

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月30日現在

機関番号：82706

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2011

課題番号：22710026

研究課題名（和文） 二酸化硫黄の新遠隔計測インバージョン法の開発：大気中3次元分布の解明

研究課題名（英文） Development of the new remote sensing inversion method for sulfur dioxide: clarification of its three-dimensional distribution

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）：

本課題で開発したインバージョン法で太陽光散乱光のスペクトルデータ (MAX-DOAS) を解析し、日本・中国において SO_2 濃度は自由対流圏では概ね 1 ppbv 以下、都市域の境界層内の年平均濃度は 3 ppbv まで達しうることが示唆された。2011 年 3 月には沖縄において中国からの越境汚染の影響が示唆された。人工衛星 SO_2 データとの複合解析から、衛星データの精度が 0.5-1.0 DU であることを推定し、東アジア域において中国中東部のカラム濃度が有意に極大(約 2 DU)を示すこと等が分かった。

研究成果の概要（英文）：

The MAX-DOAS-measured scattered sunlight spectrum data were analyzed by the newly-developed inversion method for SO_2 . It was suggested that in Japan and China the free-tropospheric SO_2 concentration was usually lower than 1 ppbv and the annual-mean PBL SO_2 concentration could reach 3 ppbv at an urban site. In March 2011, an influence of trans-boundary SO_2 pollution from China on Okinawa was suggested. Combined analysis with satellite data suggested that their precision is about 0.5-1.0 DU. Considering the precision, the maximum column concentration of about 2 DU in East Asia was found around the central eastern China.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：大気環境科学、大気化学

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、二酸化硫黄、インバージョン法、遠隔測定、MAX-DOAS

1. 研究開始当初の背景

大気中に放出された SO_2 は酸化されて硫酸エアロゾルを形成し、酸性雨を引き起こす。また、 SO_2 および硫酸エアロゾルはそれら自身が人体に対して有害な物質であるばかりか、直接・間接効果を通じて気候変動をも左右する。社会的関心の高い広域大気汚染や地球温暖化の予測精度を向上させる上で、こういっ

た役割を果たす根本ともいえる SO_2 の動態解明は急務であり、新しい SO_2 の観測手法の開発が切望される。

SO_2 の実態については、これまで主に、地表付近で行われた現場観測や短期に行われた航空機観測に基づいており、鉛直分布や長期変動についての知見は乏しく、また、水平分

布についても地域的な偏りが生じてしまっている。近年、人工衛星から測定された紫外域スペクトルから SO₂ の対流圏カラム濃度を導出する試みが加速しており、ようやく気球観測との比較検証がなされはじめたところである。衛星からの SO₂ 観測の定性的な検証は、比較的観測しやすい自由対流圏 SO₂ の増大イベントについて、火山噴火との対応が調べられている。

他方、Aura 衛星に搭載された OMI センサの SO₂ カラム濃度データを東アジアについて解析してみると、中国で明らかな増大が見えるなど、産業活動が原因と推測される境界層中の濃度分布が得られる。しかしながら、衛星データはカラム濃度という特殊な物理量であるために、比較検証が十分に実施されていないのが現状である。今は、そういった境界層 SO₂ も含め、衛星データを広く検証するとともに、それに基づいて SO₂ の分布を定量的に明らかにするなどの高度な研究が可能となる新しい段階に入りつつある。

2. 研究の目的

2007 年以降、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、主に二酸化窒素やエアロゾル消散係数の高度分布を導出している。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、SO₂ の高度分布を多地点で明らかにするとともに、同時に得られるカラム濃度データを用いて衛星データを検証し、緯度経度分布も定量的に明らかにし、この分野のブレークスルーを狙う。

