

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 12 日現在

機関番号：82109

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22310015

研究課題名（和文） 高精度エアロゾル光学特性測定法の開発と実証観測

研究課題名（英文） Development and verification of the accurate measurement of optical property of aerosol

 研究代表者 内山 明博（UCHIYAMA AKIHIRO）
 気象庁気象研究所・気候研究部・室長
 研究者番号：50354460

研究成果の概要（和文）：

エアロゾルの光学特性を精度よく測定するために角度分解型ネフェロメーター（ポーラーネフェロメーター）とキャビティリングダウン分光（CRDS）装置の開発を行った。

CRDS 装置は、355、532 nm の 2 波長で消散係数を計測できる。ポリスチレンラテックス（PSL）標準粒子を用いて性能評価を行ったところ、97%以上の確度で消散係数が測定可能であることが確認された。ポーラーネフェロメーターは、散乱角 4～176° までは 4 または 10° 毎に散乱光を測定する。性能評価のため PSL 標準粒子と実大気の測定を行った。その結果、本装置単独で散乱係数が測定可能となった。

研究成果の概要（英文）：

In order to measure aerosol optical properties accurately, an instrument to measure angular distribution of scattered light by aerosol (polar-nephelometer) and an instrument to measure extinction coefficients using the technique of cavity ring-down spectroscopy (CRDS) were developed.

The CRDS instrument developed by this study can measure extinction coefficients at 355 and 532nm. The instrument was evaluated using monodisperse laboratory-generated polystyrene latex (PSL) particles. The measured values and the values calculated by Mie theory were coincident within 0.4%(mean value) (max. 3%) at wavelength 532nm and 1.2% (mean value) (max. 3%) at wavelength 355nm.

The polar-nephelometer can measure the scattered light from the scattering angle 4° to 176° at every 4° or 10° at wavelength of 532nm. After the calibration using CO₂ and aerosol free air, the instrument was evaluated using PSL particles and the real atmospheric sample air. The results showed that the polar-nephelometer can measure scattering coefficients by itself without the light source correction.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 22 年度	8,800,000	2,640,000	11,440,000
平成 23 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
平成 24 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
総計	13,100,000	3,930,000	17,030,000

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、エアロゾル、地球温暖化

1. 研究開始当初の背景

地球大気は、太陽放射の入射と地球自身の出す赤外放射のバランス（地球放射収支）で決まっている。太陽放射を吸収・反射したり、赤外放射を吸収・放出したりする過程は、雲粒子や大気中に浮遊する微小粒子であるエアロゾル、水蒸気や二酸化炭素のような大気微量成分ガスなど様々な物質によって影響を受ける。エアロゾルは太陽放射や地球放射を吸収・反射したりするほかに雲粒が形成されるときに凝結核として働き、雲の形成と雲の特性の決定に影響を与えることにより地球放射収支に影響を与える。前者をエアロゾルの直接効果、後者を間接効果と呼んでいる。この効果の見積りの現状は極めて精度が低く改良が望まれている(IPCC（気候変動に関する政府間パネル）報告書)。

エアロゾルの直接効果で地球が暖まるか冷えるかは、エアロゾルの一次散乱での全消散に占める吸収（または散乱）の割合（一次散乱アルベド）で決まる。この臨界値は、0.9と言われている(Hansen et al. 1997)。従来、吸収係数は、フィルターに採取し透過率を測る方法や光を周期的に変化させ音波として信号を取り出す方法で測定されているが、前者では、エアロゾルとフィルターの多重散乱の評価が難しく 20%くらいの誤差があったり(Bond et al. 1999)、後者では光を吸収すると昇温し、揮発性の物質に使えなかったりする。また、散乱係数も、極前方と極後方への散乱光が測定できないため、10~20%程度の誤差がある(Andersen et al. 1996)。このため一次散乱アルベドに 4~5%程度の大きな誤差がある。このような現状のため、観測から一次散乱アルベドがどの値であるかは断定的に言うことが難しく、エアロゾルが地球を暖めるか冷やすかの結論が定性的になりがちで、定量的な研究が進展しない状況にある。

