# 科学研究費助成事業 研究成果報告書



平成 29 年 6 月 27 日現在

機関番号: 37111 研究種目: 若手研究(B) 研究期間: 2014~2016 課題番号: 26870784

研究課題名(和文)越境汚染大気と都市大気の混合過程解明のためのリモートセンシング観測手法の高度化

研究課題名(英文) Development of ground-based remote sensing technique to understand the mixing process between the urban polluted air mass and the trans-boundary air mass from the Asian continent

#### 研究代表者

高島 久洋 (Takashima, Hisahiro)

福岡大学・理学部・講師

研究者番号:20469620

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文):地上からのリモートセンシング手法であるMAX-DOAS法の大気微量成分導出アルゴリズムを最適化のため実験室内で光源を使った分光観測により手法の高度化を行った。しかし他の地上直接観測と定量的に比較できるまでには至らなかったため、平行してモバイル観測装置による観測手法の高度化に着手し、直接観測を実施した。断片的には明らかであったが、福岡都市中心部の高濃度の NO2 空気が水平・鉛直方向に輸送される過程を直接観測により明らかにした。またその輸送過程が海陸風循環と密接に関連していることを明らかにした。またNOx 排出量の推定を行った。得られた地上観測データと人工衛星観測データとの比較をおこなった。

研究成果の概要(英文): We tried to develop DOAS method using LED light source in the laboratory to improve the DOAS retrieval algorithms. However, we could not develop the method we have been expected at the beginning. We also developed the mobile MAX-DOAS instrument to improve the DOAS retrieval algorithms. The observations by the mobile MAX-DOAS in Fukuoka, an urban area (on the Fukuoka Urban Expressway) and analysis had been made. With comparisons with the continuous measurement by MAX-DOAS at Fukuoka University, we found that NO2 inhomogeneity is strongly related to the inhomogeneity of NOx sources and to horizontal transport of high concentrations from the city center and low concentrations from the ocean via a land-sea breeze. We estimated NOx emission in Fukuoka using the observation data. We also conducted the variations in NO2 observed by the Aura/OMI satellite sensor by using the mobile MAX-DOAS measurements.

研究分野: 大気科学

キーワード: 大気汚染物質 二酸化窒素 リモートセンシング観測 エアロゾル 都市大気

#### 1.研究開始当初の背景

近年、中国を中心とした東アジアの経済成長にともない、我が国でも光化学オキシダント注意報の発令回数が増えるなど、越境大気汚染または地球規模の汚染大気輸送に関する社会的関心が高まっている。越境大気汚染の諸過程を定量化するには、観測を時空間で密に行い、得られた観測事実と化学輸送モデルの実験結果の整合性を合せることで、複雑な輸送・化学過程の理解を深めることが必須である。日本の大気環境については、日本都市域からの放出を考え、都市大気と越境大気の混合過程を明らかにすることが必要である。

しかし、 多成分を同時に連続して観測できる地上設置の測器が乏しいこと、 多成分を同時に広範囲に観測できる極軌道衛星の観測頻度は一般的に一日に一回以下であり、連続観測ができず、発生源からの輸送や輸送大気中の(数日以内の)化学過程の議論が難しいことから、観測データの蓄積は十分とは言えない。さらに 鉛直混合および排出インベントリに深く依存する領域化学輸送モデルに関しても、モデルの結果を検証する有効な観測に乏しかった。

近年、MAX-DOAS 法 (Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy;複数仰角太陽散乱光分光計測・差分吸収解析法)と呼ばれるリモートセンシング手法が確立されつつある。太陽散乱光を低仰角で測定し、対流圏下層のエアロゾル・大気ガス成分の鉛直分布を連続観測できる観測手法である。同手法の利点は以下の通りである。

- エアロゾル (消散係数)、大気ガス成分 (二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>), 水蒸気, ホルムア ルデヒド (HCHO), HONO, グリオキサー ル (CHOCHO), 二酸化硫黄, オゾン等) の多成分同時観測が可能
- 2) 時間方向に連続して観測できるので、

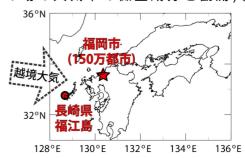
- 日変化や短寿命成分の観測が可能。また長期間のモニタリングも可能
- 3)対流圏中(主に大気境界層)の各成分の鉛直分布を得ることができ、鉛直混合過程や、境界層と自由対流圏を分けた議論が可能

MAX-DOAS 法によるエアロゾル・大気成分観測は、国内では、応募者を含む海洋研究開発機構の研究グループが先駆けとなり、日本・中国・韓国・ロシアの多地点での定常観測網の展開してきた [たとえば Kanaya et al., 2014]。また最近は船舶による海上で半球規模の観測を行っている [Takashima et al., 2012]。越境大気を日本で最初に観測できる長崎県福江島では 2009 年に観測を開始した。さらにその越境大気が都市大気と混合する福岡市において 2012 年に観測を開始した。