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

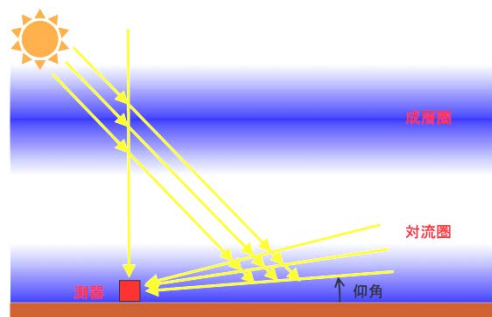


図1 MAX-DOAS 装置の測定ジオメトリ（左）。天頂（仰角 90 度）から測器に入射する散乱光スペクトルと低仰角のスペクトルの比を取り、成層圏の寄与を相殺し高感度で対流圏の高度分布を測定できると考えられている。

複数の低仰角測定機能を加えた観測手法（図1）で、対流圏中の微量ガスとエアロゾルの高度分布を高度 2 km 以下では約 1 km の分解能で測定できる。散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て、NO₂ 等の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。

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。平成 22 年度では、このデータを再利用する形で SO₂ 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、SO₂ の吸収波長帯域での差分吸収解析 (DOAS) 解析を実施した。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て、SO₂ のインバージョンアルゴリズムを作成した。平成 23 年度には、作成されたインバージョンアルゴリズムを日本・中国で取得されたスペクトルに適用し、SO₂ の高度分布・カラム濃度を導出した。SO₂ の衛星データも収集・解析し、MAX-DOAS データを利用して定量的な検証比較を行った。その結果に基づき、3 次元分布についての知見を得るために、MAX-DOAS と衛星データを組み合わせた解析を行った。

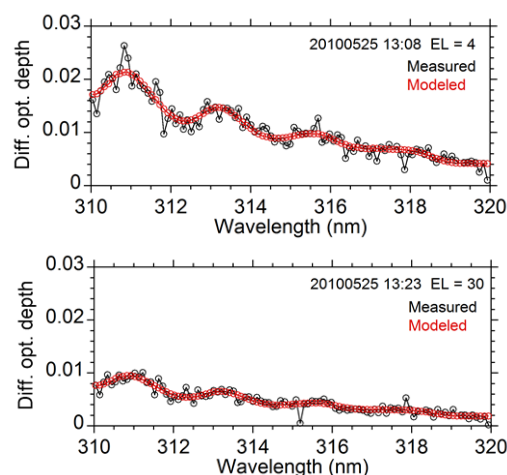


図2 DOAS フィッティング結果の一例。SO₂ の差分光学的厚さ（吸収断面積×差分スラントカラム濃度）のフィッティング結果（赤）とそれに残差を加えた値（黒）が示されている。（上）仰角 4 度、（下）仰角 30 度の結果。

4. 研究成果

本研究では、平成 22 年度に SO₂ 濃度が比較的高いと考えられる中国で得られたスペクトルを基に非線形最小二乗法によるスペクトルフィッティングを実施し、SO₂ の吸収帯をカバーする最適な解析波長範囲として 310-320 nm を選定、各仰角について SO₂ の差分スラントカラムを高精度で導出した。図2はフィッ

ティング結果の一例である。期待されるように、低仰角において差分スラントカラム濃度が高く、それに伴って SO₂ の吸収度が大きくなっていることが確認できた。

次に、放射伝達モデルを使って、SO₂ のインバージョンに最適なエアマスファクターのルックアップテーブルを作成した。また、差分スラントカラム（仰角の関数）及びエアマスファクタールックアップテーブルを入力として、ロジャース最適法を用いて、SO₂ 高度分布と鉛直カラムを導出するアルゴリズムを作成した。上海郊外 (Rudong) において、2010 年 5-6 月の平均値として、高度 0-1 km 層の SO₂ 濃度は 9 ppbv、鉛直カラムは 3.6×10^{16} molecules cm⁻² であったことが分かった。期間中の変動幅（標準偏差）はそれぞれ、8 ppbv, 3.1×10^{16} molecules cm⁻² とかなり大きいことが分かった。

