及び粒径分布の測定を行い、その濃度や粒径分布の変動要因について考察した。BC濃度及び粒径分布は東京大学及び国立極地研究所の測定粒径範囲を拡張したSingle Particle Soot Photometer (SP2, cf. Mori et al., (2016))により測定し、さらに各種イオン濃度とpHの測定を行った。大気中BC濃度と積雪中BC濃度の関係を調べるために、雪サンプル採取期間にはAethalometerで大気中BC濃度の測定も行った。その際に、サンプル空気を $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$ に加熱することで揮発性の散乱性物質による測定影響を小さくした。

積雪はその表面(0-10cm)を250 ccガラス瓶に直接掬い取り、分析直前まで -20°C 以下で保存した。また、2011年10月には、みずほ基地旅行隊に依頼してルート上の積雪採取も行った。JpGU2015での発表及びKinase et al.(2016)の実験結果に基づき低温かつ短時間でサンプルを解凍するため、250 cc瓶中の雪をセラミックナイフで突き崩し20 ccガラス瓶3本に入れ、それぞれを冷蔵庫内で解凍し超音波振動を15分間与えてから1本に混ぜ合わせた。30 cc LDPE瓶でもサンプルを用意し、イオン及びpHの分析に使用した。

測定された昭和基地周辺の表面積雪全サンプルのBC濃度及び粒径分布を図にまとめた。BC濃度平均値は $591.6 \pm 714.1 \text{ (ng L}^{-1}\text{)}$ となった。また季節変動があり、5-9月(冬~初夏)に平均 $248.8 \pm 160.2 \text{ (ng L}^{-1}\text{)}$ と比較的低濃度となり、その他の季節では平均 $934.4 \pm 885.6 \text{ (ng L}^{-1}\text{)}$ と比較的高濃度であることが分かった。また比較的内陸に位置するみずほルート上の積雪では、 $816.9 \pm 110.0 \text{ (ng L}^{-1}\text{)}$ で、同時期の昭和基地の積雪($434.9 \pm 224.9 \text{ (ng L}^{-1}\text{)}$)に比べ比較的高濃度だった。この濃度は過去に行われた異なる南極域での積雪中BC濃度の測定結果(Chýlek et al., 1987, 1992; Warren and Clarke, 1990; Grenfell et al., 1994)より若干高濃度であるもののそれぞれの変動範囲では一致していた。これまで報告例のない南極積雪中のBC粒径分布も測定することが出来た。季節変動傾向があり、冬期間には粒径100~300 nm程度の小粒径に集中するが、夏期間には1 μm より大きい粒径の粒子もしばしば検出された。しかし、これらの変動とイオン濃度及びpH値には関係性がみられな

かった。

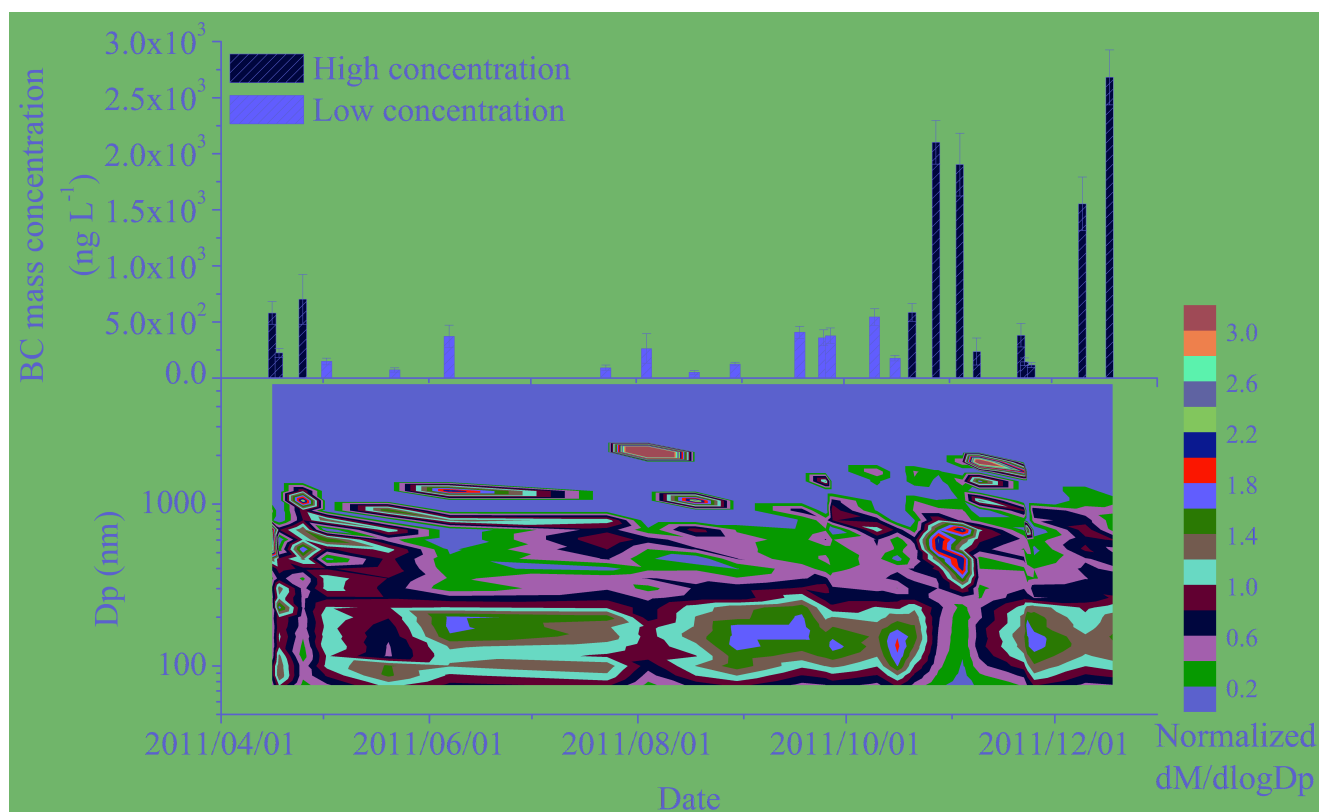
大気中BC濃度は冬期間に比較的高濃度で夏期に比較的低濃度となることが示された。ただし、海塩や鉱物などの影響を受けていた可能性がある。主な昭和基地周辺へのBC輸送過程として、低気圧（ブリザード）に伴って輸送される場合と、大陸から吹くカタバ風による場合が考えられる(Hara et al. (2008))。低気圧によるイベントは冬季に集中して発生し、カタバ風によるイベントは夏期に多く発生することから、大気中BC濃度の季節変動はBCの輸送・沈着プロセスの季節的变化を反映していると推測される。

大気中BC濃度と表面積雪中BC濃度の季節変動がほぼ逆の傾向を持っていたことから、昭和基地周辺での大気中BCの直接的な沈着は、影響が大きいと考えられる。そのため積雪中BC濃度は、降雪に至るまでにおこる大気から雪粒子中への沈着過程及び沈着効率が大きく影響すると考えられ、積雪中BC濃度の季節的な変化はそれらの季節変化を反映していると考えている。

また、積雪中BC濃度及び粒径分布の季節変動は、全天日射量と同期しており、日射量の変化も積雪中BC濃度の変動に関係している可能性があることも分かった。JpGU2015やKinase et al. (2016)で報告した実験から、積雪を強く加熱したり融解後再凍結すると、積雪中BC粒径分布に変化が生じることが分かっている。日射による氷晶や積雪の加熱や雪からの水蒸気の昇華などのプロセスも季節的なBC濃度や粒径変化に寄与している可能性も考えられる。今後、南極における積雪中BC測定を長期的に行いより多くの情報を得ること、大気中BCの南極への輸送や南極域での水循環をより明確に理解し、降水や降雪に対するBCの沈着割合や、その過程でBCが受ける加熱影響を明らかにすることが重要と考えられる。

キーワード：南極、昭和基地、積雪、ブラックカーボン、粒径分布、季節変化

Keywords: Antarctica, Syowa station, snow, Black carbon, size distribution, seasonal variation



α -ピネンのオゾン分解で生成するSOAの揮発特性の測定と結果の解釈

Volatility measurements of SOA formed from α -pinene ozonolysis and data interpretation

*佐藤 圭¹、藤谷 雄二¹、猪俣 敏¹、森野 悠¹、田邊 潔¹、高見 昭憲¹

*Kei Sato¹, Yuji Fujitani¹, Satoshi Inomata¹, Yu Morino¹, Kiyoshi Tanabe¹, Akinori Takami¹

1.国立研究開発法人国立環境研究所

1.National Institute for Environmental Studies

揮発性基底関数（VBS）モデルでは、二次有機エアロゾル（SOA）の収率曲線から評価した揮発特性が採用されている。VBSモデルを検証するため、収率曲線の測定からだけでなく、サーモデニューダー-AMSによる測定、LC-MSおよびPTR-MSによる組成分析、および外部希釈チャンバーによる測定からも乾燥条件下の α -ピネンのオゾン分解で生成するSOAの揮発特性を評価した。各測定手法から決定された揮発特性の誤差も評価した。サーモデニューダー-AMSによる加熱測定、組成分析および外部希釈チャンバー測定から評価された結果は、収率曲線の結果と比較してより低揮発性の有機物がSOA粒子中に存在することを示していた。乾燥条件下では、不均一反応によって粒子中に生成するオリゴマーの加熱特性および希釈特性がSOA粒子全体の特性に強く影響を及ぼしている可能性がある。