2. 研究の目的

本研究では、エアロゾルの直接効果に関係する一次散乱特性の測定のため、野外観測で使える角度分解型ネフェロメーター（ポーラーネフェロメーター）を新たに開発し、申請者グループが開発に成功した高感度全消散測定装置と合わせて新しい測定システムを構築する。この観測システムでは、従来の測定では精度が悪かったり、測定条件に制約があったりした吸収係数を全消散係数（散乱+吸収）と散乱係数を測定して両者の差から見積もる。この測定システムの有用性を調べるため実大気で実証観測を行う。

この測定システムによりエアロゾルが大気を暖めるか冷やすかを決定する鍵となるパラメーターの測定を実現する。

3. 研究の方法

(1) 角度分解型ネフェロメーターの開発

気象研究所では、散乱角 4 度~176 度の範囲で角度間隔 4 度（散乱角 4~20 度、160~176 度）、10 度（散乱角 20~160 度）の角度ポーラーネフェロメーターの開発を行った。測定波長 532nm の直線偏光したレーザー光（YAG レーザー）をサンプル空気に入射する。レーザー光は、偏光子を通して偏光面を回転し、入射光に平行な散乱成分と垂直な成分を測定する。したがって、両成分とも同じ検出器で測定する。

散乱光は、フォカサー付きのファイバーを通して検出器に導入した。極前方、極後方への散乱光を測定する際、フォカサーがついていて測定角度範囲は 2 度程度となり、極前方または極後方を測定した時もサンプル体積を小さくすることができ、レーザー光に近い角度まで測定可能にした。図 1 にポーラーネフェロメーターの全形をしめす。

図 1 ポーラーネフェロメーターの全形。



サイズ、幅 100cmX 奥行 65cmX 高さ 32cm（突起部分を除く）。

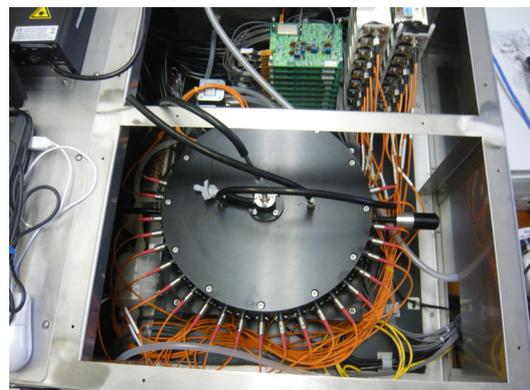


図 2 インレット部と取り付けられたフォカサー付き光ファイバー。光はファイバーを通して検出器に導入される。

(2) キャビティリングダウン分光 (CRDS) 装置の改良

名古屋大学では、355, 532 nm の 2 波長で

消散係数を計測できるキャビティリングダウン分光(CRDS)装置を製作し、装置の性能評価を行った。単分散のポリスチレンラテックス標準粒子を発生させ、CRDS装置で消散係数を、凝縮式粒子計数器(CPC)で粒子数密度の測定を行った。粒子数密度で規格化した消散係数の測定値のバラつきから測定精度を評価したところ、粒子数密度が100個/ccより大きく、消散係数が装置の検出限界よりも十分大きな環境下において、532, 355 nmともに約2%の精度で消散係数を測定できることが判明した。また、CRDSで測定した消散係数とCPCで測定した粒子数密度から得られた消散効率をMie散乱理論による計算値と比較することにより、装置の確度を評価した。その結果、実測値とMie散乱理論の計算値は、532 nmでは平均0.4%(最大3%)、355 nmでは平均1.2%(最大3%)の範囲で一致した。このことから、本CRDS装置が97%以上の確度で消散係数を計測できることが確認された。