平成 23 年度には、平成 22 年度に作成したインバージョンアルゴリズムを日本・中国の複数地点で得られた MAX-DOAS のスペクトルデータに適用し、SO₂ の高度分布・カラム濃度を導出した。沖縄辺戸岬、つくば、横須賀について、2011 年 1 年間の中央値の高度分布を図 3 に示す。また、中国の北京郊外 (Mangshan) と上海郊外 (Rudong) の値も示す。これら中国の値は観測が行われた約 1 か月間 (Mangshan, 9 月; Rudong, 6 月) のデータの中央値である。平均値はこの中央値とほぼ同じが、それよりも高くなる傾向があった。

MAX-DOAS データから、SO₂ 濃度は自由対流圏では概ね 1 ppbv 以下であり、都市域の境界層内の濃度は年平均値で 3 ppbv まで達しうることが分かった。

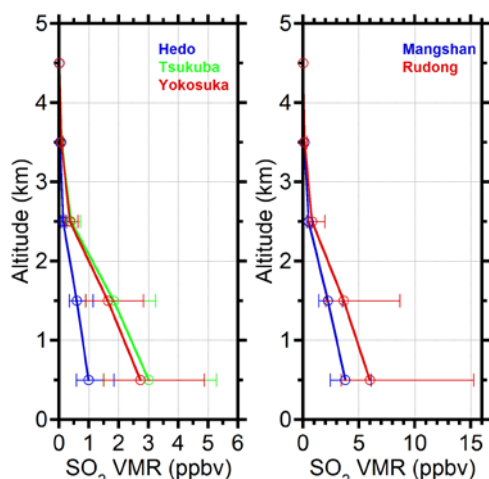


図 3 (左) 沖縄辺戸岬、つくば、横須賀における 2011 年 1 年間の SO₂ 混合比の中央値の高度プロファイル。(右) Mangshan と Rudong における観測期間中の中央値の高度プロファイル。

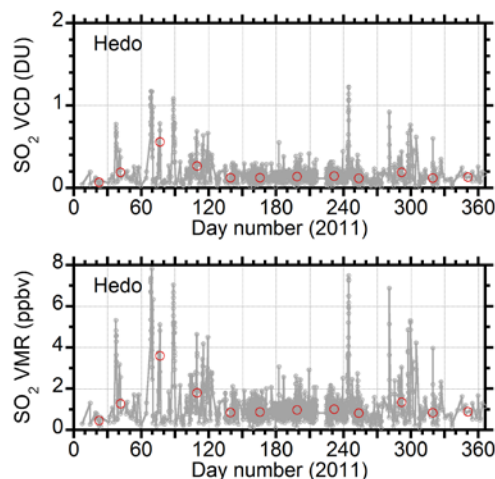


図 4 沖縄辺戸岬における MAX-DOAS のリトリーバル結果。(上) SO₂ の鉛直カラム濃度と(下)高度 0-1 km の混合比が示されている。赤丸は月毎の中央値を示す。

図 4 には、沖縄辺戸岬における MAX-DOAS のリトリーバル結果を示す。2011 年における SO₂ カラム濃度と高度 0-1km の混合比の時系列が示されている。3 月には沖縄の境界層中の SO₂ 濃度が特異的に増大していることが明瞭に確認できる。この時期は西風が卓越していたことから、中国からの越境汚染の影響が示唆される。

MAX-DOAS の各観測サイトにおける SO₂ カラム濃度の月毎の中央値を図 5 に示す。同じ季節・時刻のデータを比べると、中国の SO₂ 濃度が日本に比べて有意に高いことが確認される。

