

平成 22 年 6 月 30 日現在

研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20710021  
 研究課題名(和文) 大気中のグリオキサール濃度の立体分布解明：新しい遠隔測定インバージョン法の開発

研究課題名(英文) Clarification of three-dimensional distributions of atmospheric glyoxal concentration: development of the new remote sensing inversion method

## 研究代表者

入江 仁士 (IRIE HITOSHI)

独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境変動領域・研究員

研究者番号：40392956

## 研究成果の概要(和文)：

本課題で開発したグリオキサール(CHOCHO)の高度分布導出法で MAX-DOAS のスペクトルデータを再解析したところ、北京市・泰安市・横須賀市では大気境界層中の CHOCHO 濃度が平均で約 200 pptv と高濃度であったことが分かった。つくば市と辺戸岬では 80 pptv 程度であった。衛星データを組み合わせると、横須賀周辺では高濃度域は数十 km 以内、中国では数百 km の空間スケールで広がっていたことが示唆された。

## 研究成果の概要(英文)：

Analysis of MAX-DOAS-measured spectrum data by the newly-developed remote sensing inversion method for glyoxal (CHOCHO) vertical profiling shows that the CHOCHO concentration was as high as 200 pptv in the planetary boundary layer at Beijing, Tai'an, and Yokosuka. At Tsukuba and Hedo, the concentration was about 80 pptv. Combining them with satellite data, high concentration regions are suggested to have spatial scales less than tens and hundreds km around Yokosuka and in China, respectively.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

## 研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境計測、グリオキサール、インバージョン法、遠隔測定、MAX-DOAS

## 1. 研究開始当初の背景

大気中のグリオキサール(CHOCHO)は光化学オキシダントや浮遊粒子状物質の原因となっている揮発性有機化合物(VOC)が酸化して生成する物質であり、濃度レベルは数 ppbv まで達するという報告もある。VOC は主要な成分だけでもベンゼンやトルエンなど 100 種類以上にのぼり、測定法が確立され

ていないものも多く、発生源、環境実態も良く理解されていない。一方で、CHOCHO は VOC の光化学反応の活性度をよく示す可能性が近年活発に議論され、世界的にも関心が集まってきている。

今後 10 年の中期的未来においてはアジアの発展途上国からの VOC 排出の急激な増加

が予測されており、我が国への悪影響が懸念されている。さらには、CHOCHOは大気中エアロゾル粒子の変質及び二次生成過程に深く関与していると考えられ、高精度な気候変動予測の鍵を握るエアロゾル動態解明の一助となりうる。こういった問題に適切に対応する上で、新たな観測技術を開発・検証してグリオキサールの立体分布を理解することが極めて重要となってきている。

最近になって可視域での吸収断面積が高精度で測定された。これを受けて、衛星から測定された可視光の分光スペクトルが再解析され、CHOCHOのカラム濃度(地表から大気上端までの積算量)のグローバルな緯度経度分布が得られているが、定量的検証がなされていないことに注意が必要である。また、高度分布の報告は皆無に等しい。

## 2. 研究の目的

私はこれまで、日本及び中国において、MAX-DOAS法(多角度-差分吸収法)を用いて地上から紫外可視域の太陽散乱スペクトルを測定するとともに、独自のインバージョン法を開発して、主に二酸化窒素( $\text{NO}_2$ )やエアロゾル消散係数の高度分布を導出してきた。この経験を活かしてMAX-DOASによる測定技術を発展させる形で、本課題では、新たなインバージョン法を開発し、これまで測定したスペクトルデータを再解析することで、CHOCHOの高度分布を多地点で明らかにする。また、同時に得られるカラム濃度データで検証された衛星データを使って、緯度経度分布を明らかにする。

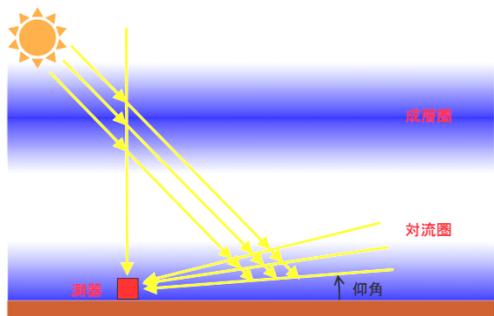


図1 MAX-DOAS装置の測定ジオメトリ(左)。天頂(仰角90度)から測器に入射する散乱光スペクトルと低仰角のスペクトルの比を取り、成層圏の寄与を相殺し高感度で対流圏の高度分布を測定できると考えられている。

