

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 25 年 6 月 3 日現在

機関番号：82101

研究種目：新学術領域研究

研究期間：2008～2012

課題番号：20120006

研究課題名（和文）ライダーおよび地上モニタリングネットワークによるエアロゾル動態解明

研究課題名（英文）Study of distribution and movement of aerosols using lidar and surface monitoring network

研究代表者 杉本 伸夫 (SUGIMOTO NOBUO)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・室長

研究者番号：90132852

研究成果の概要（和文）：エアロゾルの植物影響、健康影響の基礎データとなるエアロゾルの分布を様々な時間空間スケールで把握することを目的として、ライダーネットワーク観測および山岳部を含む地上観測を実施した。ラマン散乱ライダーから、黄砂、硫酸塩など、海塩に加えて、ブラックカーボンを推定する手法を開発し分布の特徴を解析した。また、長期間のライダーデータを疫学研究に提供した。山岳における連続観測とサンプリングを行いエアロゾルの動態、組成、混合状態を解析した。

研究成果の概要（英文）：Three-dimensional distribution and movement of aerosols were studied in various temporal and spatial scales using a lidar network including six Raman lidars, surface measurement network including mountain area. Aerosol sampling and analysis were also performed for studying the composition and mixing states of aerosols. A long-term lidar data set of the optical density of Asian dust and air pollution aerosols was constructed and provided for the studies of the effects of aerosols on human health.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	20,600,000	6,180,000	26,780,000
2009年度	21,100,000	6,330,000	27,430,000
2010年度	16,500,000	4,950,000	21,450,000
2011年度	12,200,000	3,660,000	15,860,000
2012年度	11,700,000	3,510,000	15,210,000
総計	82,100,000	24,630,000	106,730,000

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：エアロゾル、黄砂、ライダー、ラマン散乱ライダー、観測ネットワーク、光パーティクルカウンター、山岳観測

1. 研究開始当初の背景

東アジアは世界的にエアロゾルの最も多い地域であり、その放射影響の解明を目指した研究が先行研究で行われた。その中で、ライダー観測ネットワークの整備なども行われた。東アジアスケールのエアロゾルの発生、予想の概略が明らかにされた。また、東アジ

アのエアロゾルの環境影響の研究の必要性が示された。

2. 研究の目的

エアロゾルの植物影響、健康影響の基礎データとなるエアロゾルの種別毎の分布を様々な時間空間スケールで把握することを

目的とした。特に、エアロゾルの三次元的な動態の把握、エアロゾルの種別の把握、エアロゾルの混合状態の把握を研究のねらいとした。また、影響研究と連携して、植物影響、健康影響の指標となるパラメータを検討することを目標とした。

3. 研究の方法

エアロゾルの立体分布を観測するために地上ライダーネットワークおよび山岳を含む継続的な地上観測を行なった。

ライダー観測では、先行研究で整備した20地点から構成される東アジアのライダーネットワークを利用し、本研究では新たに主要地点のライダーにラマン散乱測定機能を整備して自動連続観測を行った。またラマン散乱ライダーデータから黄砂、硫酸塩など（非光吸収性の小粒子）、海塩に加えて、ブラックカーボンなどの光吸収性小粒子の分布を推定する手法を開発した。

一方、散乱強度と偏光解消度から球形エアロゾル（主に大気汚染）と非球形エアロゾル（黄砂）の濃度（消散係数）を推定する手法を用いて、過去データを含むライダーネットワークデータを解析し、各地点の地上付近の黄砂と大気汚染エアロゾルの継続的なデータセットを作成して疫学研究に提供した。

山岳観測では、光学パーティクルカウンターによるモニタリング観測を継続的に行なうとともに、エアロゾルサンプリングを行い電子顕微鏡による分析を行った。黄砂イベント等を解析するとともに、約3年間にわたるモニタリング結果を用いた動態解析や、サンプリング分析による個別粒子の組成と混合状態の解析を行った。

4. 研究成果

(1) ライダーネットワーク観測

日本、韓国、中国、モンゴル、タイ国の計20地点の2波長（1064nm, 532nm）偏光（532nm）ライダーにより継続的な観測を行なった。これによって、日本に影響するエアロゾルイベントを逃すことなく捉えた。