キーワード：二次有機エアロゾル、不均一反応、オリゴマー生成

Keywords: Secondary organic aerosol, Heterogeneous reaction, Oligomer formation

雲核生成の鍵となるジメチルスルホキシドとOHラジカルの不均一反応の研究

Experimental study on the heterogeneous reaction of gaseous OH radical with aqueous DMSO:
Determination of the $\text{CH}_3\text{SO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ production ratio

*江波 進一¹

*Shinichi Enami¹

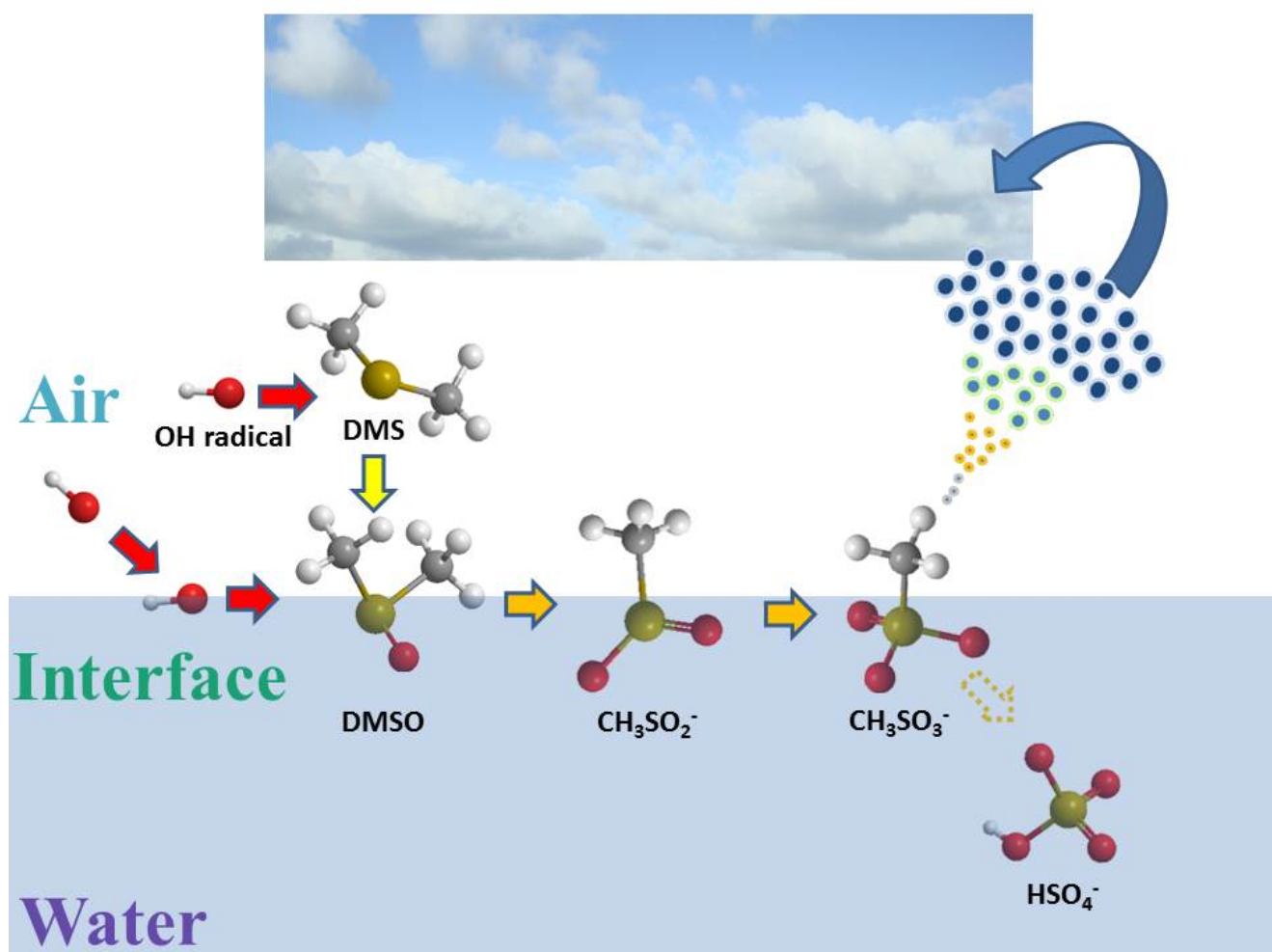
1.京都大学白眉センター

1.The Hakubi Center, Kyoto university

The oxidation of dimethyl sulfide (DMS) emitted from ocean (~ 45 Tg S per year) is a global source of cloud condensation nuclei. Hydrophobic DMS is mostly oxidized in the gas-phase into $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g}) + \text{DMSO}(\text{g})$ (dimethyl sulfoxide), whereas water-soluble DMSO is oxidized into $\text{SO}_4^{2-} + \text{CH}_3\text{SO}_3^-$ (methane sulfonate) on water surfaces. $R = \text{CH}_3\text{SO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ ratios therefore indicate the extent of DMSO heterogeneous oxidation if $R_{\text{het}} = \text{CH}_3\text{SO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ for $\text{DMSO}(\text{aq}) + \cdot\text{OH}(\text{g})$ were determined. Here, products and intermediates of the oxidation of aqueous DMSO initiated by gas-phase hydroxyl radicals, $\text{OH}(\text{g})$, at the air-water interface were directly detected by mass spectrometry in a novel setup under various experimental conditions. Exposure of millimolar DMSO aqueous microjets to ~ 10 ns $\text{OH}(\text{g})$ pulses from the 266 nm laser flash photolysis of $\text{O}_3(\text{g})/\text{O}_2(\text{g})/\text{H}_2\text{O}(\text{g})/\text{N}_2(\text{g})$ mixtures yielded an array of interfacial intermediates/products, including CH_3SO_3^- and HSO_4^- , that were unambiguously and simultaneously identified in situ by mass spectrometry. We determined $R_{\text{het}} = 2.7$ from the heterogeneous OH-oxidation of DMSO on aqueous aerosols for the first time. The nearly quantitative production of $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g})$ (that leads to SO_4^{2-}) in the oxidation of DMSO in the gas-phase versus the $R_{\text{het}} \sim 2.7$ value determined at the air-water interface means that $R = \text{CH}_3\text{SO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ variations in the aerosol, particularly in remote locations, should arise from the competition between the gas-phase versus the heterogeneous DMSO oxidation pathways. The present study reveals that interfacial OH-oxidation processes play a more significant role in the generation and growth of atmospheric aerosol over ocean than previously envisioned.

キーワード：エアロゾル、光化学的エイジング、気候変動、不均一反応、海洋化学

Keywords: Aerosol, Photochemical aging, Climate change, heterogeneous reaction, marine chemistry



小型で簡便かつ精度の高いPM2.5計測装置の開発とその応用

Development of a compact, simple and precise PM2.5 sensor and its applications

*松見 豊¹、中山 智喜¹*Yutaka Matsumi¹, Tomoki Nakayama¹

1.名古屋大学宇宙地球環境研究所

1.Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University

中国の北京で大気中に浮遊する微粒子（大気エアロゾル）が非常に高濃度になったことをきっかけとして、特に直径2.5 ミクロン以下のエアロゾル粒子(PM2.5)に関して非常に国民の関心が高まった。大陸だけでなく日本への飛来も心配されるようになってきた。PM2.5粒子に対する環境基準は、立方メートルあたりのエアロゾルの質量によって規定されている。日本におけるPM2.5の環境基準は、1年平均値が $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ、1日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること、となっている。これの質量濃度を測定する連続大気粒子モニターとしては、ベータ線吸収法やEOM原理（振動素子式マイクロ天秤）などの装置があり、全国の環境測定局や研究観測に用いられている。しかしながら、これらの測定法の装置は、非常に高価であり、また、半日程度の積算時間が必要である。そこで、パナソニック（株）との共同研究により、手のひらに載る大きさの小型のPM2.5計測器を開発してきた。

開発した小型PM2.5計測器は、LEDを光源として大気中の微小粒子による光散乱を計測するものである。測定精度を上げるため、光散乱強度から粒子径を推定して、PM2.5の質量濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）を算出している。レスポンスは1分以内である。公定法のベータ線吸収法の装置と同時計測して相関を取ると0.8以上の高い相関係数が得られている。