## 3. 研究の方法

MAX-DOASは、従来の受動型DOAS装置(天頂の太陽散乱光を測定する紫外可視分光計)に複数の低仰角測定機能を加えて、対流圏中の微量ガスとエアロゾルの高度分布を高度2km以下では約1kmの分解能で測定できる。散

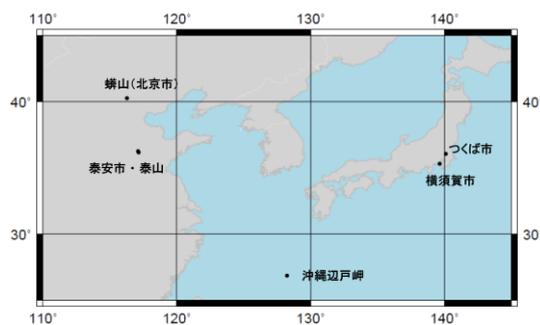


図2 本課題で対象としたMAX-DOAS観測地点。

乱光光路長の仰角依存性を利用して、複数仰角での測定と放射モデルを組み合わせ、ガスやエアロゾルの高度分布が得られるという仕組みである(図1)。

私はこれまで、日本および中国の複数地点でMAX-DOAS法を用いて地上から分光観測を実施し、膨大なスペクトルデータを取得している。本課題で対象とした観測地点を図2に示す。H20年度では、このデータを再利用する形でCHOCHOの高度分布を導出する新たなインバージョン法を開発した。具体的には、CHOCHOの吸収帯をカバーする適切な解析波長範囲を選定し、差分吸収解析(DOAS解析)を高精度化させた。また、その波長範囲において放射伝達モデルによるエアマスファクターの計算を実施し、それをロジャース最適法と組み合わせ、CHOCHOのインバージョンアルゴリズムを作成した。

H21年度では、作成したインバージョンアルゴリズムを、対象とする全ての観測地点・期間のスペクトルデータに適用し、グリオキサールの高度分布・カラム濃度を導出した。また、CHOCHOの解析波長範囲の選定を継続し、436-457nmを最適な範囲と決定した。さらに、CHOCHO鉛直カラムの人工衛星データ(GOME-2)を整備し、MAX-DOASデータと組み合わせた解析を行った。

## 4. 研究成果

まず、作成されたインバージョン法を2007年9月7日~10月3日に北京市(蟒山, Mangshan)で得られたMAX-DOASのスペクトルデータに適用させた。導出されたCHOCHOの高度分布を同期間の中央値として図3に示す。地表付近(高度0-1kmの平均、大気境界層の中)では濃度が約200pptv(中央値)と高濃度であったことが分かった。平均値は約220pptvであった。その一方で、自由対流圏(高度1km以上)では濃度が40pptv以下と低かった。

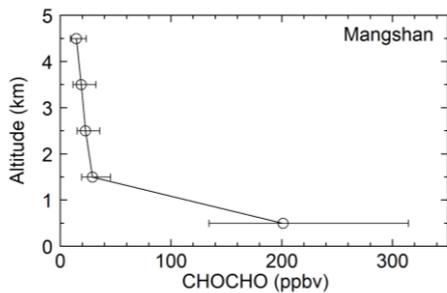


図3 2007年9月7日~10月3日に北京市(蟒山, Mangshan)で得られた CHOCHO の高度分布。高度ごとに同期間の中央値がプロットされている。

しかしながら、CHOCHO の高度分布インバージョンの自由度(degrees of freedom for signal)は  $1.08 \pm 0.10$  程度であった。このことは、高度 1 km 以上の値がアприオリに強く依存していることを示唆する。高度分布の情報量を増やすにはより高い SN 比でスペクトルを測定する必要がある。しかしながら、高度 0-1 km のデータについては、アベレーシングカーネルや感度解析からアприオリへの依存度はとても小さく、図4のように濃度は時々刻々と変化した。Days 263-264 (9月20-21日)には濃度は 500 pptv まで達したことが分かった。