また、本装置を用いて、気象研究所(つくば市)で実大気観測を行った。その結果、CRDS法で得られた消散係数は、従来用いられている積分型ネフエロメーターで測定した散乱係数とよい相関を示した(相関係数0.93、散乱係数/消散係数の傾き0.90)。

4. 研究成果

開発したポーラーネフエロメーターの性能を評価するために二つの校正法を試し、ポリスチレンラテックス標準粒子の測定と実大気の測定を行った。

はじめにポーラーネフエロメーターとCRDS装置の両方を用いて校正する方法を試した。粒径および屈折率が既知のポリスチレンラテックス標準粒子の測定では、ネブライザーにより発生させた粒子を拡散ドライヤーで乾燥させたあと、静電分級器およびエアロゾル質量分級装置に導入し、単分散粒子を得た。得られた単分散粒子(直径:200, 300, 500, 700, 900 nm)の散乱の角度依存性をポーラーネフエロメーターで、消散係数をCRDS装置で、粒子数密度をCPCで計測した。散乱の角度分布から得られた散乱係数を、CRDS装置で得られた消散係数および、粒子数密度と粒径からMie散乱理論により計算される散乱係数と比較した。ポーラーネフエロメーターの校正は、500nmのキャビティリングダウン分光法の測定値と理論計算の角度分布を用いた。その結果、CRDS装置により得られた消散係数は、理論計算とよく一致していたが、ポーラーネフエロメーターの散乱光を積分して得た散乱係数は、系統的に小さかった。このため、散乱光の角度分布を調べたところ、散乱光の角度分布が前方散乱の領域(散乱角30度以下)で

、角度が小さくなるほど理論値に比べ小さくなっていることが分かった。

更に、二酸化炭素とフィルターを通しエアロゾルを除いた空気を基準にポーラーネフエロメーターを単独で校正する方法を試した。この方法では、サンプリング体積の不確かさを除くためインレット内をすべてサンプル空気で満たして行った。気体分子による散乱光の角度分布は、入射光の偏光に平行な成分は、散乱角にほとんど依存しないが、垂直な成分は、ほぼ $\cos(\text{散乱角})$ の自乗に比例しているので、散乱角90度で非常に小さくなる。したがって、垂直成分の校正定数の値は、90度付近で正確に決定できない。このため、平行成分でまず校正定数を決め、次に、散乱光が大きい角度で垂直成分に対する校正定数を決め、両者の比平均をもとめ、平行成分の校正定数にこの比を掛けて垂直成分の校正定数とした。この比は、実際には、ほぼ1であった。

校正後、PSL標準粒子(222, 511, 739, 966, 1960nm)の測定を行った。図3にPSL標準粒子(直径 $d=511\text{nm}$)の散乱係数の角度分布の測定値(●と■)と理論計算値(実線)の比較例を示した。観測値は、10分平均で、測定は2回行った。位相関数 P_1 は入射偏光と平行な成分の位相関数、 P_2 は入射偏光と垂直な成分の位相関数、 P は $P=P_1+P_2$ である。全体的に散乱パターンは、理論計算値と似た傾向を示している。散乱角40度くらいまでは、理論計算と測定値の一致はよいが、散乱光が弱い側方から後方にかけて一致が良くない。