福岡市の NO<sub>2</sub> の観測から、都市中心部の起源の空気が、鉛直・水平方向に輸送されバックグランドの大気と混合する過程をとらえることに成功した[高島他,2013]。しかし差分吸収分光による観測に不確定要素が大きいため、議論は定性的な段階である。より定量的な議論のためには不確定性を低減させることが必要である。

#### 2.研究の目的

近年、高い反射率をもつ鏡を利用し、その場の大気成分を差分吸収分光により観測する手法 (たとえば CE-DOAS 法) が開発されつつある (Thalman and Volkamer, 2010)。この手法は、MAX-DOAS 法による分光観測手法と同じ DOAS 法での観測を行うため (ただしその場の大気中の微量成分を観測)、



MAX-DOAS 法の不確定性を低減させることが期待できる。そこで本研究では CE-DOAS 法による直接観測を福岡で実施し、MAX-DOAS 法の成分導出アルゴリズムの高度化に着手することを当初の研究目的とした。さらに福岡の MAX-DOAS 法による成分導出アルゴリズムを高度化を介して、越境大気と都市大気の混合過程の解明に貢献することを目的とした。しかしながら CE-DOAS 法による観測装置の高度化が難航したため、並行して同じ分光器を用いたモバイル型装置による直接観測により、既存の定常観測システムの検証およびリモートセンシング観測手法の高度化を目的に追加し、実施した。

#### 3.研究の方法

屋外の大気を取り込み、室内実験内での観測 装置を用いた DOAS 分光法開発について、光 源に高輝度 LED を使い光源と分光器の温度調 節を行って CE-DOAS 法の開発を実施した。し かしながら、他の地上観測データと定量的に 比較できる大気微量成分量の導出まで至ら ず、さらにその原因の特定が難航したため、 現場観測強化のために並行して同じ分光器 を用いたモバイル型装置の開発を行った。さ らにモバイル装置を用いて福岡市内(福岡 都市高速環状線)で観測を行い、既存の MAX-DOAS 装置による観測結果と比較・検証 を行った。さらに得られた結果を人工衛星デ ータとの比較検証を行った。

### 4. 研究成果

地上からのリモートセンシング手法である MAX-DOAS 法の大気微量成分導出アルゴリズムを最適化するため、室内実験内での観測装置を用いた DOAS 分光法開発について光源に高輝度 LED を使い温度調節を行って CE-DOAS 法による実験開発を実施した。しかし他の地

上観測データと定量的に比較できる状態まで物理量の導出が進めず (光源出力の安定化やミラー部分の調整など)、さらにその原因の特定が難航したため、平行して実験室で使用している同じ分光器 (同じ温度調節システム)を使った装置による小型モバイル観測装置による観測手法の高度化に着手し、高度化した装置による福岡都市圏 (福岡都市高速環状線)内での装置を自動車に搭載して直接観測を実施した。

モバイル観測で得られた NO。の変動につい て福岡大学 (33.55°N, 130.36°E) でこれま で実施してきた MAX-DOAS 法 (都市中心部 (天神方向、北東方向) と都市中心部から外 れた方位 (糸島方向、北西方向) の2方位に ついて連続立体観測)との比較を行った。さ らに福岡都市域からの NOx 排出量の推定を 行った。これまでの定常観測からも断片的に は明らかであったが、都市中心部の高濃度の NO。空気塊が水平・鉛直方向に輸送される過 程を直接観測により明らかにした。またその 輸送過程が海陸風循環と密接に関連してい ることを明らかにした。得られた成果を投稿 論文としてまとめた [山口他, 2016]。本研 究で得られた地上観測データと人工衛星観 測データ (Aura 衛星搭載の OMI (Ozone Monitoring Instrument)) との比較をおこな い、その結果、衛星観測が過少評価傾向にあ ることが分かった。

### 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 1件)

1) 山口秀芳,<u>高島久洋</u>,丸山勇亮,自動車 搭載型装置を用いた MAX-DOAS 法による 分光観測 ~ 福岡都市圏の二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>) の時空間不均一性, Jpn J. Atmos. Environ., 51/5, 238-244, 査読有.

## [学会発表](計 1件)

1) Takashima, H., H., Yamaguchi, Y.

Maruyama, Spatiotemporal
inhomogeneity in nitrogen dioxide
(NO<sub>2</sub>) over Fukuoka observed
by Car MAX-DOAS, the 2016 AGU Fall
Meeting, 2016, 15 December 2016, San
Francisco, California.

## [図書](計 0件)

- 6.研究組織
- (1)研究代表者

高島 久洋 (TAKASHIMA, Hisahiro)

福岡大学・理学部・講師 研究者番号:20469620

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし