

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760432

研究課題名(和文) UV-C波長領域を含む多波長偏光ライダーによる超微小粒子の検出

研究課題名(英文) A study on multiple-scattering lidar techniques to determine small particle-size distribution

研究代表者

矢吹 正教 (Yabuki, Masanori)

京都大学・生存圏研究所・助教

研究者番号：80390590

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、主にサブミクロン粒子の計測に用いられてきたライダー技術を基礎として、より粒径の小さい超微小粒子検出を可能とする紫外域多重散乱ライダーを開発した。ライダー信号に含まれる単散乱に対する多重散乱の寄与率から、エアロゾル粒径分布を推定するアルゴリズムを構築し、2013年9月から2014年2月にかけて、実測に基づく直接計測機器との比較検証観測に適用した。その結果、本研究で提案するライダーから推定した粒径分布は、粒径50-100nmをピークとする一峰性対数粒径分布で近似できるような計測条件では、直接観測から求めた分布状態と整合することが分かった。

研究成果の概要(英文)：In this study, depolarization lidar signals were used in combination with a multiple field-of-view receiver for detecting multiple scattering effects in order to obtain more quantitative information on small particle-size distribution. The retrieval method for evaluating aerosol size distribution is based on using a combination of UV-C or UV-A multi-scattering and visible-IR single-scattering lidar signals. We conducted simultaneous measurements with the proposed lidar and the in-situ measurement instruments, and found that the size distribution derived from the lidar signals was generally quite similar to that derived from in-situ observations, when the shape of the curve could be approximated to being monomodal log-normal distribution.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・土木環境システム

キーワード：超微小粒子 エアロゾル ライダー UVCレーザー

1. 研究開始当初の背景

日本では、大気汚染に係る環境基準としてSPM(粒径10 μm 以下の粒子)とPM2.5(粒径2.5 μm 以下の粒子)の規制がある。これらの基準は、重量を指標としたものであるため、大気中の粒子数粒径分布を考慮すると、PM2.5は粒径0.5 μm 付近のサブミクロン粒子に対する規制に対応する。一方で、直径数nm~100 μm の大きさの粒子で構成される微粒子(大気エアロゾル)を含む空気を人が吸引した場合、直径1 μm 以上の粒子は口や鼻などで除去され、0.1~1 μm の粒子の大部分は呼気として排出されるが、0.1 μm (100nm)以下のナノ粒子は気管支や肺胞に取り込まれやすいという特徴がある。超微小粒子には、ディーゼル排気粒子等、健康への影響が懸念される各種成分が含まれていることが知られているが、その時空間変動などの動態についての理解は未だ十分に得られていない。

ナノ領域の粒子は、微分型電気移動度分級装置(Differential Mobility Analyzer; DMA)により粒径の揃った単分散粒子を取り出した後に、有意な散乱光強度が得られるまで粒子を凝結して光学的に計測する手法が用いられている。この方法では、計測器内に試料空気を引き込む必要がある(直接観測という)。そのため、航空機などをプラットフォームとする飛翔体計測を除けば、それらの空間分布を時間連続で定量計測する有効な手法はなく、超微小粒子の動態の理解が進まない要因の一つとなっている。

2. 研究の目的

エアロゾルの時空間変動を把握するための観測には、リモートセンシング手法が適している。ライダーは、大気中にレーザー光を射出して、大気成分から散乱された後方散乱光を望遠鏡で受光する手法であり、黄砂などのエアロゾルや雲の鉛直分布観測に広く用いられている。エアロゾル計測に利用されるレーザー波長は、粒子の散乱による効果が抽出しやすい波長帯となるA領域紫外線(UV-A)から近赤外(波長約350~1100nm)を使用する。一般的には、波長が短いほど微小粒子に対する感度が高く、前述の波長領域においては、粒径範囲0.1~1.0 μm の粒子に対する情報が抽出できる。本研究グループでは、上記波長領域を有する多波長ライダーシステムを複数開発し、エアロゾル・雲の観測に適用してきた。次のステップとして、超微小粒子の検出に挑戦する。時空間変動の知見に乏しかった超微小粒子の情報を正確に知ること、渋滞の激しい道路や工場等の発生源から放出された粒子の移流を効率的に抑制する防塵フェンスや、霧を発生させて粉塵に吸着して空気を浄化するミストシステムの有効な取り付け位置の提案などの環境対策に利用できること期待できる。本課題では、今までエアロゾル計測に積極的に用いら