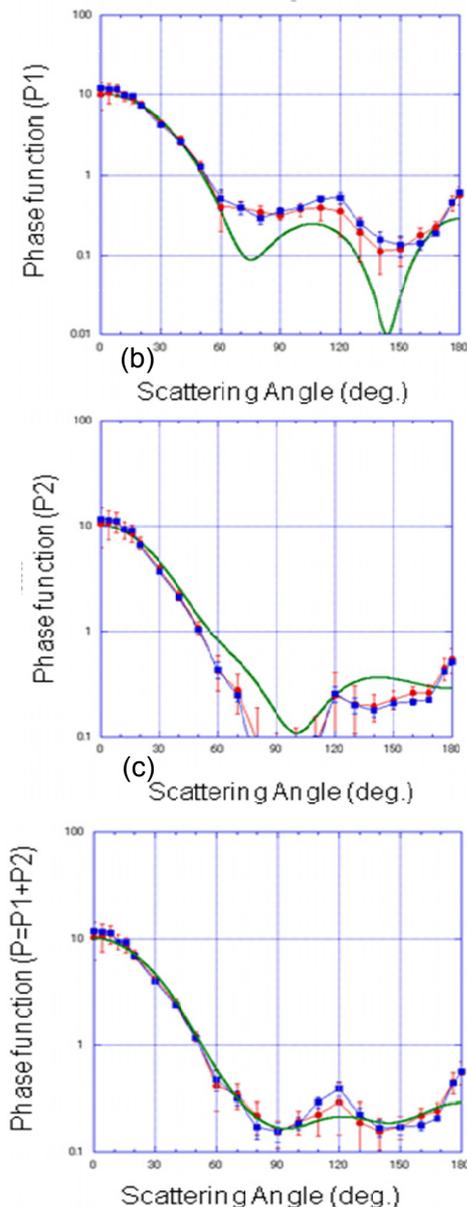
実大気での散乱係数(波長532nm)の測定例(2012年5月31日)を図4に示した。図には、積分型ネフエロメーターTSI Model 3563で測定した波長550nm(前方散乱未測定の補正なし)を比較のために示した。ポーラーネフエロメーターの散乱係数は、数%~10%程度系統的に大きい。TSIの測定値を我々が開発した方法(論文投稿中)で補正するとこの観測例では約4%大きくなる。更に、波長の違いをTSIの散乱係数のオングストローム指数(この日は約1.7~2.0)を使って補正すると約6%増える。

実大気での散乱係数(波長532nm)の測定例(2012年5月31日)を図4に示した。図には、積分型ネフエロメーターTSI Model 3563で測定した波長550nm(前方散乱未測定の補正なし)を比較のために示した。ポーラーネフエロメーターの散乱係数は、数%~10%程度系統的に大きい。TSIの測定値を我々が開発した方法(論文投稿中)で補正するとこの観測例では約4%大きくなる。更に、波長の違いをTSIの散乱係数のオングストローム指数(この日は約1.7~2.0)を使って補正すると約6%増える。した

がって、合計約10%、TSIによる測定値を大きくしたものが、532nmでの散乱係数であり、ポーラーネフェロメーターによって測定された値とほぼ一致する。

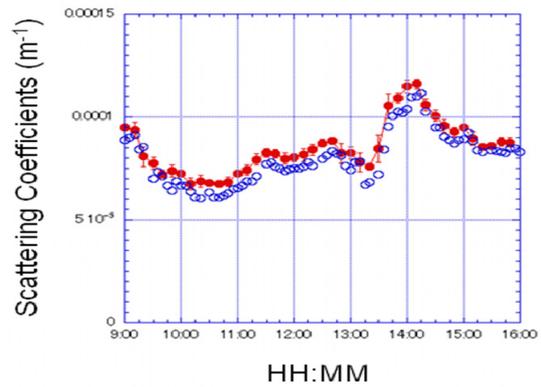
図5に同じ日の散乱光の角度分布の測定例を示した。10:00、12:00、14:00の値(10分平均)を示したが、時間による大きな差はなかった。不自然なところもあるが、角度分布を測定することができた。

図3 PSL標準粒子の散乱係数の角度分布(位相関数)の測定値(●と■)と理論計算値(実線)の比較。PSLの直径は、 $d=511\text{nm}$ 。(a)P1:入射偏光と