(2) ラマン散乱ライダーによるエアロゾル種毎の分布の解析

ライダーネットワークの主要観測地点（つくば、福江島（長崎県）、辺戸岬（沖縄県）、松江（島根県）、ソウル（韓国）、ピマイ（タイ）の計6地点）のライダーにラマン散乱光受信系を増設する改良を行ない、ラマン散乱を含む自動連続観測を行った。ラマン散乱ライダーで得られる2波長の後方散乱、1波長の消散係数、1波長の偏光解消度から4種類のエアロゾル（黄砂、硫酸塩、海塩、ブラックカーボン）を推定する手法を開発し、観測データに適用した。

図1に、測定データとエアロゾルおよび雲

の識別結果、光学特性の解析結果の例を示す。また、図2に4種類のエアロゾルの分布の推定結果の一例を示す。

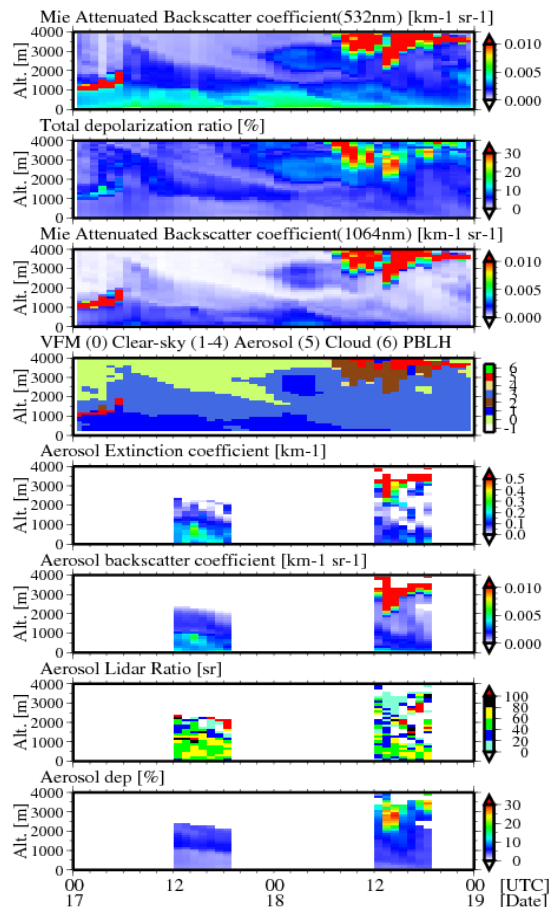


図1. ライダー観測データの例（松江、2010年4月17-18日）。上から532nmの後方散乱、全偏光解消度、1064nmの後方散乱、雲エアロゾル識別結果、ラマン散乱による532nmの消散係数、後方散乱係数、ライダー比、粒子偏光解消度

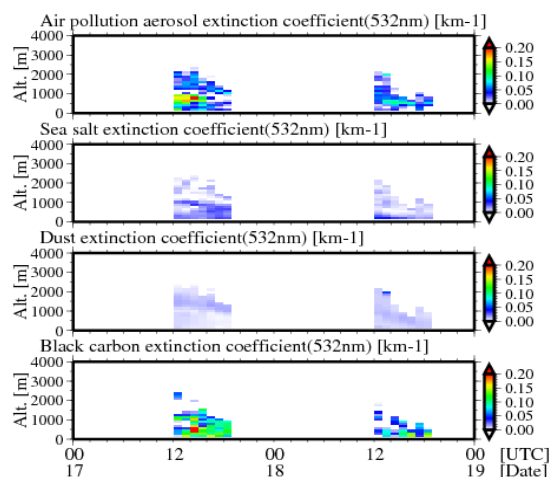


図2. エアロゾル種毎の分布の推定結果（松江、2010年4月17-18日の例）。上から、大気汚染エアロゾル（硫酸塩など）、海塩、黄砂、ブラックカーボン。

ラマン散乱ライダーの解析結果よりエアロゾルの分布の地域毎の特徴や季節変化を考察した。また、ライダー観測データは化学輸送モデルの検証や航空機観測データの解析にも利用した。

