

令和 2 年 9 月 11 日現在

機関番号：37111

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2017～2019

課題番号：16KK0017

研究課題名（和文）海洋上の大気微量成分導出方法の高度化～分光観測における国際的研究基盤の構築～
（国際共同研究強化）

研究課題名（英文）Development of MAX-DOAS retrieval algorithms for trace gas over the global remote ocean(Fostering Joint International Research)

研究代表者

高島 久洋 (Takashima, Hisahiro)

福岡大学・理学部・准教授

研究者番号：20469620

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 6,400,000円

渡航期間： 7ヶ月

研究成果の概要（和文）：地球の大部分をしめる海洋は清浄ではあるが、地球規模での大気化学過程（大気環境）に重要な役割を果たす。本研究ではMAX-DOAS法と呼ばれる太陽散乱光を利用した分光観測手法を用いて、地球規模での海洋上の大気微量成分濃度の定量化を目的とし、例えば海洋大気中のハロゲン物質の定量化を実施した。その結果、ハロゲン物質の一つである一酸化ヨウ素 (IO) について、低緯度域で高く、特に熱帯中部太平洋で高いことを明らかにした。またその極大域ではオゾンとヨウ素が関連して変動することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

成層圏のオゾン層破壊は、人間活動により放出されたハロゲン物質による連鎖的な光化学反応に因ることが知られている。地表付近（大気境界層）においても、ハロゲン（臭素Br、塩素Cl、ヨウ素Iなど）を含む化学種は反応性が極めて高く、様々な大気化学反応に関与し、また連鎖的にオゾンを壊すため重要である。しかし地球で7割を占める海洋上の大気中のハロゲンの動態は、観測が十分なされておらず明らかになっていない。本研究では海洋上のハロゲン物質の動態を地球規模で明らかにすることを一つの研究目的とした。その中で一酸化ヨウ素濃度の導出を行い、特に熱帯西部太平洋で高いという知見を得た。

研究成果の概要（英文）：Halogen radicals reduce ozone (O₃) content in the troposphere through catalytic destruction. Tropospheric O₃ content is important for the radiative balance of the Earth and is therefore important for global warming. Iodine radicals are of particular interest because of their rapid reaction with various chemical species including O₃. However, because of low concentrations of iodine in the troposphere means, the quantification of iodine and iodine compounds is difficult.

Shipborne MAX-DOAS, a remote sensing technique was used on dedicated ocean cruises from the Arctic to the Southern Hemisphere to investigate variation of iodine monoxide (IO), an iodine radical, over the global remote ocean. Clear latitudinal variations were found: IO was not detected at high latitudes. However, it was detected at low latitudes and was particularly high over the tropical western Pacific, appearing as an iodine “fountain”, where an SST maximum, O₃ minimum have been observed.

研究分野：大気科学

キーワード：ハロゲン リモートセンシング観測 海洋大気境界層

1. 研究開始当初の背景

海洋は清浄であるが地球の大部分をしめ、地球規模での大気化学過程（大気環境）に重要な役割を果たす。本研究ではDOAS分光法の先駆けとして世界を牽引している欧州の研究グループと共同で、MAX-DOAS 法*と呼ばれる太陽散乱光を利用した分光観測手法を用いて、地球規模での海洋上の大気微量成分濃度を定量化することを目的とした。この研究過程で海洋上の分光観測における国際的な研究基盤を構築する。

*MAX-DOAS (Multi Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy) 法（複数仰角における太陽散乱光分光計測・差分吸収測定法）。太陽散乱光を利用した地上からのリモートセンシング観測手法で、複数の大気微量成分を同時に観測できる。対流圏下層の鉛直分布を得ることもでき、連続観測が可能な手法である。

2. 研究の目的

これまで蓄積してきた、世界的に独自性の高い地球規模の海洋上観測データ（船舶から観測した太陽散乱光スペクトルデータ）を用いて、導出が技術的に難しい海洋上の大気微量成分（主にハロゲン物質）の導出を行い、海洋大気中の大気組成の変動および変動要因を明らかにする。また上記解析データを用いて、人工衛星観測データの検証を実施し、上記物質の地球規模での時空間の変動を明らかにする。さらに海洋上の大気汚染物質にも着目した解析を実施し、変動と変動要因を明らかにする。

3. 研究の方法

これまで主に都市汚染大気を対象として、MAX-DOAS 法の高精度化を目的とした研究を行ってきた。しかし、その導出アルゴリズムは欧州の研究グループが開発しているツールを基礎としており、今後、機器開発および他成分への応用など、研究の発展性を考えると、現在の導出法の基盤部分の改良技術の習得が必要不可欠である。そこで本研究では、欧州の研究グループより導出アルゴリズムの技術の習得を目的とし、欧州の研究チームと我々が実施している導出アルゴリズムを比較・検証し、導出アルゴリズムの高度化を行う。

高度化の対象は、これまで実施してきた船舶を用いた海洋観測データ [科研 2011-12 年度等] を用いて行う。この船舶の長期間の観測データ（5年以上）は、世界でも貴重なデータである。特に地球規模の化学過程（未解明のオゾン消失過程やエアロゾル生成・変質過程）を明らかにするため、清浄で地球の大部分を占める海洋上でのハロゲン物質（IO, BrO ラジカル等）の時空間分布を明らかにする。さらに、これまでの研究で、誤差が大きいと考えられる人工衛星観測データを検証することで、地球規模での大気組成の動態把握を目指す。

まずベルギー宇宙航空学協会が開発されてきた DOAS 解析プログラムのアルゴリズムの修得を行う。プログラム技術者の協力を得ながら、これまで実施してきた都市大気の観測データの解析誤差が最小になるよう開発を進め、解析手法の高度化をはかる。その手法を我々が長期にわたって行っている海洋観測データに適用し、再解析を行う。また海洋上のデータと人工衛星データの比較解析を通じて、地球規模での大気組成の時空間分布を明らかにする。今後、実験・観測装置を改良するため、観測手法・装置の高度化についての議論を行う。特に最近実施しているモバイル型観測装置の高度化、LED 等光源を使った DOAS 分光観測による海洋観測について議論をすすめる。

4. 研究成果

成層圏のオゾン層破壊（オゾンホールを含む）は人間活動により放出されたハロゲン物質による連鎖的な光化学反応に因ることが知られている。地表付近（大気境界層）においても、ハロゲン（臭素 Br, 塩素 Cl, ヨウ素 I など）を含む化学種は反応性が極めて高く、様々な大気化学反応に関与し、連鎖的にオゾンを壊すため重要である。オゾンは強い酸化力を持ち大気化学反応で中心的な役割を果たすとともに重要な温室効果ガスでもあるため、ハロゲン物質の動態を把握することが、大気化学反応過程の理解および地球の放射収支（地球温暖化）の理解において重要である。

ハロゲンの中でもヨウ素は反応速度が速く、また様々な大気化学反応に関与し、それらの大気成分濃度を制御すると考えられ特に重要と考えられる。しかしヨウ素（およびヨウ素化合物）の大気中濃度が低いため（IO は 1 pptv 以下）、定量的に（精度よく）観測することが難しく、その起源や大気化学的な役割は明らかにされていない。

ヨウ素の起源は長い間、有機ヨウ素として海中の生物活動が主であると考えられてきたが、近年海洋上であればどの場所でも無機ヨウ素（HOI）として大気へ供給可能であることというアイデアが提出されている。海洋は地球の7割以上を占め地球規模での大気化学を考える上で重要であるが、欧米の研究グループの IO 観測があるものの、観測が少なく大気化学研究のフロンティアとなっている。

そこで本研究では、まずヨウ素化合物の一つである一酸化ヨウ素（IO）と関連物質について、海洋大気境界層内での時空間分布を明らかにすることを目的として、船舶搭載型装置を用いた MAX-DOAS 法により、南半球から北極圏までの海洋上で観測を主体とした研究を行った。その結果、観測した季節に限られているものの、IO 濃度は低緯度で高く、特に熱帯西部太平洋上で高いことを明らかにした（図1）。