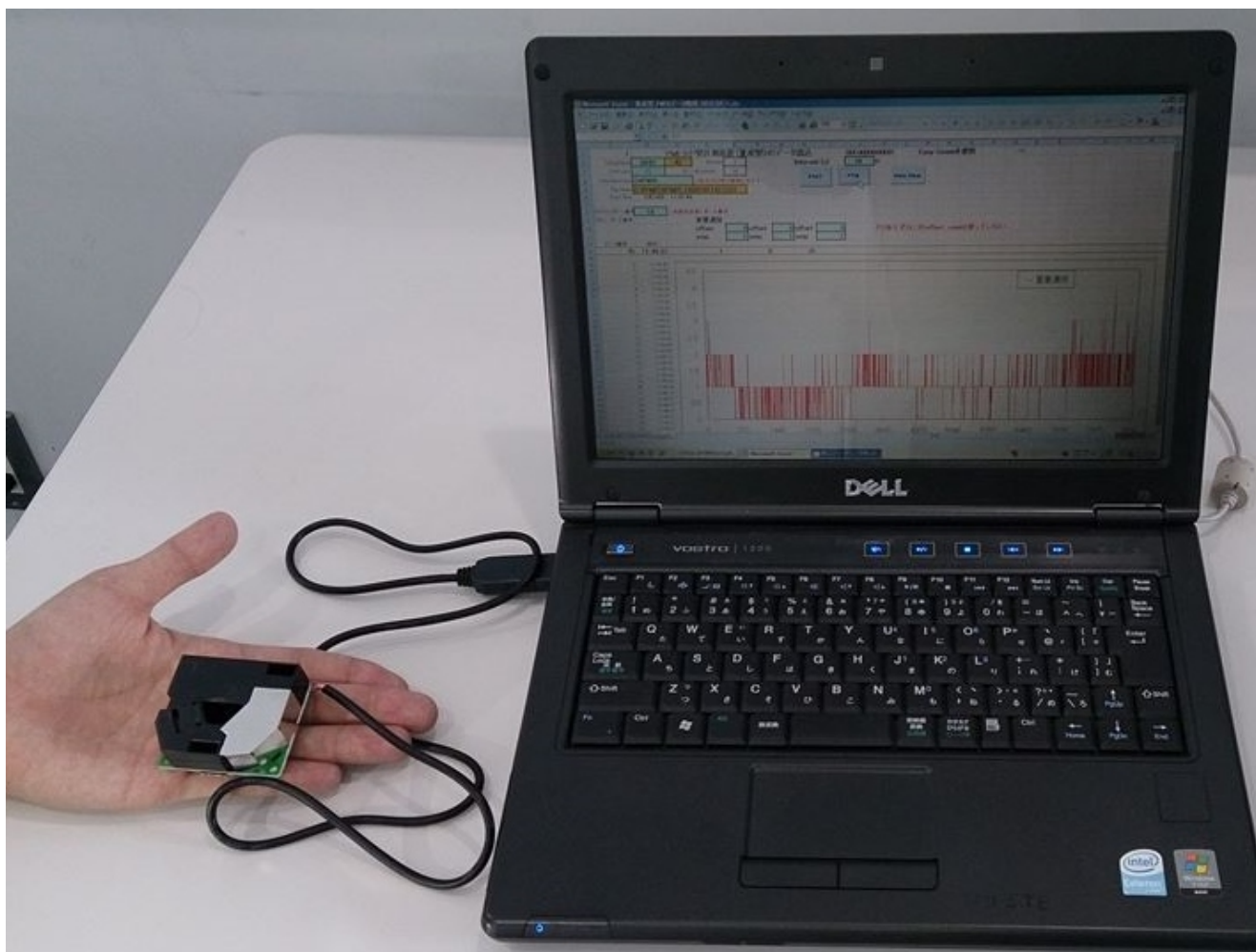
このような小型でローコストかつ簡便なPM2.5計測装置が利用可能になると、いろいろな応用の可能性が開けてくる。一つは、都市域で高密度に測定器を数多く配置して測定する応用がある。PM2.5には様々な局所的な排出源があることが予測されそれに対応した計測が可能になる。また、自動車やドローンなどの移動体に搭載し、様々な角度から大気中のPM2.5を計測することが可能になる。さらに、発展途上国でのPM2.5計測への応用があげられる。幾つかの発展途上国では、高濃度なPM2.5が大きな環境問題となり、健康影響が非常に心配されている。しかし、発展途上国の遠隔地では、安全の確保が難しく高価な機材は設置が難しい、頻繁なメンテナンスのアクセスが困難であり、さらには電力事情が悪く1日に数時間の通電しか無なく頻繁な瞬間停電があるという観測のインフラの条件がある。更には、観測条件として高い気温、雨漏り、ホコリ、虫発生、ネズミ妨害という問題がある。このような厳しい条件では高価なPM2.5計測装置での測定は困難である。今回開発した小型装置では、このような環境での測定が可能である。また、PM2.5の高濃度な地域の多点の観測は、疫学的な調査にも最適である。

発表では、開発した小型PM2.5計測器の紹介とともに、我々が開始している特性を活かした計測応用や発展途上国への展開の紹介を行う。

現在、皆様の様々で広範なアプリケーションに対応できるように、手のひらに載るPM2.5小型センサとUSBケーブルでパソコンにつなぐだけのシステムを用意している。また、センサと小型CPUを組み合わせることでUSBメモリに1年以上データを蓄積できる野外で単独で動作するシステムも用意している。本装置を使用した新たな計測応用に関して皆様の提案を受け、協力の可能性を検討したい。

キーワード：小型PM2.5計測器、機器開発、大気エアロゾル

Keywords: Compact PM2.5 sensor, Instrument development, Atmospheric aerosol



バイオマス燃焼から発生するターボール粒子

Tar ball particles from biomass burning smoke

*足立 光司¹*Kouji Adachi¹

1. 気象研究所

1. Meteorological Research Institute

Tar ball is a spherical organic particle emitted from biomass burning and is brown carbon that influences climate. Tar ball is abundant in ambient atmosphere and sometime dominates in aged biomass burning smoke. However, its effect on climate remains uncertain because both its composition and shape, which can be determined using microscopic technique, are necessary to identify tar ball. This study uses a transmission electron microscope with an energy-dispersive X-ray spectrometer (TEM-EDS) to analyze tar balls and aims to reveal its abundance in wild biomass-burning smoke and its micro-physical properties.

The samples were collected from wild fires in North America during Biomass Burning Observation Project (BBOP) 2013 aircraft campaign. BBOP campaign is an aircraft-based field campaign to study the near-field evolution of particulate emissions from biomass burning from July to October 2013. Aerosol particles from wildfires in the Western US (Idaho, Oregon, and Washington) and from agricultural burns in the Mississippi Embayment (Arkansas) were sampled. From these samples, number fractions of tar ball were measured from TEM images.

Tar balls primarily originated from wildfires and were lack in agricultural-burning smoke. They were abundant in relatively aged smoke (>several hours from emission), and the number fractions could reach more than half of all aerosol particles with aerodynamic diameter between 100 and 700 nm. Samples with relatively high tar ball fractions were focused, and the bulk optical and chemical compositions within the smoke with many tar balls will be discussed. Abundances and optical properties of tar balls shown in this study are useful to evaluate their effects on the global climate.

キーワード：エアロゾル、透過型電子顕微鏡、気候、ターボール、バイオマス燃焼

Keywords: aerosol, Transmission electron microscope, climate, tar ball, biomass burning

ブラックカーボン粒子の湿性除去過程の観測的研究

Observational study of wet removal process of black carbon particles

*森 樹大¹、大畑 祥¹、茂木 信宏¹、小池 真¹、近藤 豊²*Tatsuhiko Mori¹, Sho Ohata¹, Moteki Nobuhiro¹, Makoto Koike¹, Yutaka Kondo²

1.東京大学大学院理学研究科、2.国立極地研究所

1.Graduate school, Tokyo University, 2.National Institute of Polar Research

ブラックカーボン（BC）は、太陽光を吸収し大気を加熱するエアロゾルである。BCの放射強制力推定の不確実性を減らすためには、BCの空間分布の支配要因の一つである湿性除去過程を観測的に理解することが重要である。この除去過程には、BC含有粒子が雲凝結核(CCN)として作用し、雲粒を介して除去されるnucleation scavenging と落下する雨滴との衝突により除去されるimpaction scavenging がある。理論的には両者の除去効率が粒径に強く依存することが知られているが、その相対的な寄与率はこれまで観測的に検証されていない。そこで本研究では、局地的な対流性の雲に伴う夏季（2014, 2015年7～8月 東京）の降水イベントにおいて、大気と降水中のBC粒径別数濃度の同時観測を行い、両者の比率で表されるBC除去効率の粒径依存性が大気中のBCのCCN特性の粒径依存性で説明可能かどうかを調べた。BCのCCN特性は、大気中のBC含有粒子の被覆の厚さと吸湿特性を観測することにより推定した。全32回のうち29回の降水イベントにおいて、観測された除去効率の粒径依存性はCCN特性の粒径依存性で説明可能であった。これは、BCの主要な除去過程がnucleation scavenging であることを示している。残りの降水イベントでは、大粒径のBCの除去効率がCCN特性のみでは説明できず、impaction scavengingの寄与も含むと考えられる。

キーワード：ブラックカーボン、湿性除去

Keywords: Black carbon, wet deposition

Aerosol single scattering albedo comparison between SKYNET and AERONET

*Pradeep Khatri¹, Hitoshi Irie¹, Tamio Takamura¹

1.Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

SKYNET and AERONET are two aerosol observing networks in the world. Though aerosol optical thickness (AOT) between them are reported to agree fairly well, their aerosol single scattering albedo (SSA) values have some difference. To explore the reasons behind inconsistent SSA between SKYNET and AERONET, we analyzed collocated observation data of SKYNET and AERONET of four sites, Chiba (Japan), Pune (India), Valencia (Spain), and Seoul (Korea). SKYNET and AERONET algorithms are found to produce nearly same SSAs for similarity in input data, suggesting that SSA differences between them are primarily due to quality of input data due to different calibration and/or observation protocols as well as difference in quality assurance criteria. The most plausible reason for systematically overestimated SKYNET SSAs is found to be underestimated calibration constant for sky radiances determined from the disk scan method in SKYNET, though the disk scan method is noted to produce stable wavelength dependent values in comparison to those determined from the integrating sphere used by AERONET. Aerosol optical thickness (AOT) difference between them can be the next important factor for their SSA difference, if AOTs between them are not consistent. Difference in surface albedos between SKYNET and AERONET while analyzing data can also bring SSA difference between them, but the effect of surface albedo is secondary. The aerosol non-sphericity effect is found to be less important for SSA difference between these two networks.