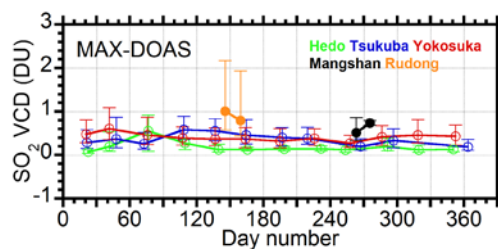


図 5 MAX-DOAS の各観測サイトにおける SO₂ カラム濃度の月毎の中央値。

3 月を除いて、辺戸の SO₂ 濃度は横須賀およびつくばに比べて有意に低かった。他方、3 月は越境汚染の影響で 0.3-0.4 DU まで増大したことが定量的に分かった。このことは GOME-2 による衛星観測が行われた 9:30 の MAX-DOAS データからも確認された(図 6)。しかしながら、GOME-2 からはそのような系統的な増大は見られなかった(図 6)。このことは、GOME-2 データの精度が 0.4 DU よりも悪いこ

とを示唆する。

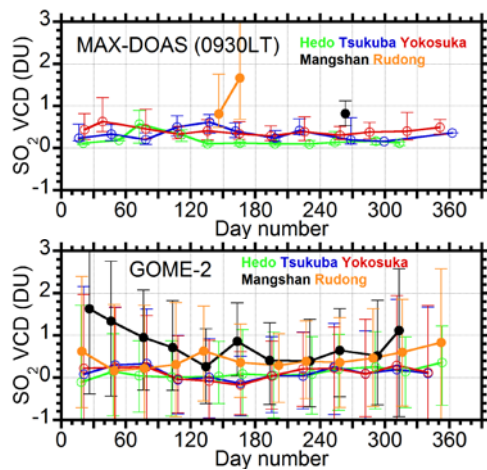


図6 (上)GOME-2が観測を行う地方時9:30におけるMAX-DOAS SO₂ カラム濃度の月毎の中央値。(下)GOME-2のSO₂カラムデータの月毎の中央値。

しかしながら、MAX-DOAS データから見られるような中国と日本のコントラストはGOME-2からも確認された(図6)。この区別ができる程度の精度(およそ0.5-1.0 DU)はあると示唆される。

以上の結果を踏まえて GOME-2 衛星データを解析した。図7には2011年の1, 4, 7, 10月におけるGOME-2 SO₂カラム濃度データの月平均マップが示されている。この図から、東アジア域において中国中東部のSO₂カラム濃度が極大(約2 DU)となっていることがどの季節でも観測された。MAX-DOASとの比較で示唆されたGOME-2の精度に比べて大きな変化であり、有意であると考えられる。このように本研究ではMAX-DOAS・衛星データを組み合わせた新しい手法によって東アジア域におけるSO₂の3次元分布についての新しい知見を得ることができた。