(3) ライダーデータの疫学研究への応用

ライダーネットワークデータから地上付近の黄砂と大気汚染エアロゾルの長期間の時系列データセットを構築して疫学研究に提供した。エアロゾルの解析では雲は除去されるが、雲の誤判定による異常値が消散係数に含まれる可能性があるため、適当な時間高度の区間（3時間、高度120m-1km）を定めてその区間の消散係数のメジアン値を取って代表値とし、さらに24時間の平均を取って日データとする方法で処理した。ライダー信号では、雲や霧と濃いエアロゾルの判別が難しいケースが残るため、疑わしいケースについては、3時間のメジアン値を目視で後方散乱係数と偏光解消度の表示と比べて判断し、雲などの場合は欠測扱いとする手順をとった。

ライダーの消散係数を疫学研究に利用するためには、消散係数と重量濃度の対応関係を明確にすることが重要である。黄砂は吸湿性がないので粒径分布が推定できれば消散係数を重量濃度に換算できる。そこで換算係数を(重量濃度)/黄砂消散係数と定義し、観測データとCFORSモデルを用いて、PM10、SPM、PM2.5の重量濃度と黄砂消散係数の間の換算係数を検討した。その結果、PM10、SPMに対しては粒径分布に依存して換算係数が時間的にも空間的にも変化するが、PM2.5に対する換算係数はほぼ一定であることが分かった。すなわち、ライダーの黄砂消散係数は、小粒子の黄砂(PM2.5の黄砂)と良い相関があることが分かった。さらに、同様のことはPM2.5に含まれるFeとライダーの黄砂消散係数の間に良い相関があることから確認された。一方、大気汚染性エアロゾルについては吸湿性があるため換算係数は相対湿度の関数となる。

これまでに、本研究のライダーネットワークのデータを用いていくつかの疫学研究が行われ、黄砂の小児喘息に対する影響などが報告された。また、黄砂と大気汚染の複合による呼吸器疾患の自覚症状の増加を示唆する結果も報告された。今後、エアロゾルの混合状態(外部混合か内部混合か)を考慮した研究が重要となると考えられ、混合状態の情報を含むデータの提供が必要となる。また、観測のない地点の疫学研究や地域的な特徴から慢性的な影響を評価するためには、観測データを同化した化学輸送モデルにエアロゾルの解析データセットを構築することが必要であると考えられる。

(4) 偏光パーティクルカウンターの開発

エアロゾル種毎の光学モデルの改良を目標として、単一粒子毎の粒径と偏光特性を測定できる偏光パーティクルカウンターを導入し、試験観測を行うとともに、データ解析手法を開発した。ライダーの多成分のエアロゾル解析に用いるエアロゾルの光学モデルの改良への利用が期待される。

(5) 山岳におけるエアロゾル観測

長距離輸送されたエアロゾルの動態を把握するために、中部山岳の3地点(榛名山(36.48°N, 138.88°E, 1365m)、穂高(36.27°N, 137.60°E, 2165m)、千畳敷(35.78°N, 137.81°E, 2610m))とつくばの4地点で構成されるエアロゾル観測網を構築した。

山岳の3地点では、光学パーティクルカウンター(OPC: Optical Particle Counter)(山梨技術工房製、半導体レーザー、60°散乱方式、0.3-8mm, 8ch)による粒径別エアロゾル個数濃度と気象要素(気温、湿度、風向、風速)を通年連続観測した。また、集中観測期間(10回、各3-4日間)には、エアロゾル粒子のサンプルを採取し、透過型電子顕微鏡を用いて形態、混合状態及び元素組成の個別粒子解析を行った。

まず、3地点(榛名山、穂高、千畳敷)の山岳観測の空間代表性を確かめるために、数日スケールの時間変化を検討した。その結果、千畳敷と穂高における時間変化はよく一致した。このことから、基本的に水平距離100km以上の空間代表性があると考えられる。榛名は、これらのサイトと異なる変化を示すことがあったが、高度が低いことと関東平野からの汚染大気の影響を受けやすい地理的条件のためと考えられる。

また、エアロゾルの日変化は、夏季(5-9月)に大きい、それ以外の季節では比較的小さい。10-4月は、高度の代表性の信頼性が高いと判断されることが分かった。

山岳における継続的な観測データを用いて、黄砂および大気汚染イベントの解析を行った。ライダーネットワークデータ、化学輸送モデルとの比較により、気象条件と輸送における山岳の影響などを考察した。

図3は、千畳敷で観測された0.7μm以上の個数濃度を、つくばおよび富山のライダーで観測された同高度の非球形粒子による消散係数と比較したもので、両者は非常によく対応を示した。黄砂によって個数濃度がイベント的に大きく増大する現象が、春季に集中して観測された。