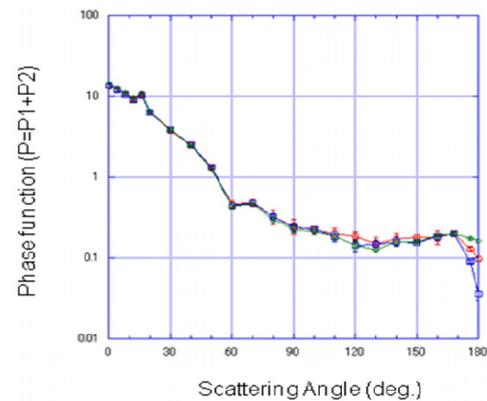
平行成分の位相関数、(b)P2:入射偏光と垂直成分の位相関数、(c)P=P1+P2

図4 散乱係数の実測例(2012年5月31日) ●は、ポーラーネフェロメーターによる測定値(波長532nm、10分平均)、○は、TSI Model 3563に



よる測定値(波長550nm、1分平均)。

図5 散乱光の角度分布の測定例(2012年5月31日)。10:00、12:00、14:00の値を示した。



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15件)

- ① Kobayashi E, A. Uchiyama, A. Yamazaki, R. Kudo, 2010: Retrieval of Aerosol Optical Properties Based on the Spheroids Model, J. Meteorol. Soc. Japan, 88, Doi:10.2151/jmsj.2010-505.
- ② Kudo R., A. Uchiyama, A. Yamazaki, T. Sakami, and O. Ijima, 2011: Decadal changes in aerosol optical thickness and single scattering albedo estimated from ground-based broadband radiometers: a case study in Japan, J. Geophys. Res. 116, doi: 10.1029 /2010 JD014911.
- ③ Ishimoto H., Y. Zaizen, A. Uchiyama, K. Masuda, Y. Mano, 2010: Shape modeling of mineral dust particles for light-scattering calculations using the spatial Poisson-Voronoi tessellation, JQSRT, 111, 2434-2443.
- ④ Nakayama T., R. Hagino, Y. Matsumi, Y. Sakamoto, M. Kawasaki, A. Yamazaki, A. Uchiyama, R. Kudo, N. Moteki, Y. Kondo, K. Tonokura, 2010: Measurements of aerosol optical properties in central Tokyo during summertime using cavity ring-down