Keywords: aerosol, single scattering albedo, SKYNET

2014年及び2015年富士山で捕集したエアロゾルの個別粒子分析

Analysis of individual aerosol particles collected at the top of Mt. Fuji in 2014 and 2015

*土井 瀬菜¹、岩本 洋子¹、三浦 和彦¹*Sena Doi¹, Yoko Iwamoto¹, Kazuhiko Miura¹

1.東京理科大学

1.Tokyo University of science

Atmospheric aerosol particles impact on climate effects by scattering and absorbing solar radiation directly, and by changing radiative properties of clouds indirectly as cloud condensation nuclei (CCN). Climate effects of atmospheric aerosol depend to a large extent on physicochemical properties of individual particles. Morphological features and mixing states of individual particles in the free troposphere are important to investigate aging of particles during long-range transport and its potential impacts on climate. To elucidate morphological features and chemical composition of individual particles according to their sources and weather conditions, we collected aerosol samples at the summit of Mt. Fuji (35.36°N, 138.73°E, 3776 m a.s.l) located in the free troposphere during summer in 2014 and 2015.

The aerosol samples were obtained using a cascade impactor (the 50 % cut-off diameters of the stages were 0.25 μm and 1.0 μm) on carbon-coated collodion films for 1 hour at flow rate of about 0.55 L/min. To measure the heights of individual particles, particles were coated with Pt / Pd alloy at a shadowing angle of $\arctan 0.5$. Size and chemical composition of individual particles were analyzed using a transmission electron microscope (TEM) equipped with an energy-dispersive X-ray (EDX) analyzer. In this study, 11 samples were obtained and analyzed. The backward trajectories and the average relative humidity (RH) along the trajectories were computed using the HYSPLIT trajectory model (https://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php).

In this study, the particles were classified into 9 types (Figure1) based on their morphological features (Ueda *et al.*, 2011). Most of particles were classified as *eroded*, *dome-like* or *cluster* particles. In this study, particles classified as the *cluster* particles were included in 6 samples. The *cluster* particles were comprised of some units of *spherical* or *coccoid* particles. It is reported that the *cluster* particles are formed under low RH and rich in sulfur (Ueda. *et al.*, 2011). In this study, however the *cluster* particles were formed under high RH condition. Analysis based on backward trajectories indicates that the sizes of individual particles that constituted *cluster* particles depend on sources and weather conditions. Therefore, the formation mechanism of cluster particles has to be investigated further.

キーワード：大気エアロゾル、透過型電子顕微鏡、個別粒子分析

Keywords: Atmospheric aerosol, TEM, Individual particles analyses

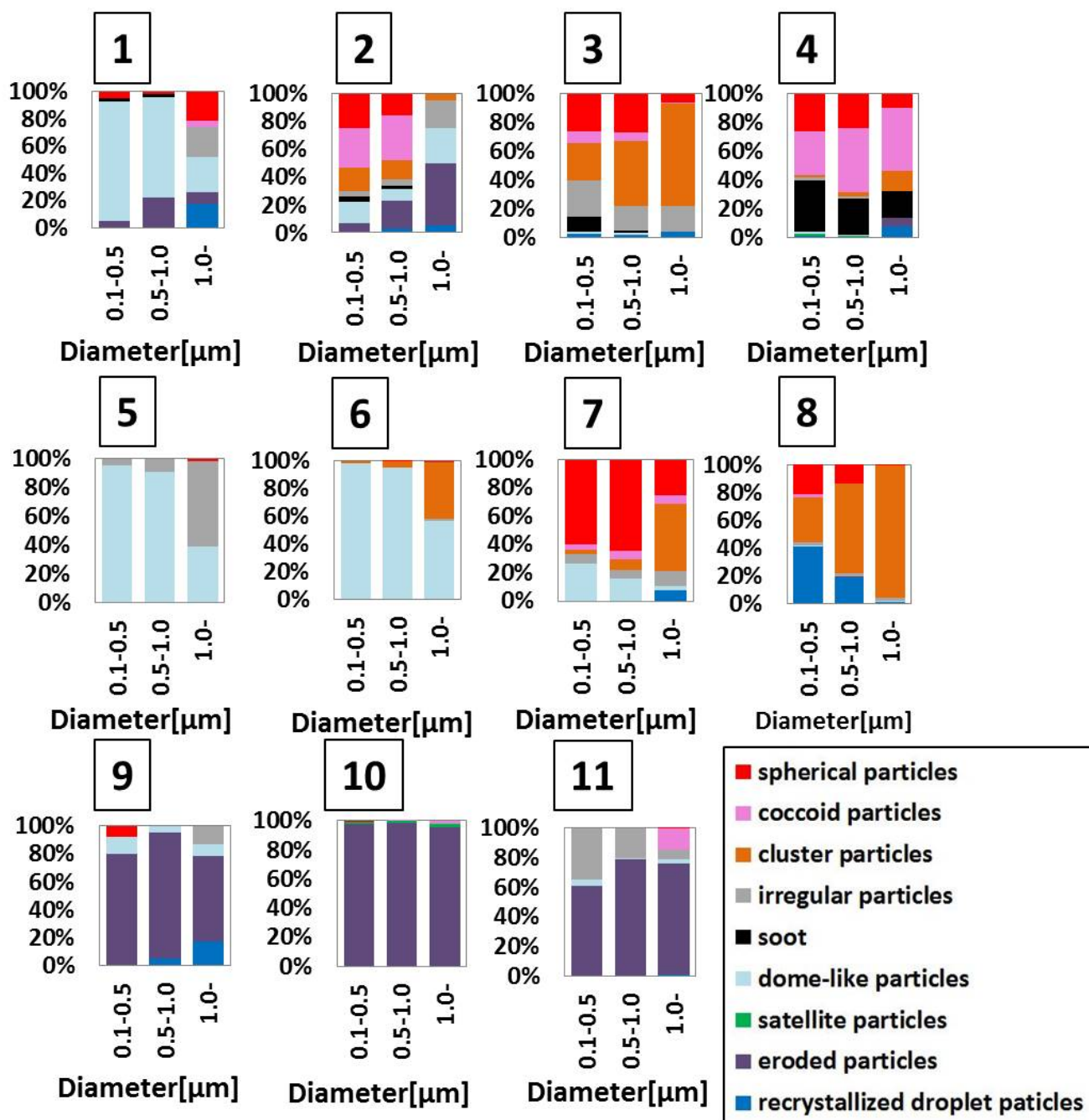


Figure. 1 Size-segregated number proportions of morphological types of particles for samples.

名古屋都市大気に含まれる水溶性粒子状物質の吸湿性のオフライン分析

Off-Line Analysis of the Hygroscopicity of Water-Soluble Particulate Matter in the Urban Air of Nagoya

*中村 優亜¹、宮崎 雄三²、陳 慶彩¹、持田 陸宏¹*YUUA NAKAMURA¹, Miyazaki Yuzo², Chen Qingcai¹, Mochida Michihiro¹

1.名古屋大学大学院環境学研究科、2.北海道大学低温科学研究所

1.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, 2.Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

Atmospheric aerosol particles are involved in the cloud formation process in the atmosphere by acting as cloud condensation nuclei (CCN). Whether the particles act as CCN are governed by the chemical composition as well as the size and the condition of the water-vapor supersaturation. The presence of water-soluble matter (WSM) in the particles is essential for the CCN activation. Because the composition of water-soluble fraction is complex in terms of the water-soluble organic matter (WSOM), it is difficult to understand the relationship between the composition of aerosol particles and their CCN activity. In this study, we investigated the hygroscopicity of the WSM and the WSOM in urban aerosols over Nagoya, based on the collection of aerosol samples on filters and the analysis of the CCN activity of the water soluble components in the laboratory. The relationship between the O/C ratio of the WSOM and their hygroscopicity was also examined.

Atmospheric aerosol particles with aerodynamic diameters smaller than $0.95 \mu\text{m}$ ($\text{PM}_{0.95}$) were collected on filters in the Higashiyama Campus, Nagoya University, Nagoya, Japan, from 11 to 31, August 2013. Ten aerosol samples were collected, and aerosol components on the filters were extracted with water. Particles were generated by atomizing an extract solution, and they were classified by size using a differential mobility analyzer (DMA). Whereas the classified particles were counted using a condensation particle counter (CPC), CCN-active particles among the classified particles were counted using a CCN counter (CCNC). Four different water-vapor supersaturation (SS) conditions of 0.13%, 0.27%, 0.47%, 0.90% were applied to investigate the CCN activity of the particles. Activation diameters were determined from size-resolved CCN fractions, and then the hygroscopicity parameter κ of WSM (κ_{WSM}) were calculated. The mass concentrations of WSOM in the sampled atmospheric aerosols were obtained from the analysis of WSOC using a total organic carbon analyzer and the OM/OC ratios derived from the mass spectra collected using a high resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer (HR-ToF-AMS). The hygroscopic parameter κ of the WSOM (κ_{WSOM}) was calculated using the κ value of the generated particles and the chemical composition data. Two different methods, i.e., a regression-extrapolation method and a Zdanovskii, Stokes, and Robinson (ZSR) method for respective samples, were used to obtain the κ_{WSOM} values.

The κ_{WSM} ranged from 0.34 to 0.51 with a mean of 0.44. The κ_{WSOM} calculated from the regression-extrapolation method were in the range from 0.23 to 0.28 for four respective SS conditions. From the ZSR method for respective samples, the κ_{WSOM} were calculated to be on average 0.16 - 0.28. Whereas no clear relationship was observed for the κ_{WSOM} derived from the regression-extrapolation method and the SS conditions, the higher the SS condition was, the higher the κ_{WSOM} derived from the ZSR method for respective sample was. Further investigation about the cause of the difference of the κ_{WSOM} derived from these two methods is necessary. In the analysis of the studied ten aerosol samples, no clear relationship between the O/C ratio and the κ_{WSOM} was found (r : -0.21).