れてこなかった、オゾンによる光吸収が大きいUV-C波長領域(200-280nm)を用いたライダーによる超微小粒子の粒径情報の抽出手法を提案する。

3. 研究の方法

本研究では、次の3課題を順番に実施して、超微小粒子の時空間分布の把握のためのライダーシステムを構築した。

(1) 解析アルゴリズムの開発

エアロゾルの粒径分布情報をライダー信号から抽出する場合、単散乱信号から求まる消散係数・後方散乱係数の波長依存性がサブミクロン~粗大粒子の粒径分布の傾きと関係があることを利用する。波長1064nmおよび波長532nmの後方散乱係数の比は、カラー比と呼ばれ、雲・エアロゾルのサイズ検出に広く用いられている。しかしながら、1峰性対数粒径分布を仮定した場合、カラー比のみを拘束条件とした推定では、その値を満たす粒径分布の幾何平均半径 R_m と分布の広がり σ の組み合わせが複数存在するため決定することができない。

次に、UV-C(266nm)またはUV-A(355nm)の多重散乱信号を利用する。ここでは、光路中のオゾンによる吸収の影響を相殺するため、距離ごとの多重散乱信号と単散乱信号の比(多重散乱寄与率)をパラメータとして使用した。多重散乱寄与率は、粒子サイズや粒子濃度により大きく変化し、特に短波長領域ではナノ粒子を含む微小粒子の寄与が大きくなる。多重散乱信号の強度解析にはmultiscatter-1.2.10(Hogan, et al., *J. Atmos. Sci.*, 65, 3636-3651, 2008)を用いた。

図1に、 $R_m=100\text{ nm}$ 、 $\sigma=0.3$ を仮定して理論的に計算したライダー信号を基に、単散乱と多重散乱信号の解析により求められた R_m と σ の解をそれぞれプロットする。各信号のみからは、一つの (R_m, σ) を決定することは出来ないが、その傾きが異なる

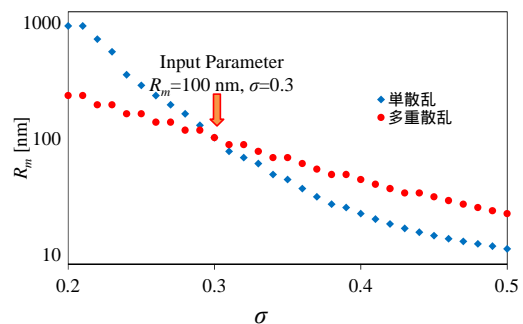


図1 $R_m=100\text{ nm}$ 、 $\sigma=0.3$ を仮定して理論的に計算したライダー信号を基に、単散乱信号と多重散乱信号の解析により求められた R_m と σ の解の組み合わせ

るため、両解析から得られた曲線の交点を求めることで、粒径分布パラメータを決定することができる。

(2) システム開発

解析アルゴリズムのシミュレーション実験の結果を基に、観測システムの開発を行った。まず、既存の3波長(355, 532, 1064 nm)偏光ライダーに、新たに4倍高調波の266 nmを発振できる機構を付加した。波長266 nmのパルスエネルギーは70 mJ(10Hz)であり、観測条件にも依存するが距離1 km程度までの観測が可能である。次に、多重散乱寄与率を計測するため、観測視野角(FOV)を高速で切り替えて計測できるマルチ視野角(MFOV)ライダーシステムを受光系に加えた。

(3) 比較検証観測

2013年9月から2014年2月にかけて、直接計測機器との比較検証観測を京大生存圏研究所信楽MU観測所にて実施した。直接観測には、サブミクロン粒子を計測する光散乱式粒子計数器(OPC)とナノ粒子を計測する走査型移動度粒径測定器(SMPS)を使用した。当初、直接観測のプラットフォームとして係留気球を用いる計画であったが、長時間安定して同期データを取得することを優先して地上における連続観測データで比較した。観測点を一致させるため、ライダーの観測視野角を水平方向に傾け、レーザー射出点から約150 m離れた光路上のヘリポートに地上観測用のコンテナを設置した(図2)。



図2 比較検証観測実験の計測器配置(京大生存圏研究所信楽MU観測所, 滋賀県甲賀市)