- spectroscopy: Comparison with conventional techniques, *Atmos. Environ.*, 44, 3034-3042.
- ⑤ Nakayama T., Y. Matsumi, K. Sato, T. Imamura, A. Yamazaki, and A. Uchiyama, 2010: Laboratory studies on optical properties of secondary organicaerosols generated during the photooxidation of toluene and the ozonolysis of α -pinene, *J. Geophys. Res.*, 115, doi:10.1029/2010JD014387.
- ⑥ Ishimoto H., K. Masuda, Y. Mano, N. Orikasa, A. Uchiyama, 2012: *JQSRT*, 113, 632-643, doi:10.1016/j.jqsrt.2012.01.017
- ⑦ Suzuki H., T. Nakayama, Y. Matsumi (他 5 名), 2011: Comparison of laser-induced fluorescence and chemiluminescence measurements of NO₂ at an urban site, *Atmos. Environ.*, 45, 6233-6240, 10.1016/j.atmosenv.2011.07.065.
- ⑧ Nakayama T., 2012: Light absorption properties of organic aerosols, *Eurozoru Kenkyu*, 27, 12-23.
- ⑨ Nakayama T., K. Sato, Y. Matsumi, T. Imamura, A. Yamazaki, and A. Uchiyama, 2012: Wavelength dependence of refractive index of secondary organic aerosols generated in during the ozonolysis and photooxidation of α -pinene, *SOLA*, 8, 119-123.
- ⑩ Nakayama T., K. Sato, Y. Matsumi, T. Imamura, A. Yamazaki and A. Uchiyama, 2013: Wavelength and NO_x dependent complex refractive index of SOAs generated from the photooxidation of toluene, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(2), 531-545.
- ⑪ Kudo, R., A. Uchiyama, O. Ijima, N. Ohkawara, and S. Ohta, 2012: Aerosol impact on the brightening in Japan, *J. Geophys. Res.*, 117, D07208, doi:10.1029/2011JD017158
- ⑫ Ishimoto H., K. Masuda, Y. Mano, N. Orikasa, and A. Uchiyama, 2012: Irregularly shaped ice aggregates in optical modeling of convectively generated ice clouds. *JQSRT*, 113, 632-643.
- ⑬ 工藤玲, 内山明博, 2012: 地上日射量の世界的減光・増光, *エアロゾル研究*, 27, 249-255.
- ⑭ Nakayama T., K. Sato, Y. Matsumi, T. Imamura, A. Yamazaki, and A. Uchiyama, 2012 : Wavelength Dependence of Refractive Index of Secondary Organic Aerosols Generated during the Ozonolysis and Photooxidation of α -Pinene, *SOLA*, 8, 119.123, doi:10.2151/sola.2012-030
- ⑮ Nakayama T., K. Sato, Y. Matsumi, T. Imamura, A. Yamazaki, and A. Uchiyama, 2013: Wavelength and NO_x dependent complex refractive index of SOAs generated from the photooxidation of toluene, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 531-545, 2013, doi:10.5194/acp-13-531-2013.
- [学会発表] (計 20 件)
- ① Uchiyama A., A. Yamazaki, R. Kudo and T. Sakami, Development of correction method for integrating nephelometer, The 3rd Asia Pacific Radiation Symposium (APRS), August 2010, Seoul, Korea.
- ② Kudo, R., A. Uchiyama, A. Yamazaki, and T. Sakami, Influences of aerosol optical thickness and single scattering albedo on global dimming and brightening, The 3rd Asia Pacific Radiation Symposium (APRS), August 2010, Seoul, Korea.
- ③ Ishimoto H., Y. Zaizen, A. Uchiyama, K. Masuda, Y. Mano, Voronoi aggregate for a shape model of mineral dust particles, The 3rd Asia Pacific Radiation Symposium (APRS), August 2010, Seoul, Korea.
- ④ Yamazaki A., A. Uchiyama, E. Kobayashi, R. Kudo and T. Sakami, The analysis of Skyradiometer observation data by using SKYRAD.PACK and MRI-MLM, The 16th CEReS International Symposium, November 2010, Okinawa, Japan.
- ⑤ Uchiyama A., A. Yamazaki, R. Kudo and T. Sakami, Development of correction method for integrating nephelometer and recent trend of aerosol optical properties based on ground-based measurement at Tsukuba, The 16th CEReS International Symposium, November 2010, Okinawa, Japan.
- ⑥ Kudo, R., A. Uchiyama, A. Yamazaki, T. Sakami and O. Ijima, The 16th CEReS International Symposium, November 2010, Okinawa, Japan.
- ⑦ Nakayama T., Y. Matsumi, A. Yamazaki, A. Uchiyama (他 4 名), Applications of cavity ring-down aerosol extinction spectrometer to laboratory and field studies, User meeting and summer school Cavity Enhanced Spectroscopy, 2011年6月, Kingston, Canada.
- ⑧ Nakayama T., Y. Matsumi, A. Yamazaki, A. Uchiyama (他 4 名), Determination of refractive index of secondary organic aerosols generated during the photooxidation of toluene and the ozonolysis of alpha-pinene, AAAR 30th Annual Conference, October 2011, Oakland, California, USA.
- ⑨ 中山智喜、松見豊、山崎明宏、内山明博 (他 4 名), トルエンの光酸化反応により生成する二次有機エアロゾルの光吸収特性, 第

17回大気化学討論会, 2011年10月, 京都大学宇治キャンパス.