冬季には東アジアから輸送された汚染大気によると考えられる総粒子個数濃度の増加現象が多く観測された。図4は、2011年2月の例である。顕著な濃度増加が3回観測され、モデルSPRINTARSによる計算結果との比

較から東アジアからの汚染大気プレームをとらえたものと考えられる。

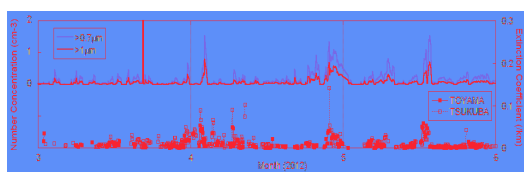


図3. 千畳敷におけるエアロゾル個数濃度(上)ライダー観測による高度2600mの非球形粒子の消散係数(下)

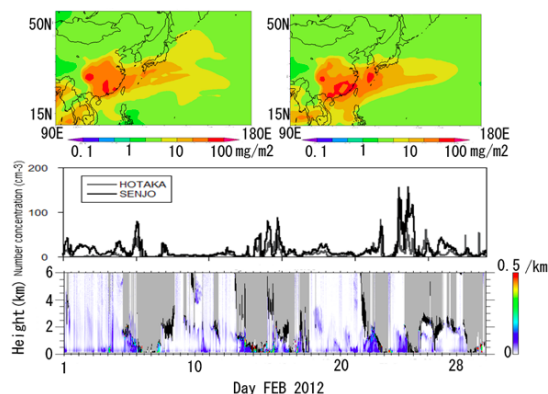


図4. 千畳敷における $0.3 \mu\text{m}$ 以上の粒子個数濃度(中)とつくばのライダーによる球形粒子消散係数の鉛直分布(下)。上は、SPRINTARSで予測された2011年2月15日(左)と2月25日の硫酸塩の日平均カラム量。

特に冬季は、下層に雲が存在することが多く、またプレームの輸送は低気圧系に伴うことが多いので、地上からのライダーでは雲のために自由対流圏のデータが得られないことも多いが、山岳のデータによってこれを補完して大気汚染現象を捉えることが可能である。

(6) 山岳におけるエアロゾルのサンプリング分析

千畳敷において10回の集中観測(各3-4日間)を行い、エアロゾル粒子を採取して透過型電子顕微鏡を用いた、形態、混合状態及び元素組成の個別粒子解析を行った。採取されたサンプルのうち、バックグラウンド大気と考えられる2012年1月17日と東アジア起源の汚染大気プレームと考えられる2012年12月21日のサンプルの電子顕微鏡写真の例を図5に示す。

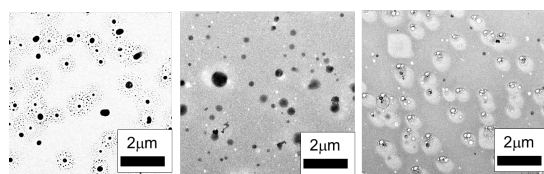


図5. 千畳敷においてバックグラウンド大気(左)と汚染大気(中・右)中で採取されたエアロゾル

粒子の電子顕微鏡写真。右はエネルギー分散型X線分析(EDX分析)の後に撮影。

バックグラウンド大気中の粒子の多くは、サテライト構造をしており、中和されていない硫酸の存在が示唆された(図5左)。電子線の照射により、核部分は蒸発したが、サテライト部分は残った。汚染大気中のエアロゾルは、硫酸アンモニウムが主成分であり、その多くは、内部に炭素を主成分とする不揮発性の核を含んでいた(図5右)。他に形態からsootと判断される粒子や炭素を主成分とする粒子が多数存在した。

図6にバックグラウンド大気と汚染大気中の個別粒子を、主要元素と形態により分類した結果を示す。

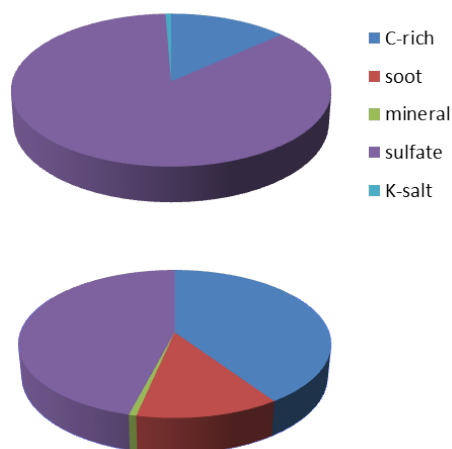


図6. バックグラウンド大気(上)と汚染大気(下)中の個別粒子を、主要元素と形態により分類した結果の例。粒子個数は各約150個。

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47件)