太平洋とその縁辺海で得られた海洋性エアロゾルの個別粒子分析

Individual particle analysis of marine aerosols collected over the Pacific Ocean and its marginal seas

*吉末 百花¹、岩本 洋子¹、足立 光司²、加藤 俊吾³、三浦 和彦¹、植松 光夫⁴

*Momoka Yoshizue¹, Yoko Iwamoto¹, Kouji Adachi², Shungo Kato³, Kazuhiko Miura¹, Mitsuo Uematsu⁴

1.東京理科大学理学部第一部物理学科、2.気象研究所、3.首都大学東京都市環境学部、4.東京大学大気海洋研究所

1.Department of Physics, Faculty of Science Division I, Tokyo University of Science,

2.Meteorological Research Institute, 3.Faculty of Urban Environmental Sciences, Tokyo Metropolitan University, 4.Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo

海洋表面の波しぶきから発生した海塩粒子は、大気中の硫酸、硝酸、メタンスルホン酸（MSA）などの酸性物質と反応して変質する。これらの酸性物質として、人為起源、海洋生物起源の硫化ジメチル（DMS）、火山起源のものが存在する。海塩粒子と反応した酸性物質は海塩粒子に取り込まれ海洋に沈着するため、大気中の寿命が短くなり雲核となりにくい。従って、海塩粒子が豊富に存在する環境では、雲による地球の冷却効果は予想よりも小さいと考えられる。本研究では、南北太平洋で捕集したエアロゾル粒子について個別粒子分析を行い、海塩粒子の変質度合の海域による違いを明らかにした。また、変質の原因となる酸性物質の起源を考察した。

試料採取は、学術研究船白鳳丸KH-13-7 航海（2013/12/11～2014/2/12）とKH-14-3 Leg2 航海（2014/7/17～8/11）において行った。捕集した個々のエアロゾル粒子について、透過型電子顕微鏡を用いた形態観察と、エネルギー分散型X線分析器を用いた元素分析を行った。

ほとんどの海域において、変質していない海塩粒子が分析対象粒子のうち80%以上を占めるものの、グアム島近海で得られたサンプルは硫酸塩が85%以上を占めていた。グアム島近海では、アジア大陸を経由した気塊が到達していることや、ラドン濃度や粒子数濃度も高いことから、大陸由来の汚染気塊の影響があったと考えられる。また、アリューシャン列島近海で得られたサンプルには硫酸塩と変質海塩が多く含まれていた。Na、Cl、Sの相対重量比をプロットした三角ダイアグラムより、海塩粒子は硫酸もしくはDMSの酸化によって生成されるMSAによる変質を受けていたことが分かった。また、この硫酸の起源は、生物起源の他にカムチャツカ半島から輸送された火山起源物質の可能性が示唆された。

キーワード：海洋大気エアロゾル、海塩、硫酸塩、火山、硫化ジメチル、メタンスルホン酸

Keywords: marine atmospheric aerosol, sea-salt, sulfate, volcano, dimethyl sulfide, methanesulfonic acid

2011年夏季関東地域を対象とした大気質モデルによる二次大気汚染物質の再現性の評価
Evaluation of performance of simulated secondary air pollutants by using air quality models for the Kanto area in summer 2011

*山地 一代¹、上出 広和¹、茶谷 聡²、速水 洋³、嶋寺 光⁴

*Kazuyo Yamaji¹, Hirokazu Uede¹, Satoru Chatani², Hiroshi Hayami³, Hikari Shimadera⁴

1.神戸大学、2.国立環境研究所、3.電力中央研究所、4.大阪大学

1.Kobe University, 2.NIES, 3.CRIEPI, 4.Osaka University

Emissions and concentrations of primary atmospheric pollutants (eg. NO_x and VOCs) have been decreased in the Kanto area owing to conduct their emission regulations. Nevertheless, atmospheric pollutants such as particulate matters (PM) with aerodynamic diameter less than 2.5 μm (PM_{2.5}) and photochemical oxidants (O_x) have still remained high concentration levels and their air quality standards of Japan have not been attained at most monitoring stations (Ministry of the Environment of Japan (MOE), 2015). For forming effective air pollution control strategies, currently, we raise expectations for applying air quality models reproducing complicated physical and chemical processes of both of primary and secondary pollutants.

The urban air quality model inter comparison study in Japan (UMICS) was started to improve performances of air quality models (eg. Chatani et al., 2014, Shimadera et al., 2014). UMICS showed some critical problems immanent in the air quality models. For example, the models tended to overestimate NO₃⁻ but to underestimate OA, although simulated PM_{2.5} concentrations were reasonable with comparing to observations at Kanto area (Shimadera et al., 2014). In terms of O₃, the models reproduced well the diurnal and inter-diurnal variations in the O₃ concentrations at most observational stations in Kanto area but tended to overestimate nighttime O₃ and to underestimate daytime O₃ at several observational stations (Morino et al., 2010), therefore these models might have a risk failing to predict some of high pollution events.

In order to find the causes of discrepancies between the simulated and observed concentrations of secondary pollutants, constituents of PM_{2.5} and O₃, in this study, air quality simulations were performed using the Weather Research and Forecasting (WRF) model for a meteorological model and the Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) model system for a chemical transport model under the following different model settings. Meteorological analysis data (FNL/NCEP and MSM/JMA) with both different temporal and spatial resolutions were used as for input data of meteorological simulations by the WRF model, respectively. Additionally, the updated JEI-DB (JATOP Emission Inventory Data Base) was used for input emission information for the CMAQ model. Performances of these models under different settings were evaluated by comparing with observed concentrations (O₃, PM_{2.5}, and constituents of PM_{2.5}) of secondary pollutants at Kanto area, which were provided by UMICS and MOE. These results are also compared with the previous studies (eg. Shimadera et al., 2014).

キーワード：大気質モデル、二次汚染物質、都市大気

Keywords: Air quality model, secondary pollutants, Urban Air quality

二次元ビン法を用いた全球エアロゾルモデルの開発

Development of a global aerosol model using a two dimensional bin method

*松井 仁志^{1,2,3}、大島 長⁴*Hitoshi MATSUI^{1,2,3}, Naga Oshima⁴

1.名古屋大学、2.コーネル大学、3.海洋研究開発機構、4.気象研究所

1.Nagoya University, 2.Cornell University, 3.Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology,
4.Meteorological Research Institute

エアロゾルの放射や雲・降水過程を介した気候影響評価の不確定性幅は依然として非常に大きく、気候変動予測において大きな不確定要因の1つとなっている。エアロゾルの気候影響を精度良く推定するためには、エアロゾルの質量濃度だけではなく、従来のモデルでは十分に表現されてこなかった数濃度・粒径分布や個々の粒子の化学組成（混合状態）といった情報も必要になる。これまでの我々の研究では、これらの情報を直接表現できる二次元ビン法を用いたエアロゾルモデルATRAS (Aerosol Two-dimensional bin module for foRmation and Aging Simulation) を開発し、領域3次元モデルWRF-chem (Weather Research and Forecasting model with chemistry) への導入・検証・適用を行ってきた。そして、これまでのモデルでは十分に推定できなかったエアロゾルの微物理・化学特性の様々なパラメータを計算することで、このような詳細なエアロゾルモデルの重要性・必要性を示してきた [Matsui et al., 2014; Matsui, 2016a, 2016b]。本研究では、この二次元ビン法を用いたエアロゾルモデルを大幅に改良し、全球気候モデルCAM5 (Community Atmospheric Model version 5) への導入・計算・検証を行った。

二次元ビン表現を用いた全球エアロゾルモデルの開発にあたっては、モデルの計算コストという観点が非常に重要になる。領域モデルでは限られた領域（例えば東アジア域）について短期間（数週間～数年程度）の計算を行う一方、全球モデルでは地球全体について長期間（数年～数千年程度）の計算が必要になる。そこで、ATRASモデルの精度を維持しつつ表現を簡略化した新たなボックスモデルの開発を行った。エアロゾルの微物理・化学過程に関する全てのプロセスのソースコードを全面的に見直すとともに、二次元ビン表現で必要となるエアロゾルの変数の数を減らすことで計算コストを大幅に削減した。これらの変更によって、エアロゾルの数濃度・粒径分布・混合状態の計算精度を維持しつつ、領域モデルで使用しているATRASモデルに比べてエアロゾルプロセスの計算コストが1/10程度となるボックスモデルを開発した。

このボックスモデルを全球モデルCAM5へ導入し、5年間のテスト計算を行った。CAM5に導入されている既存のエアロゾルモデルMAM (Modal Aerosol Module) との比較やエアロゾル観測との比較を行い、導入したエアロゾルモデルが概ね良好なパフォーマンスを示すことを確認した。また、詳細なエアロゾルモデルを用いることによって初めて表現できるエアロゾルのパラメータを計算し、その空間分布などを調べた。

発表では、ボックスモデルの概要・結果を示すとともに、全球エアロゾルモデル計算についてMAMや観測との比較、感度実験の結果などを紹介したい。

参考文献:

Matsui, H. et al. (2014), Atmos. Chem. Phys., 14, 10315-10331.

Matsui, H. (2016a), J. Geophys. Res. Atmos., 121, doi:10.1002/2015JD023998.

Matsui, H. (2016b), J. Geophys. Res. Atmos., 121, doi:10.1002/2015JD023999.