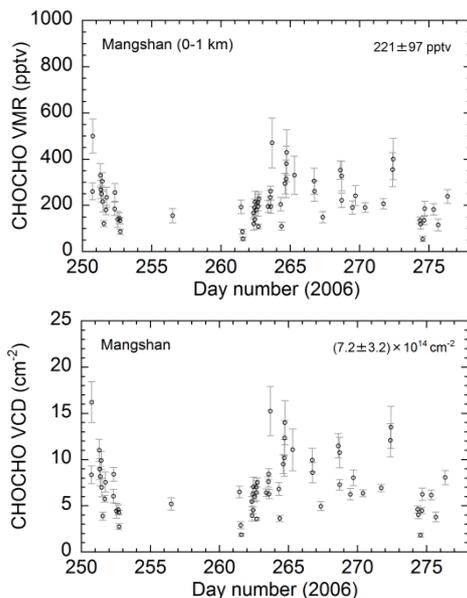


図4 (上) 2007年9月7日~10月3日に北京市(蟒山, Mangshan)で得られた高度0-1 kmの CHOCHO 混合比の時系列。(下) CHOCHO の鉛直カラム濃度の時系列。

図4には、高度分布と同時に導出された CHOCHO の鉛直カラム濃度(VCD)も示されている。同期間の平均値は、 $(7.2 \pm 3.2) \times 10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$  であった。一方、2007年9月の CHOCHO の鉛直カラム濃度の衛星データ(GOME-2)は月平均値で  $(4.3 \pm 0.6) \times 10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$  であり(図5)、MAX-DOAS の値

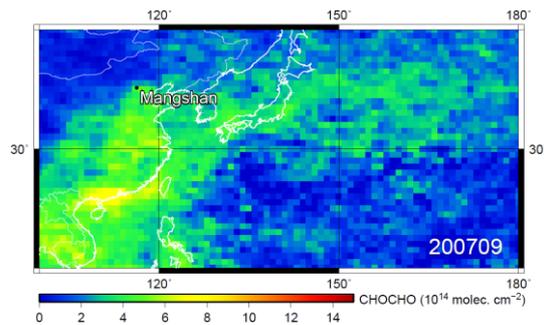


図5 衛星センサーGOME-2の CHOCHO 鉛直カラム濃度の空間分布。2007年9月の平均値がプロットされている。

と約40%以内で一致した。

2006年6月に中国泰安市で得られた MAX-DOAS データについても同様の解析を行ったところ、高度0-1 kmの CHOCHO 濃度の平均値は  $230 \pm 90$  pptv、鉛直カラム濃度の平均値は  $(7.3 \pm 2.9) \times 10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$  であった。同じ月に得られた衛星データの値は、 $(5.2 \pm 0.5) \times 10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$  (2007年6月)、 $(6.3 \pm 0.6) \times 10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$  (2008年6月)であり、衛星データの誤差が約40%以内であることを裏付けた。

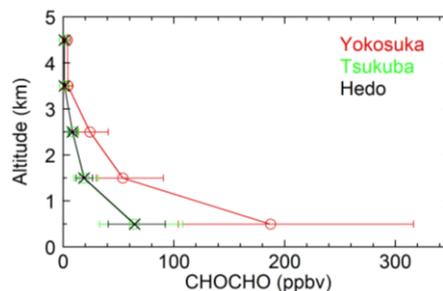


図6 横須賀、つくば、辺戸岬で得られた CHOCHO の高度分布。高度ごとに観測期間(本文参照)の中央値がプロットされている。

日本の3地点(横須賀、つくば、辺戸岬)についてはそれぞれ、2007年4-12月、2006年11月-2007年3月、2007年4-12月に得られた MAX-DOAS データを解析した。それらの期間における CHOCHO の高度分布(中央値)を図6に示す。先に述べたように、1 km 以上の高度の CHOCHO の濃度については解釈に注意が必要である。地表付近(高度0-1 kmの平均)の濃度レベルは、つくばと辺戸岬ではともに、ほぼ同じ中央値(約60 pptv)を示したが、変動幅はつくばの方が大きく、時折、200 pptv まで達することがあった。今後、発生源からの輸送の観点からその原因を解析する予定である。