- ⑩菅原千佳, 中山智喜, 松見豊, 山崎明宏, 内山明博 (他2名), つくばで観測された黒色炭素エアロゾルの光学特性, 第17回大気化学討論会, 2011年10月, 京都大学宇治キャンパス.
- ⑪中山智喜, 佐藤圭, 松見豊, 今村隆史, 山崎明宏, 内山明博, トルエンの光酸化反応により生成する二次有機エアロゾルの光吸収特性: 波長および NO_x 濃度依存性, 日本地球惑星科学連合 2012 年大会 2012 年 5 月 幕張メッセ
- ⑫中山智喜, 有機エアロゾルの光吸収特性, 第 29 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2012 年 8 月, 産業医科大学, 北九州
- ⑬Nakayama T., and Y. Matsumi, Measurements of aerosol optical properties using laser spectroscopic techniques, First China-Japan Aerosol Symposium, September 2012, Kanazawa, Japan.
- ⑭郭雪松, 中山智喜, 松見豊, 藪下彰啓, 連続光キャビティリングダウン法を用いたエアロゾル消散係数計測装置の開発, 第 18 回大気化学討論会, 2012 年 11 月, 福岡県 朝倉市
- ⑮中山智喜, 松見豊, 佐藤圭, 今村隆史, 二次有機エアロゾルの光学特性の湿度依存性, 第 18 回大気化学討論会, 2012 年 11 月, 福岡県 朝倉市
- ⑯中山智喜, 微小エアロゾル粒子の光吸収特性: ブラックカーボンとブラウンカーボン, 都市大気の PM2.5 研究会講演会, 2013 年 3 月, 名古屋大学
- ⑰中山智喜, 佐藤圭, 松見豊, 今村隆史, 山崎明宏, 内山明博, 2012: トルエンの光酸化反応により生成する二次有機エアロゾルの光吸収特性: 波長および NO_x 濃度依存性, 日本地球惑星科学連合大会, AAS21-07.
- ⑱Uchiyama A., M. Shiobara, A. Yamazaki, H. Kobayashi, Microphysical Properties of Boundary layer Mixed-phase Cloud observed in Ny-Alesund, Svalbard on June 9, 2011., International Conference on Cloud and Precipitation 2012, July 30-August 03, 2012, in Leipzig, Germany.
- ⑲Kudo, R., A. Uchiyama, Aerosol impact on the brightening in Japan, International Radiation Symposium 2012, August 06-10, 2012, Berlin, Germany.
- ⑳Ishimoto H., K. Masuda, Y. Mano, N. Orikasa, and A. Uchiyama, Optical modeling of irregularly shaped ice particles in convective cirrus, International Radiation Symposium 2012, August 06-10, 2012, Berlin, Germany.
- ㉑Uchiyama A., A. Yamazaki, R. Kudo, and D. Uesawa, Continuous ground-based observation

of aerosol optical properties in Tsukuba Japan (Trend and Climatology), Atmospheric System Research Science Team Meeting, March 18-21, 2013, Potomac, Maryland USA.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

内山 明博 (UCHIYAMA AKIHIRO)
気象庁気象研究所・気候研究部・室長
研究者番号: 50354460

(2) 研究分担者

山崎 明宏 (YAMAZAKI AKIHIRO)
気象庁気象研究所・気候研究部・主任研究官
研究者番号: 40278106
中山 智喜 (NAKAYAMA TOMOKI)
名古屋大学・太陽地球環境研究所・助教
研究者番号: 40377784

(3) 連携研究者

松見 豊 (MATSUMI YUTAKA)
名古屋大学・太陽地球環境研究所・教授
研究者番号: 30209605
工藤 玲 (KUDO REI)
気象庁気象研究所・気候研究部・研究官
研究者番号: 00414508
坂見 智法 (SAKAMI TOMONORI)
気象庁気象研究所・気候研究部・研究官
研究者番号: 00391227
永井 智宏 (NAGAI TOMOHIRO)
気象庁気象研究所・気象衛星・観測システム
研究部・主任研究官
研究者番号: 30343891
酒井 哲 (TETSU SAKAI)
気象庁気象研究所・気象衛星・観測システム
研究部・主任研究官
研究者番号: 00377988