- ① Sugimoto, N., Hara, Y., Shimizu, A., Nishizawa, T., Matsui, I., Nishikawa, M. (2013). Analysis of Dust Events in 2008 and 2009 Using the Lidar Network, Surface Observations and the CFORS Model, *Asia-Pacific J. Atmos. Sci.*, **49** (1), 27-39. 査読有
- ② Sugimoto, N., Huang, Z., Nishizawa, T., Matsui, I., Tatarov, B. (2012). Fluorescence from atmospheric aerosols observed with a multi-channel lidar spectrometer, *Optics Express*, **20** (19), 20800-20807. 査読有
- ③ Naoe, H., Y. Zaizen, K., Yanagida, K., Okada, H., Takahashi, and Y. Igarashi (2012). Mixing state of aerosol particles at Mt. Hotaka, Japan: A case study in

- winter, *Atmospheric Research*, **118**, 170-179. 査読有
- ④ 兼保直樹、杉本伸夫、清水厚、山本重一、河本和明 (2012) ライダー観測によるダストの推定と地上観測によるエアロゾル質量濃度の比較、*大気環境学会誌* 47 (6) 285-291. 査読有
- ⑤ Shimizu, A., Sugimoto, N., Matsui, I., Mori, I., Nishikawa M., Kido, M. (2011). Relationship between Lidar-derived Dust Extinction Coefficients and Mass Concentrations in Japan. *SOLA*, 7A, 001-004. 査読有
- ⑥ Inomata, Y., Igarashi, Y., Naoe, H., Takahashi, H., Shimizu, A., Sugimoto, N., Tanaka, T.Y. (2011). Influence of blocking effect of mountain and local front on two Asian-dust events observed at Mt. Haruna and Tsukuba in Kanto, Japan, in 2007. *Atmos. Environ.*, 45, 4429-4441. 査読有
- ⑦ Hara, Y., Uno, I., Shimizu, A., Sugimoto, N., Matsui, I., Yumimoto, K., Kurokawa, J., Ohara, T., Liu, Z. (2011). Seasonal Characteristics of Spherical Aerosol Distribution in Eastern Asia: Integrated Analysis Using Ground/Space-Based Lidars and a Chemical Transport Model. *SOLA*, 7, 121-124. 査読有
- ⑧ Sugimoto, N., Hara, Y., Shimizu, A., Yumimoto, K., Uno, I., and Nishikawa M. (2011). Comparison of Surface Observations and a Regional Dust Transport Model Assimilated with Lidar Network Data in Asian Dust Event of March 29 to April 2, 2007, *SOLA* 7A, 013-016, doi:10.2151/sola.7A-004. 査読有
- ⑨ Nishizawa, T., Sugimoto, N., Matsui, I., Shimizu, A., and Okamoto, H. (2010). Algorithms to retrieve optical properties of three-component aerosols from two-wavelength backscatter and one-wavelength polarization lidar measurements considering nonsphericity of dust, *J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, **112**, 254-267, doi:10.1016/j.jqsrt.2010.06.002. 査読有
- ⑩ Takahashi, H., Naoe, H., Igarashi, Y., Inomata, Y., and Sugimoto, N. (2010). Aerosol concentrations observed at Mt. Haruna, Japan, in relation to long-range transport of Asian mineral dust aerosols. *Atmos. Environ.* 44, 4638-4644. 査読有
- ⑪ Nishizawa, T., Sugimoto, N., Matsui, I., Shimizu, A., Liu, X., Zhang, Y., Li, R., and Liu, J. (2010). Vertical distribution of water-soluble, sea-salt, and dust aerosols in the planetary boundary layer estimated from two-wavelength backscatter and one-wavelength polarization lidar measurements in Guangzhou and Beijing, China, *Atmospheric Research* 62, 602-611. 査読有
- [学会発表] (計 72 件)
- ① Sugimoto, N., Huang, Z., Nishizawa, T., Matsui, I., Tatarov, B. (2012). Study of fluorescence of atmospheric aerosols using a lidar spectrometer, Proc. of SPIE 8526, 852607, Kyoto.
- ② Nishizawa, T., Sugimoto, N., Matsui, I., Shimizu, A. (2012). Improvement of NIES Lidar Network Observations by Adding Raman Scatter Measurement Function, Proc. of SPIE 8526, 85260Q., Kyoto
- ③ Kobayashi, H., Hayashi, M., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Nishizawa, T., Sugimoto, N., Kaneyasu, N. (2012). Development of polarization optical particle counter to detect particle shape information, Proc. of SPIE 8526, 852609, Kyoto.
- ④ Sugimoto N. (2012). Assimilation of lidar observations in aerosol transport models, Proc. ILRC26, Porto Heli, Greece.
- ⑤ Zaizen, Y., Naoe, H., Takahashi, H., Okada, K. (2013). Fine mineral aerosols collected in Japan during two Asian dust events: Size distributions and mixing properties, International Symposium on Aerosol Studies Explored by Electron Microscopy. Technical report of the Meteorological Research Institute, 68, , pp. 63-64, January 2013.
- ⑥ Zaizen, Y., Adachi, K., Igarashi, Y., Naoe, H., Takahashi T. (2012). Features of aerosol particles collected at Mt. Kisokomagatake during foggy condition in summer 2012, Proc. International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health (November 29-Dec. 1, 2012).
- ⑦ Kobayashi, H., Hayashi, M., Nakura, Y., Enomoto, T., Miura, K., Takahashi, H., Igarashi, Y., Naoe, H., Nishizawa, T.,