4. 研究成果

(1) 開発した解析アルゴリズムのシミュレーション実験

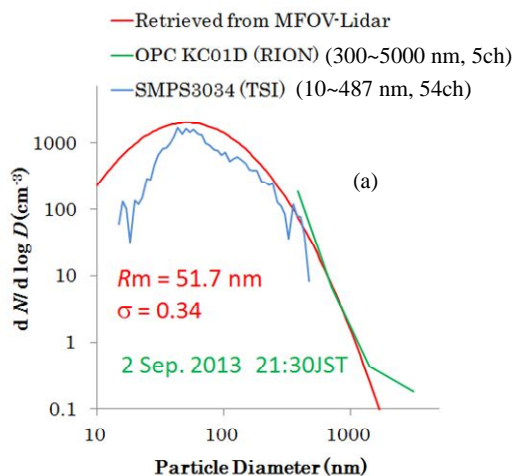
ライダー計測に広く利用されているNd:YAGレーザーから発振可能な4波長(266, 355, 532, 1064 nm)を想定したシミュレーション実験では、粒径分布の幾何平均半径が30から150 nmの時に精度良く推定できることが分かった。幾何平均半

径が100 nmの粒径分布を仮定して理論的に計算されたエアロゾル物理値や多重散乱信号にランダム誤差を加えたものを観測値として、本手法を適用した際の推定精度を検証した。観測値に誤差 $\pm 5\%$ 、 $\pm 10\%$ 、 $\pm 20\%$ 、 $\pm 50\%$ が与えられた場合、本手法で推定された幾何平均半径の1誤差は、真値となる仮定した100 nmに対して、それぞれ、 $-10 \sim 15\%$ 、 $-15 \sim 23\%$ 、 $-24 \sim 30\%$ 、 $-50 \sim 44\%$ の範囲内に収まることを確認した。

(2) 比較検証観測

多重散乱計測用にUV-AまたはUV-Cレーザーを使用した比較検証実験を、合計約300時間実施した。UV-Cを発振するレーザーヘッドの不具合により、2度の修理が必要となったことで、UV-Cを含むデータセットは十分に取得できなかったものの、提案手法の有用性の評価は行うことができた。

図3に、MFOVライダーから推定された粒径分布と直接観測(OPC, SMPS)との比較を示す。図3(a)および図3(b)に示す幾何平均半径と分布の広がり、ライダーおよび直接観測とも比較的整合する結果が得られた。一方、図3(c)で示す例では、ライダーから求めた粒径分布が過大評価となった。この理由として、粒径500 nm以上の粒子が相対的に多く本アルゴリズムで仮定する1峰性対数正規分布では表現できない分布状態になっていたこと、図3(a,b)と比べて粒子数濃度が数分の一と少なく多重散乱の効果を手早く抽出できなかったことが挙げられる。全観測期間に対して約7割のデータについては、直接観測の結果と整合したものの、清浄な大気条件下や黄砂飛来時などは正しい推定ができなかった。よって、本手法は、高濃度の微小粒子が卓越した雰囲気下では有効な手法であるといえるが、2峰性粒径分布を考慮したアルゴリズムを構築することで、その適用範囲は広がると期待される。



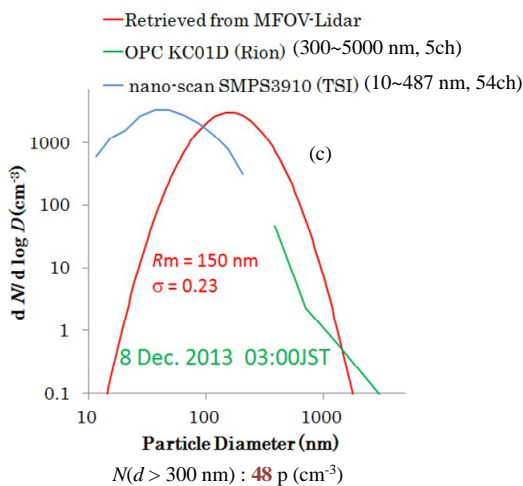
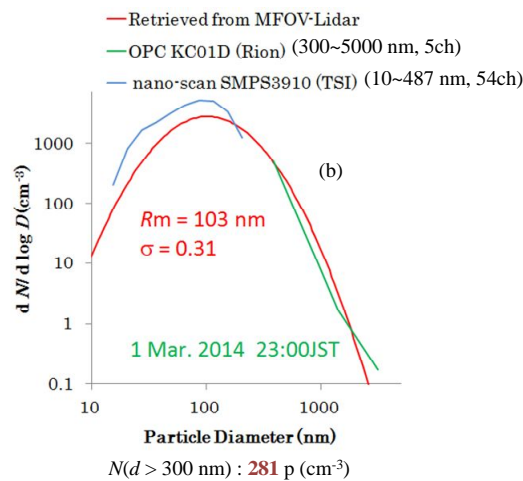