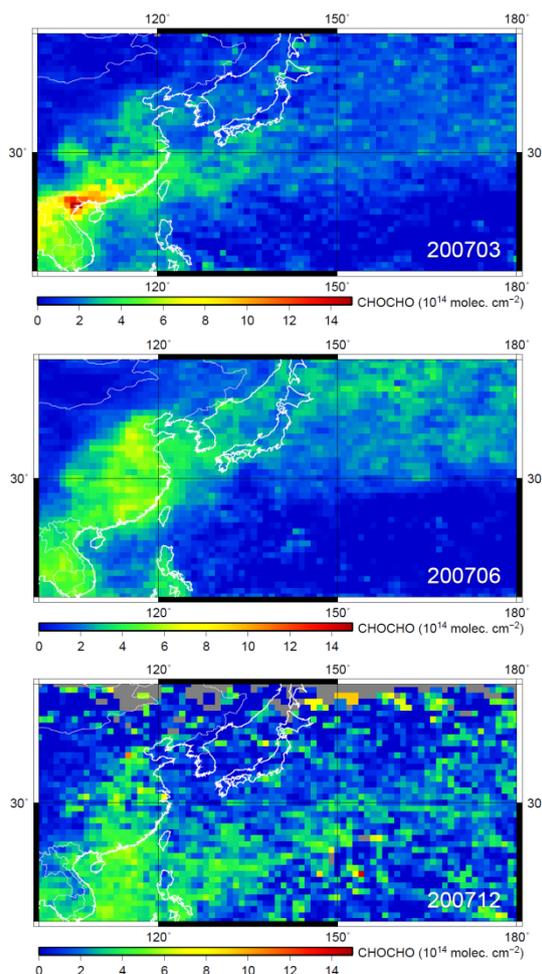


図7 衛星センサーGOME-2のCHOCHO鉛直カラム濃度の空間分布。2007年3、6、12月の平均値がプロットされている。

他方、横須賀では平均値が約200pptvまで達していた。これは、先に示した中国2地点の値に匹敵する。このように、日本の都市域からも中国の都市同様に顕著な量のCHOCHOが発生することが示唆された。

しかしながら、横須賀においてMAX-DOASと衛星データを比較すると、衛星データはMAX-DOASよりも40%以上小さかった。例えば、2007年6月と12月では、MAX-DOASの鉛直カラム濃度( $10^{14}$  molecules  $\text{cm}^{-2}$ )は $6.0 \pm 3.2$ と $9.2 \pm 5.0$ であったのに対し、衛星データの値は $2.3 \pm 0.5$ と $3.0 \pm 1.2$ であった(図7)。他方、つくばと辺戸岬では40%以内で一致した。

横須賀は工業地域に隣接しているが、衛星観測の瞬時視野(空間分解能)は $40 \text{ km} \times 80 \text{ km}$ であり、その中での濃度分布が非常に不均一であることが容易に想像できる。実際、 $\text{NO}_2$ の衛星データとMAX-DOASの比較においても、横須賀では衛星データが過小評価する傾向が見られている。したがって、MAX-DOASは高濃度を示したが、高濃度域は限られていること

が示唆される。なお、エアマスファクターの計算から、MAX-DOASの値は約10 kmの水平距離の平均とみなされるので、観測された高濃度は少なくとも数 kmの空間スケールは持っていたと考えられる。

このように、日本と中国ではCHOCHOの高濃度域の空間スケールが異なることが分かった。衛星の空間分解能や図5、図7の衛星データから、横須賀では高濃度域は数十 km以内、中国では数百 km以内の空間スケールで広がっていたことが示唆された。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計0件)

[学会発表] (計6件)

① Irie, H., Multi-component vertical profile retrievals for MAX-DOAS observations during CINDI, 2nd CINDI workshop, March 10, 2010, Brussels.

② Irie, H., Overview of the retrieval algorithm, 1st workshop on the MAX-DOAS network observation over East Asia and Russia, February 8, 2010, Yokohama.

③ Irie, H., H. Takashima, and Y. Kanaya, Simultaneous observations of atmospheric formaldehyde and glyoxal over the western Pacific in February-May 2009, SOLAS open science conference, November 16, 2009, Barcelona.

④ Irie, H., Y. Kanaya, and H. Takashima, MAX-DOAS observations by JAMSTEC - toward multi-component retrievals -, CINDI workshop, July 7, 2009, De Bilt, Neterland.

⑤ Irie, H., Y. Kanaya, H. Takashima, and H. Akimoto, Simultaneous multi-component measurements by MAX-DOAS in Okinawa, Japan, AGU Fall Meeting, December 18, 2008, San Francisco.

⑥ Irie, H., Y. Kanaya, and H. Akimoto, Simultaneous multi-component measurements by MAX-DOAS in Okinawa, Japan, IGAC conference, September 9, 2008, Annecy France.

〔その他〕  
ホームページ等  
<http://www.jamstec.go.jp/frcgc/research/p3/irie/web/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

入江 仁士 (IRIE HITOSHI)  
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境  
変動領域・研究員  
研究者番号：40392956