- Sugimoto, N., and Kaneyasu, N. (2012). Field measurement of new polarization optical particle counter capable of measuring particle shape information, American Geophysical Union, fall meeting 2012, San Francisco CA.
- ⑧ Sugimoto, N. (2011). Role of Ground-Based Lidar Networks in Global, Regional and Urban Aerosol Observations, The 2nd International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing (ISALSaRS'11), Lanzhou, China.
- ⑨ Nishizawa, T., Sugimoto, N., Matsui, I., Shimizu, A., Tatarov, B., Okamoto, H. (2011). Lidar measurements for advanced aerosol classification and retrieval, The 2nd International Symposium on Atmospheric Light Scattering and Remote Sensing (ISALSaRS'11), Lanzhou, China.
- ⑩ Naoe, H., Yanagida, K., Zaizen, Y., Kajino, M. and Okada, K. (2011). Mixing states of aerosol particles at a mountain observation site Mt. Kiso-Komagatake, Japan: a case study in spring, American Geophysical Union (AGU) Fall Meeting, San Francisco, USA.
- ⑪ Naoe, H., Zaizen, Y., Yanagida, K., Takahashi, H. and Igarashi, Y. (2012). Mixing states of aerosol particles at Mt. Hotaka, Japan: a case study in winter, 92nd American Meteorological Society (AMS) Annual Meeting, New Orleans, USA.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

科研費新学術研究 A02-P05 課題、観測データ共有ホームページ

http://www-lidar.nies.go.jp/ASEPH_A02-P05/

ライダーネットワークホームページ

<http://www-lidar.nies.go.jp/AD-Net/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

杉本 伸夫 (SUGIMOTO NOBUO)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研

究センター・室長

研究者番号：90132852

(2) 研究分担者

西澤 智明 (NISHIZAWA TOMOAKI)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究院

研究者番号：10462491

財前 祐二 (ZAIZEN YUJI) (2012年度)

気象庁気象研究所・環境・応用気象応用部・主任研究官

研究者番号：70354496

直江 寛明 (NAOE HIROAKI)

(2010-2011年度)

気象庁気象研究所・環境・応用気象応用部・主任研究官

研究者番号：70354511

高橋 宙 (TAKAHASHI HIROSHI)

(2008-2009年度)

気象庁気象研究所・環境・応用気象応用部・研究官

研究者番号：80354497

(3) 連携研究者

清水 厚 (SHIMIZU ATSUSHI)

独立行政法人国立環境研究所・地域環境研究センター・主任研究員

研究者番号：90332238

松井 一郎 (MATSUI ICHIRO)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号：30229398

五十嵐 康人 (IGARASHI YASUTO)

気象庁気象研究所・地球化学研究部

研究者番号：90343897