キーワード：エアロゾル、全球エアロゾルモデル、二次元ビンモデル、数濃度、粒径分布、混合状態

Keywords: Aerosol, Global aerosol model, Two-dimensional bin model, Number concentration, Size distribution, Mixing state

衛星観測・全球化学輸送モデルによるホルムアルデヒドの全球収支とBVOCsエミッション量の推定
Estimating global budget of formaldehyde and BVOCs emission using satellite observations
and global chemistry transport model

*須藤 健悟^{1,2}、磯野 結貴¹、伊藤 昭彦^{3,2}、宮崎 和幸²

*Kengo Sudo^{1,2}, Yuki Isono¹, Akihiko Ito^{3,2}, Kazuyuki Miyazaki²

1.名古屋大学大学院環境学研究科地球環境科学専攻、2.海洋研究開発機構、3.国立環境研究所

1.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, 2.Japan Marine-Earth Science and
Technology, 3.National Institute of Environmental Studies

本研究では、大気中のホルムアルデヒド（HCHO）の全球分布・収支に着目し、全球化学気候モデルによる大気化学シミュレーションと衛星観測データを用いて、植物起源VOCs（BVOCs）の全球エミッション量やメタン酸化量の推定を試みた。ホルムアルデヒドは主に大気中のメタン（CH₄）や揮発性有機化合物（VOCs）の酸化によって生成される物質であるため、ホルムアルデヒドの全球分布・収支からCH₄濃度やVOCsのエミッション量を推定することができる。本研究で用いたモデルは大気化学モデルCHASER（MIROC-ESM版）であり、成層圏・対流圏における大気化学反応過程や、硫酸塩・硝酸塩エアロゾルや二次有機炭素エアロゾル（SOA）の生成が考慮されている。モデル中の気象場（*u, v, t*）に対してはNCEP-FNLデータを用いたナッジング（緩和）を適用した。人為起源およびバイオマス燃焼起源のエミッションについては、それぞれEDGAR-HTAP2およびMACC再解析インヴェントリを用い、BVOCsのエミッションについては、陸域生態系・微量ガス交換モデルVISIT(Ito, 2008)やMEGAN (Guenther et al., 2006) による推定値（2000-2012年対象）を基準データとして使用した。本研究では、まず、全球平均HCHOカラム濃度について、OMI衛星観測とモデル実験の比較により、BVOCsのエミッション量を推定した。この結果、主要なBVOCsであるイソプレンの全球エミッション量は 300~400 TgC yr⁻¹ と推定され、既存の推定値（VISIT, MEGAN）（>500 TgC yr⁻¹）は過大評価である可能性が示唆された。全球のHCHO生成量への寄与は、メタン酸化からの生成が最も大きく（約66%）、BVOCsによる生成寄与は21%（イソペンエミッション量を400TgC yr⁻¹とした場合）、産業・バイオマス燃焼からのVOCsの寄与は13%であった。一方OMI衛星観測により推定される全球平均HCHOに対するメタン酸化の寄与は約71%であり、イソプレンの全球エミッション量が300 TgC yr⁻¹以下である可能性や、人為起源VOCsのエミッション量が現状では過大評価である可能性も示された。

キーワード：植物起源有機化合物、イソペン、ホルムアルデヒド、OMI衛星観測、化学輸送モデル

Keywords: BVOCs, Isoprene, Formaldehyde, OMI satellite observation, Chemistry-transport model

植物圏における大気水素の消費に寄与する微生物群の発見と生態学的特性の解明

Contribution of plant-associated microorganisms as global sinks of atmospheric hydrogen

*菅野 学¹、Philippe Constant²、玉木 秀幸¹、鎌形 洋一¹*Manabu Kanno¹, Philippe Constant², Hideyuki Tamaki¹, Yoichi Kamagata¹

1.国立研究開発法人産業技術総合研究所、2.Centre INRS-Institut Armand-Frappier, Canada

1.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 2.Centre INRS-Institut Armand-Frappier, Canada

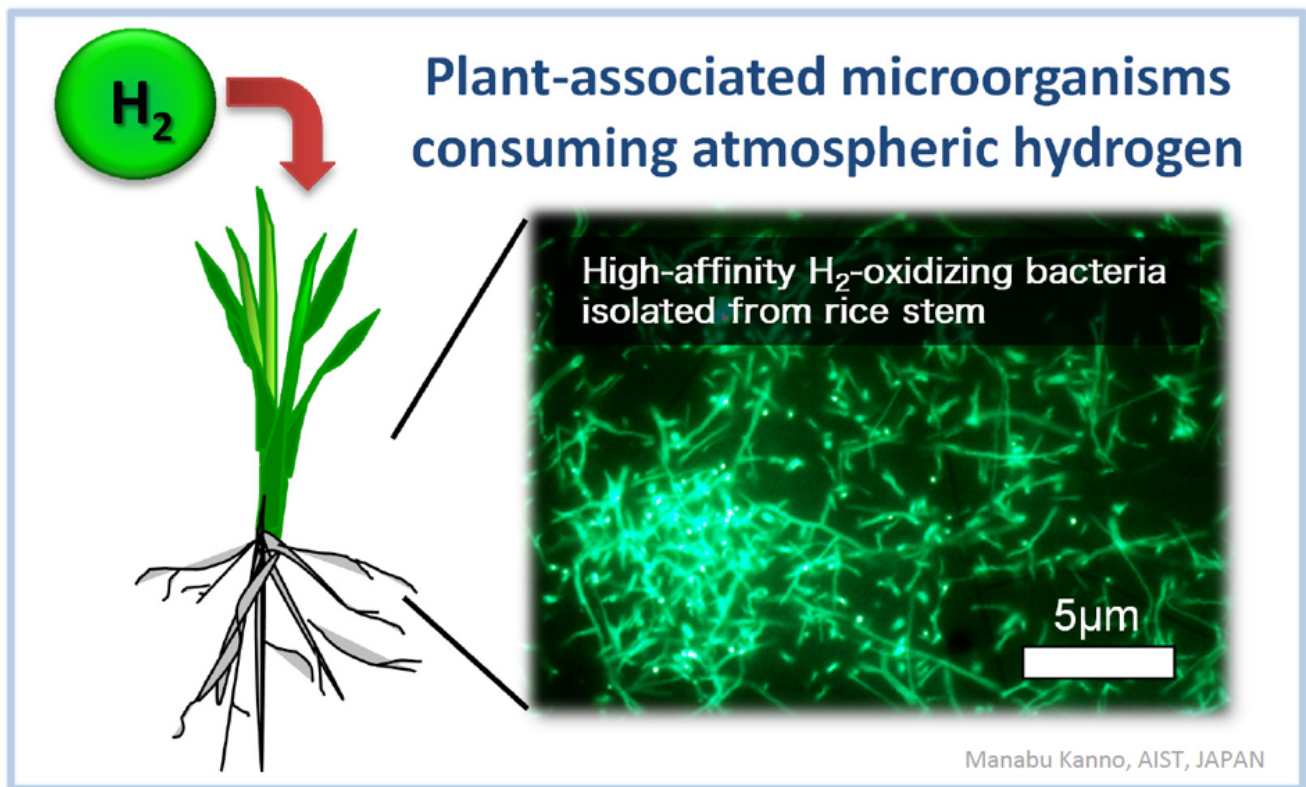
水素は、大気中に約0.530 ppmv存在する還元性ガスであり、対流圏の水素の約80%（年間0.4-0.9億トン）は陸地表層に取り込まれることが観測されている。将来の水素エネルギー社会の到来に伴う大気中の水素濃度の上昇は、メタン寿命の拡大やオゾン層の破壊を引き起こすと懸念されているが、水素がどのようにして陸地表層に取り込まれるかについてはよく分かっていない。近年になって、大気濃度レベルの希薄な水素を酸化する能力を有する微生物群（高親和性水素酸化細菌）が土壌から発見され、土壌表面における大気水素の消費に主要な役割を担う可能性が示唆された。一方で、地球上の陸地表層の50%以上を占める植物圏においては、トリチウムを用いた大気水素の取り込みが観測されているものの、それを担う微生物については明らかとなっていない。そこで、本研究では、植物表面および体内において大気濃度レベルの水素を消費しうる微生物群を探索し、その生態学的特性を解明することを目的とした。

まず、高親和性水素酸化細菌の環境分布範囲や存在量、系統的多様性といった生態学的特性を調べるために、マーカー遺伝子である高親和性水素酸化酵素をコードする *hhyL* 遺伝子を用いて、野生植物を対象とした解析を行った。供試したナズナ、シロイヌナズナ、イネ、ネギ、セイダカアワダチソウ、クローバーの6種の野生植物の全てから多様な *hhyL* 遺伝子（総42）が得られ、高親和性水素酸化細菌は環境中の植物に広く存在することが示唆された。また、単位重量あたりの *hhyL* 遺伝子の検出数は、植物と土壌で同等であった。次に、シロイヌナズナおよびイネ体内から分離した145株から、*hhyL* 遺伝子を有する7株の *Streptomyces* 属細菌を獲得した。獲得した微生物株が実際に大気水素を酸化しうるかを、微量還元性ガス分析計（RGD）を用いて試験した。その結果、7株全てが大気濃度よりもさらに低い濃度まで水素を酸化することを確認した。さらに、獲得した微生物株が植物の原位置で大気水素の消費能を示すかを検証するために、無菌土耕栽培したシロイヌナズナおよびイネに分離株を接種した。微生物特異的な蛍光可視化技術によって、接種4週間後に植物表面および植物体内への微生物の局在が確認された。微生物が共生した植物では、 $1079-3472 \text{ pmol g}_{(dw)}^{-1} \text{ h}^{-1}$ の水素酸化活性が見られ、これはトリチウムで観測された報告値と同等であった。無菌栽培した植物単独では水素の減少が全く見られないことから、微生物が植物の原位置で水素を消費していることが示された。微生物1細胞あたりの水素酸化活性は土壌と植物で同等であり、土壌圏だけでなく植物圏に棲息する微生物も大気水素の消費に寄与していることが明らかとなった。