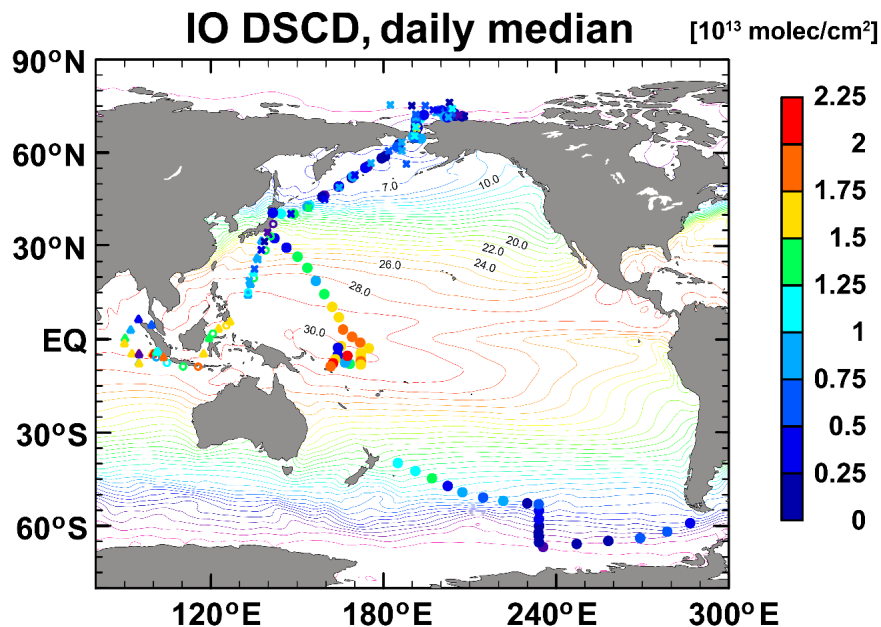


図1. 船舶搭載型MAX-DOAS法により導出した一酸化ヨウ素（IO）の緯度-経度分布（仰角3度, DSCD [molecules cm⁻²]). 等値線は平均海面温度を示す (Takashima et al., 2020)

なお世界の研究グループで熱帯西部太平洋を含めた地球規模の観測例は我々以外になく、独自性の高い結果を得ることができた。また低緯度の中でも特に熱帯西部太平洋で一酸化ヨウ素（IO）の濃度が高く、その海域ではオゾンと関連して変動する（数日スケールで負の相関）という結果を得た。ボックスモデルを用いた変動要因の解析を行ったが、要因を明らかにするまで

には至らなかった。

同じ船上からの太陽散乱光スペクトル観測データを用いて、一酸化臭素 (BrO) の導出を試みたが、検出することができなかった。観測方法を含めた再検討が必要であり、今後新たな観測を計画している。ホルムアルデヒド (HCHO)、窒素酸化物 (二酸化窒素: NO₂) の導出を行い、人工衛星観測データとの比較を行った。船上観測から極域でしばしば HCHO の増大例を観測し、森林火災起源と考えられる空気塊の長距離輸送過程について明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Hisahiro Takashima, Saki Kato, Yugo Kanaya, Fumikazu Taketani, Takuma Miyakawa, Michel Van Roozendael
2. 発表標題 Iodine monoxide (IO) variations over the tropical Pacific observed by shipborne MAX-DOAS
3. 学会等名 EGU (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hisahiro Takashima, Saki Kato, Yugo Kanaya, Martina Friedrich, Michel Van Roozendael, Fumikazu Taketani, Takuma Miyakawa
2. 発表標題 Iodine monoxide (IO) variations over the tropical western Pacific observed by shipborne MAX-DOAS
3. 学会等名 AGU 2018 Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
主たる渡航先の主たる海外共同研究者	Van Roozendael Michel (Van Roozendael Michel)	ベルギー宇宙航空学協会・Division D31 (Reactive Gases in the Atmosphere)・Senior Scientist	