図3 マルチ視野角 (MFOV) ライダーから推定された粒径分布と直接観測 (OPC, SMPS) との比較: (a) 2013.9.2 21:30JST、(b) 2014.3.1 23:00JST、(c) 2013.12.8 03:00 JST

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)

[学会発表] (計 13 件)

Liu, Y., Yabuki, M and Tsuda, T., 2014: Depolarization LIDAR with multiple field-of-view receiver to determine aerosol size distribution characteristics, INTERNATIONAL CONFERENCE OF PM2.5 & ENERGY SECURITY 2014 (2014.3.5-7), Kyoto.

Yoshikawa, K., Yabuki, M. and Tsuda, T., 2013: Rotational Raman lidar with a multispectral detector for temperature profiling in the atmospheric boundary layer, 2013 AGU Fall Meeting(2013.12.9-13), San Francisco (USA).

Yabuki, M., Takahashi, K., Matsuda, M., Hayashi, T. and Tsuda, T., 2013:

Aerosol Particles and Trace Gases Profiling Experiments Using a Combination of in-situ and Remote Sensing Measurements over Shigaraki, Japan, International Symposium on Earth-Science Challenges (ISEC) 2013 (2013.10.3-5), Kyoto.

Liu, Y., Yabuki, M. and Tsuda, T., 2013: Aerosol Size Distributions Derived From Multiple-Field-of-View (Multi-FOV) Lidar Techniques, International Symposium on Earth-Science Challenges (ISEC) 2013 (2013.10.3-5), Kyoto.

Yoshikawa, K., Yabuki, M. and Tsuda, T., Rotational Raman lidar with a multispectral detector for temperature profiling in the atmospheric boundary layer, International Symposium on Earth-Science Challenges (ISEC) 2013 (2013.10.3-5), Kyoto.

矢吹正教, 高橋けんし, 松田真, 中山智喜, 青木一真, 林泰一, 津田敏隆, 2013: 粒子状物質および微量気体の接地層における時空間変動特性, 第30回エアロゾル科学技術討研究論会 (2013.8.27-29), 京都.

Liu Yutong, 矢吹正教, 津田敏隆, 2013: マルチ視野角ライダーを用いた大気微小粒子の検出 (2013.8.27-29), 京都.

矢吹正教, 高橋けんし, 松田真, 津田敏隆, 2013: 接地境界層内におけるエアロゾル粒径分布の鉛直プロファイル観測, 地球惑星連合大会 2013 (2013.5.19-5.24), 千葉.

Liu Yutong, 矢吹正教, 津田敏隆, 2013: 接地境界層内におけるエアロゾル粒径分布の鉛直プロファイル観測, 地球惑星連合大会 2013 (2013.5.19-5.24), 千葉.

松田真, 矢吹正教, 津田敏隆, 高橋けんし, 吉川賢一, 2013: 水蒸気量の時空間分布観測のための走査型ラマンライダーの開発, 地球惑星連合大会 2013 (2013.5.19-5.24), 千葉.

松田真, 矢吹正教, 高橋けんし, 津田敏隆, 2012: ラマンライダーを用いた地表に近い大気の水蒸気鉛直断面構造の連続観測, 第18回大気化学討論会 (2012.11.6-8), 福岡.

矢吹正教, 高橋けんし, 宮脇力, 松田真, 津田敏隆, 中山智喜, 青木一真, 林泰一, 塩原匡貴: 2012, 接地境界層内におけるエアロゾル・微量気体の鉛直観測, 日本気象学会 2012 年度春季大会 (2012.5.26-29), 茨城.

松田真, 矢吹正教, 高橋けんし, 青木一真, 宮脇力, 林泰一, 津田敏隆, 2012: 複数のリモートセンシング機器を用いた大気境界層の微量成分観測, 日本気象学会 2012 年度春季大会 (2012.5.26-29),

茨城.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢吹 正教 (YABUKI Masanori)

京都大学・生存圏研究所・助教

研究者番号：80390590