本研究によって、植物圏における大気中の水素の取り込みに関わる微生物群の存在が初めて明らかとされた。地球上には草本植物約640億トン、木本植物約7360億トンの膨大なバイオマスが存在するが、これら植物に高親和性水素酸化細菌が普遍的に存在していると仮定した場合、微生物の地球規模での大気水素循環への寄与は多大なものと推測される。今後、植物や土壌に住む微生物群の生態学的情報と、フィールドでの水素フラックスの観測情報の統合により、水素循環の包括的な理解が期待される。

キーワード：生物地球化学、微生物生態学、大気水素フラックス、植生地

Keywords: biogeochemistry, microbial ecology, tropospheric H₂ cycle, vegetation



三酸素同位体組成を指標に用いた大気中ガス状亜硝酸の起源推定

Estimating secondary formation of atmospheric HONO using triple oxygen isotopes as tracers

*中川 書子¹、中根 令以¹、角皆 潤¹、須藤 健悟¹、野口 泉²、山口 高志²*Fumiko Nakagawa¹, Ray Nakane¹, Urumu Tsunogai¹, Kengo Sudo¹, Izumi Noguchi², Takashi Yamaguchi²

1.名古屋大学大学院環境学研究科、2.北海道立総合研究機構 環境科学研究センター

1.Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, 2.Hokkaido Institute of Environmental Sciences

大気中のガス状亜硝酸 (HONO) は、日中の光分解反応により、OHラジカルを生成する。OHラジカルは大気中の主要酸化剤であり、還元性気体 (メタンや炭化水素類) の大気寿命を決めたり、オゾンやアルデヒド等の有害成分や有機エアロゾルの生成や分解にも関与する重要な極微量成分である。HONOの発生源には、各種発生源からの「直接排出」と大気中の窒素化合物からの「二次生成」の二種類が想定される。しかし、未知の発生源が存在する可能性を含めて、HONOの発生源に関する知見は乏しいのが現状である。そこで本研究では、HONOの三酸素同位体組成 ($\Delta^{17}O$ 値) を指標に用いることで、「直接排出」由来のHONOと「二次生成」由来のHONOとの混合比の定量を試みた。「二次生成」由来のものは、その生成過程に O_3 が関与するため、生成されるHONOの $\Delta^{17}O$ 値は対流圏 O_3 ($\Delta^{17}O = +30 \pm 10\%$ 程度) に匹敵する大きな値を持つと予想される。一方、「直接排出」由来のものは、 H_2O や O_2 を起源とした一般の化学反応を経由して生成されるため、 $\Delta^{17}O$ 値が0%と考えられる。従って、大気中のHONOの $\Delta^{17}O$ 値を定量することで、全HONOに占める「二次生成」由来の寄与率を見積もることができると考えられる。

大気観測は、札幌市内にある北海道立総合研究機構の環境科学研究センターの屋上で、月に一度の頻度で行った。HONO試料の捕集は、野口ら (2007) が開発したフィルターパック法を用いて行い、吸引速度は10 L/min、捕集期間は一週間という条件で行った。HONOの $\Delta^{17}O$ 値は、大気中のHONOを炭酸カリウム含浸フィルターに捕集した上で NO_2^- として抽出し、それをアジ化水素と反応させて N_2O に変換し、さらに熱分解によって O_2 に変換した上で、質量分析計に導入して $\Delta^{17}O$ 値を定量した。また、大気中のHONO濃度は、イオンクロマトグラフ法で定量した。札幌におけるHONOの $\Delta^{17}O$ 値は+6.9から+10.7%の間であり、年間を通してほとんど一定であった。また、昼は夜よりも有意に高い $\Delta^{17}O$ 値を示した。「二次生成」由来のHONOの割合は、それぞれ日平均: 約34±2%, 昼: 66±8%, 夜: 21±2%であった。このことから、札幌のHONOの主要な発生源は「直接排出」由来であることが示唆された。

キーワード: HONO、三酸素同位体組成、二次生成、直接排出、大気

Keywords: HONO, tripple oxygen isotopes, secondary formation, direct emission, atmosphere

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¹、小林 秀樹¹、金谷 有剛¹、斎藤 正彦¹*Chunmao Zhu¹, Hideki Kobayashi¹, Yugo Kanaya¹, Masahiko Saito¹

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 良一³、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 一寛⁵

*Ryosuke Nonogaki^{2,1}, Naoko Saitoh², Ryoichi Imasu³, Kei Shiomi⁴, Yosuke Niwa⁵, Shuji Aoki⁶, Shinji Morimoto⁷, Toshinobu Machida⁸, Hidekazu Matsueda⁵, Yousuke Sawa⁵, Kazuhiro Tsuboi⁵

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 $\pm 3^\circ$ 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6 km付近でTIRデータと航空機観測データが30 ppb以内で一致したのに対し、夏季においては両者の差は30ー50 ppb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、厚木ー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バルに与える影響の評価 The impact on CH₄ retrieval of GOSAT/TANSO-FTS TIR band from the uncertainty of the continuum absorption

*山田 明憲¹、齋藤 尚子¹、今須 良一²、久世 暁彦³、塩見 慶³

*Yamada Akinori¹, Naoko Saitoh¹, Ryoichi Imasu², Akihiko Kuze³, Kei Shiomi³

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 Institute, 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 CH₄ profile at wavenumber range from 1210 cm⁻¹ to 1360 cm⁻¹ including CH₄ ν₄ 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 CH₄ retrieval band compared to that of BPS continuum model (Paynter and Ramaswamy, 2011). We study the impact on CH₄ 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 CO₂ profile, there is a potential for bias in CH₄ profile. There exist H₂O self continuum, H₂O foreign continuum, CO₂ continuum, and O₂ continuum in this band. The wavenumber dependencies of H₂O self continuum and CO₂ continuum are small in this band, while that of H₂O foreign continuum and O₂ 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 CO₂ continuum absorption and 10% larger H₂O self continuum absorption, respectively. The differences on brightness temperature were much smaller than the averaged residual. We are trying comparing GOSAT-TIR CH₄ 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

*Takahiro Nakatsuru¹, Isamu Morino¹, Osamu Uchino¹, Yukio Yoshida¹, Makoto Inoue²

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 XCH_4). 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, XCO_2 and XCH_4 , 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 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 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 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

Continuous measurement of CO₂ and CH₄ concentration from a tower network (JR-STATION) over Siberia

*Motoki Sasakawa¹, Toshinobu Machida¹, Noritsugu tsuda², Keiichi Katsumata¹, Mikhail Arshinov³, Denis Davydov³, Alexandrov Fofonov³

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 CO₂ and CH₄ 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 CO₂ and CH₄ 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 Karasevov (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 CO₂ and a SnO₂ semiconductor sensor (Suto et al., 2010) for CH₄ 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 ± 0.3 ppm for CO₂ and ± 5 ppb for CH₄.

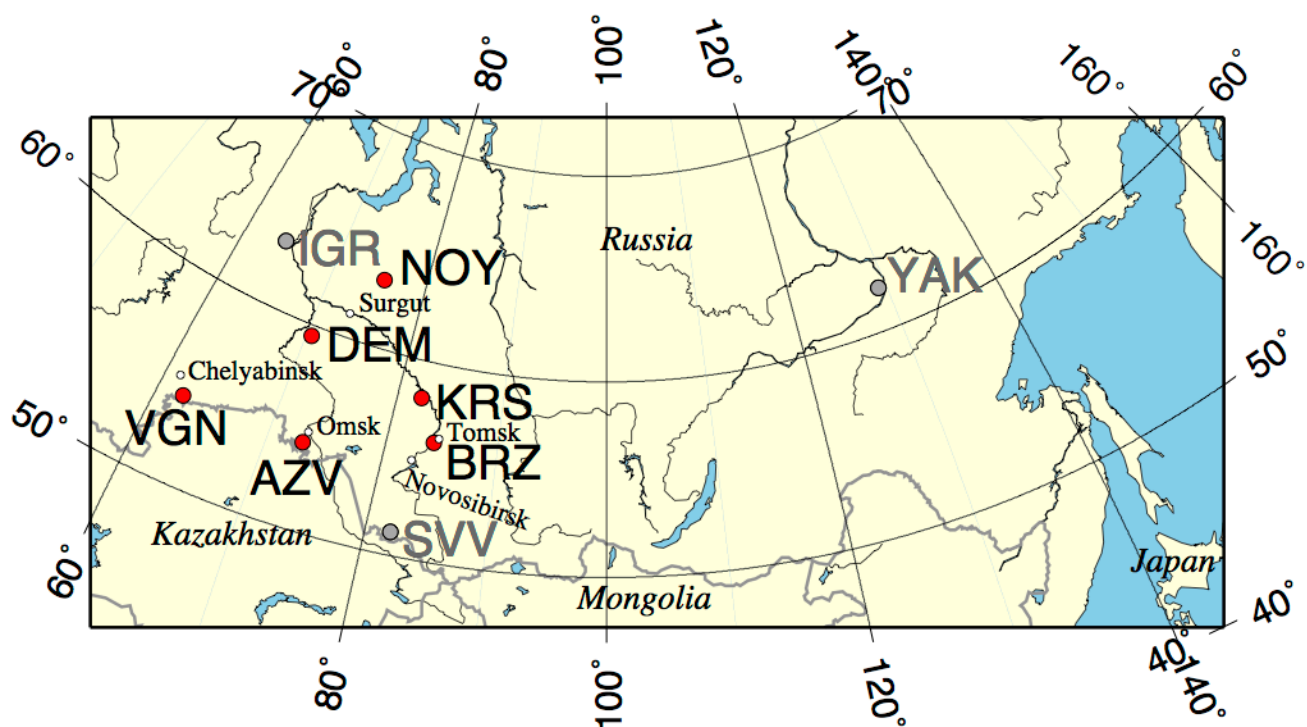
Both CO₂ and CH₄ concentration showed clear diurnal variation during summer mainly due to the diurnal variation of the PBL height (Sasakawa et al., 2012), which is pronounced in inland continental locations such as Siberia. Sasakawa et al. (2013) reported that daytime (13:00–17:00 LST) mean data observed at the towers can capture the characteristic of CO₂ 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 CO₂ 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 CO₂ 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CO₂濃度変動成分の起源推定法の開発Estimation of the CO₂ source by measuring oxygen and carbon isotopes in atmosphere*保科 優¹、遠嶋 康德¹、寺尾 有希夫¹、勝又 啓一¹、向井 人史¹、町田 敏暢¹、遅野井 祐美¹*Yu Hoshina¹, Yasunori Tohjima¹, Yukio Terao¹, Keiichi Katsumata¹, Hitoshi Mukai¹, Toshinobu Machida¹, Yumi Osonoi¹