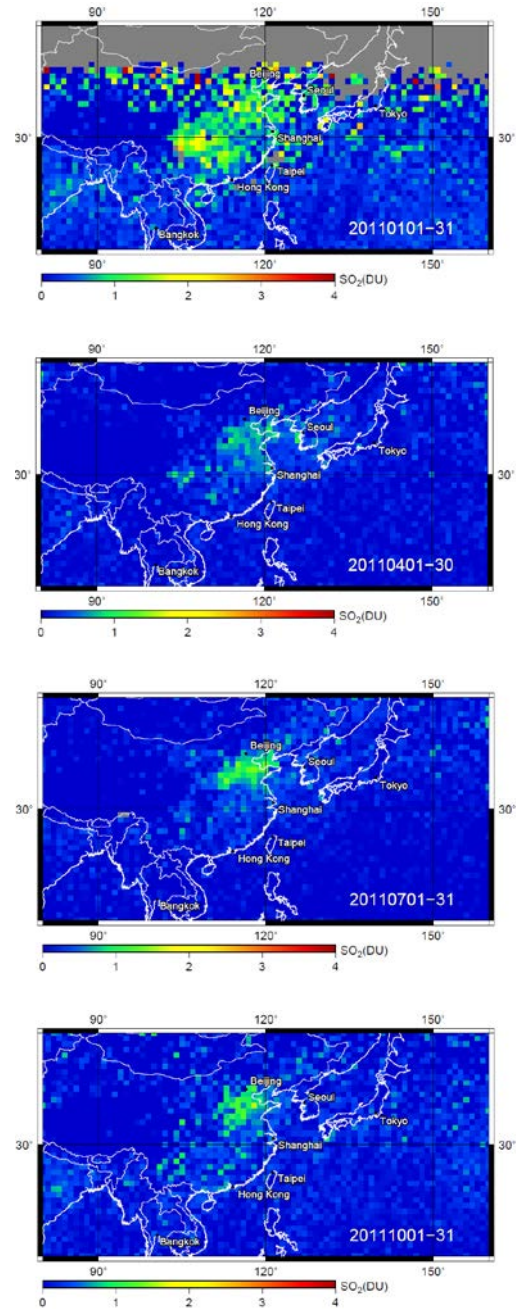


図7 2011年の1, 4, 7, 10月におけるGOME-2 SO₂カラム濃度データの月平均マップ。

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1件)

① Irie, H., H. Takashima, Y. Kanaya, K. F. Boersma, L. Gast, F. Wittrock, D. Brunner, Y. Zhou, and M. Van Roozendael, Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations, Atmospheric Measurement Techniques, 査読有, 4, 1027-1044, June 2011.

[学会発表] (計9件)

① Irie, H., Y. Kanaya, H. Takashima, K. Yamaji, X. Pan, and Z. F. Wang, MAX-DOAS observations during the Rudong campaign and relevant satellite data analysis, The Fifth International Seminar on High-mountain Air Quality Monitoring Technology and Simulation, Beijing, February 13, 2012

② 入江仁士、衛星・地上リモートセンシング観測の複合利用による大気汚染物質の時間空間分布に関する研究(大気化学研究会奨励賞受賞講演)、大気化学討論会、京都大学(京都府宇治市)、2011年10月19日

③ Irie, H., H. Takashima, Y. Kanaya, K. F. Boersma, L. Gast, F. Wittrock, D. Brunner, Y. Zhou, and M. Van Roozendael, Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations, DOAS workshop, Landesmuseum Mainz (Mainz), July 13, 2011.

④ 入江仁士、高島久洋、金谷有剛、Folkert Boersma, Lou Gast, Folkard Wittrock, Dominik Brunner, Yipin Zhou, Michel Van Roozendael, MAX-DOAS 法による8成分導出手法の開発、日本地球惑星科学連合大会、幕張メッセ(千葉県幕張市)、2011年5月23日

⑤ Irie, H., MAX-DOAS observations during the Rudong campaign and relevant satellite data analysis, Rudong data workshop, JAMSTEC Tokyo office (Tokyo), May 18, 2011.

⑥ Irie, H., H. Takashima, Y. Kanaya, K. F. Boersma, L. Gast, F. Wittrock, D. Brunner, Y. Zhou, and M. Van Roozendael, The 8-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations, AGU Fall Meeting, San Francisco, December 13, 2010

⑦ Irie, H., H. Takashima, Y. Kanaya, K. F. Boersma, L. Gast, F. Wittrock, D. Brunner, Y. Zhou, and M. Van Roozendael, Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations, the

3rd CINDI workshop, Mainz, December 1, 2010.

⑧ 入江仁士、金谷有剛、高島久洋、竹谷文一、谷本浩志、2009年春季福江島におけるMAX-DOASの8成分リトリーブの試み、日本地球惑星科学連合大会、幕張メッセ(千葉県幕張市)、2010年5月28日

⑨ Irie, H., Y. Kanaya, H. Takashima, M. Van Roozendael, F. Wittrock, and A. PETERS, Multi-component vertical profile retrievals for ground-based MAX-DOAS, EGU General Assembly, Vienna, May 7, 2010.

6. 研究組織

(1) 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