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（CO₂）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CO₂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CO₂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CO₂が交換するが、その際のO₂: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¹⁴Cが含まれないため、¹⁴C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、¹³Cも発生源によって異なる値を持つと考えられる。したがって、CO₂の濃度変動に伴う酸素、¹³C、¹⁴C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、CO₂および酸素濃度は連続測定により、また、¹³Cおよび¹⁴C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、CO₂とそのΔ¹⁴Cとの関係からは、CO₂濃度変化の6、7割が化石燃料起源と推定された。また、¹⁴Cの結果を用いて生物起源成分を除いた化石燃料成分の-O₂: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¹³C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¹、中島 英彰^{2,3}、森野 勇²*Isao Murata¹, Hideaki Nakajima^{2,3}, Isamu Morino²

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C₂H₆はCH₄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、C₂H₆がCH₄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、C₂H₆の酸化過程で生成するアセトアルデヒド(CH₃CHO)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C₂H₆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⁻¹と②2983.20 - 2983.50 cm⁻¹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⁻¹は用いない。これは③の領域にはH₂O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 × 10¹⁶ molecule/cm²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 × 10¹⁶ molecule/cm² [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OH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 Hashimoto¹, Yusuke Kindaichi¹, Kenichi Tonokura¹

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 CO₂ and CH₄ 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 μm 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 CaF₂ 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 σ) 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 blew 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 blew 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、川崎 梓央¹、鶴丸 央^{2,3}、Sathiyamurthi Ramasamy²、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 Sadanaga¹, Shio Kawasaki¹, Hiroshi Tsurumaru^{2,3}, Ramasamy Sathiyamurthi², Yosuke Sakamoto², Ito Kensuke², Fujii Tomihide², Shungo Kato⁴, Tomoki Nakayama⁵, Yutaka Matsumi⁵, Yoshihiro nakashima⁶, Kazuhide Matsuda⁶, Yoshizumi Kajii^{2,7}

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_x) 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 ($\text{Ox} = \text{O}_3 + \text{NO}_2$) production rate ($P\text{-}L(\text{Ox})$). The use of Ox can ignore the concentration variations of O_3 by the reaction of O_3 with NO .

Details of a $P\text{-}L(\text{Ox})$ 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 (ΔOx) in air from the two chambers is the photochemical net Ox production in the reaction chamber. The $P\text{-}L(\text{Ox})$ is obtained by dividing ΔOx by a mean residence time of air in the reaction chamber. Ox concentrations were obtained as follows. Ozone in Ox is converted into NO_2 by the reaction of O_3 with large excess of NO , and then the 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. $J(\text{O}^1\text{D})$), meteorological parameters, O_3 , CO , NO_x , VOCs concentrations, and so on as well as $P\text{-}L(\text{Ox})$ were observed simultaneously. In this presentation, the main factor of ozone concentration increases (photochemical or meteorological factor), and relationship among $P\text{-}L(\text{Ox})$, $J(\text{O}^1\text{D})$ and concentrations of ozone precursors were discussed. In addition, $P\text{-}L(\text{Ox})$ 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, Photochemical 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¹、入江 仁士²、Khatri Pradeep²

*Satoshi Onuma¹, Hitoshi Irie², Pradeep Khatri²

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ロ波放射計(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、マイクロ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、降雨後はマイクロ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ロ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がマイクロ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

*奥崎 昂也¹、入江 仁士¹

*Takaya Okuzaki¹, Hitoshi Irie¹

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_2)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_2 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_2 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た日において、 SO_2 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: SO_2 , MAX-DOAS, volcano

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¹、加藤 知道¹*Hitoshi Irie¹, Tomomichi Kato¹

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 (NO₂) and sulfur dioxide (SO₂). 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 angles 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、HCHOKeywords: 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 Murakami¹, Hiroki Otake¹, Nobuyuki Takegawa¹

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 Ramasamy²、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 Kuruma¹, Tomoki Nakayama¹, Yutaka Matsumi¹, Hiroshi Tsurumaru², Ramasamy Sathiyamurthi², Yosuke Sakamoto², Manabu Irie², Akira Ida², Shungo Kato³, yoshihiro nakashima⁴, Kazuhide Matsuda⁴, Yoshizumi Kajii^{2,5}

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多い。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、粒子生成に寄与す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。SO₂ や O₃ 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¹⁾ 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、SO₂, 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 SO₂ 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 Hyono¹, Atsushi Matsuki², Kento Kinouchi¹

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 (NOTOGR0), 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, SO₂ gas was continuously measured using (Model, 43B SO₂ Analyzer), from which we calculated H₂SO₄ 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 SO₂ gas which is considered as the main precursor of aerosol particles. Comparison with the number size distributions revealed that, the values of the H₂SO₄ proxy were high in most cases when NPF events occurred. The daytime maximum values of the H₂SO₄ proxy were extracted and compared among the days with and without NPF. As a result, the values of H₂SO₄ 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 豊¹

*Maho Nakagawa¹, Tomoki Nakayama¹, Hiroshi Sasago¹, Yuki Kuruma¹, Hikari Yai², Shuhei Ogawa², Yange Deng², Michihiro Mochida², Yutaka Matsumi¹

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¹⁾。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($\lambda = 532$ 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ことが考えられる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 Pan¹、茂木 信宏³、平山 紀友²、竹川 暢之^{3,4}

*Fumikazu Taketani¹, Yugo Kanaya¹, Takayuki Nakamura², Naoki Takeda², Hiroyuki Koizumi², Takuma Miyakawa^{1,3}, Xiaole Pan¹, Moteiki Nobuhiro³, Noriyuki Hirayama², Nobuyuki Takegawa^{3,4}

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¹、入江 仁士²、Khatri Pradeep²

*Takehiro Hatakeyama¹, Hitoshi Irie², Pradeep Khatri²

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 Khatri¹, Hitoshi Irie¹, Tamio Takamura¹

1.Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

Long-term observations of aerosol characteristics 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^{1,2}, Daniel Luis Bautista^{1,2}, Nofel Lagrosas^{1,2}

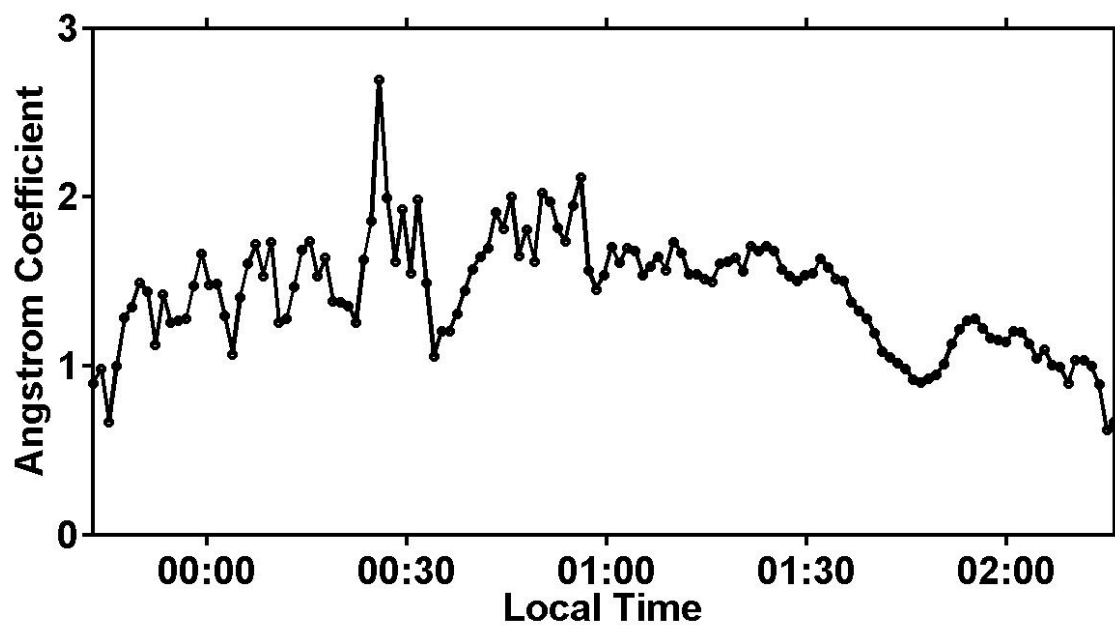
1.Manila Observatory, 2.Ateneo de Manila University

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 2nd 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^{1,2}, John Paolo Miranda^{1,2}, Nofel Lagrosas^{1,2}

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 1.2 μ m 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 0.3 μ m. 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 0.04 μ m 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 0.8 μ m 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

