

大気化学研究

Archives of Atmospheric Chemistry Research

第 40 号

日本大気化学会

Japan Society of Atmospheric Chemistry

目次

総説

トピックス: 大気化学とリモートセンシング

Article No.

大気風を診るドップラー風ライダー	石井昌憲	040A01
GOSAT/TANSO-FTS データの検証解析	齋藤尚子	040A02
ベルギー滞在記～MAX-DOAS 法による大気微量成分観測の研究～	高島久洋	040A03

第 14 回日本大気化学会奨励賞受賞記念論文

粒子状物質を介した大気海洋間の物質循環過程	岩本洋子	040A04
速度論的手法による対流圏ハロゲン不均一反応化学の定量的解明	坂本陽介	040A05

会員からのお知らせ

SPARC General Assembly 2018 参加報告	江口菜穂	040N01
雪氷-大気間の化学 Cryosphere and Atmospheric Chemistry (CATCH)参加報告	野村大樹, 原圭一郎, 服部祥平	040N02
4th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 開催報告	持田陸宏	040N03
4th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 参加報告	中川真秀	040N04

学会からのお知らせ

日本地球惑星科学連合 2019 年大会 (JpGU2019)での大気化学セッション開催のお知らせ	日本大気化学会 運営委員会	040N05
第 14 回日本大気化学会奨励賞の選考結果について	日本大気化学会 運営委員会	040N06
日本大気化学会役員選挙の公示	日本大気化学会 選挙管理委員会	040N07

記事のご投稿について

論文や記事のご投稿をご検討されている方は、事前に本誌編集委員または日本大気化学会運営委員までご相談下さい。

大気化学研究編集委員：江波進一(共同編集長)、森本真司(共同編集長)、関山剛、山地一代

日本大気化学会運営委員(第10期, 平成29年7月1日から)：

谷本浩志(国立環境研究所), 入江仁士(千葉大学), 岩本洋子(広島大学), 江口菜穂(九州大学), 江波進一(国立環境研究所), 金谷有剛(海洋研究開発機構), 豊田栄(東京工業大学), 中山智喜(名古屋大学), 永島達也(国立環境研), 廣川淳(北海道大学), 町田敏暢(国立環境研究所), 持田陸宏(名古屋大学), 森本真司(東北大学)

大気風を診るドップラー風ライダー

Doppler Wind Lidar probing for atmospheric wind

石井昌憲^{1, 2*}

大気中には風とともに飛んでいく大気分子やエアロゾル・雲（以下、大気微粒子）が存在している。大気分子や大気微粒子にレーザ光をあてると、ドップラー効果によって当たる前の波長（周波数）からわずかながら波長（周波数）の変化が生じる。ドップラー風ライダーは、散乱前後でどのくらい波長差（周波数差）が生じたかを調べることによって、風の速度を測ることができるリモートセンシング技術である。本稿はドップラー風ライダーについて紹介をする。

1. はじめに

リモートセンシング技術は、測定したい物に直接触れることなく、対象物の情報を取得する技術である。光のリモートセンシング技術の大気観測への応用は、強力なサーチライトを用いた1930年代に始まる。1930年代にサーチライトによって大気微粒子や雲底高度が観測された(*Tuve et al. 1935; Hulburt 1937; Johnthorn et al. 1939*)。その後1950年代まで、観測的な大気研究を行うために、強力なサーチライトが光源として使われていた。これら観測的研究によって、光を使う能動型リモートセンシング技術の潜在的な可能性と実用性が示された。1953年に、*Middleton and Spilhaus*が雲高計に対して初めて **Light Detection And Ranging (Lidar, 以下、ライダー)**を導入した。*Schawlow* と *Towns* によって予言されたレーザ発振は、*Maiman* によるルビーレーザ発振によって確認された(*Maiman, 1960*)。ルビーレーザ発振の確認後、様々なレーザ媒質(固体, 気体, 液体)を使ってレーザ発振が確認される。パルス発振技術の発明(*McClung and Hellwarth, 1962*)によりナノ秒パルス幅・高尖頭出力を持つパルスレーザの時代を迎え、ライダーに革命をもたらした。ルビーレーザ発振から4年、1964年にベル研究

所の *Geusic et al. (1964)*によって、その後のライダーによる大気観測のみならず、様々なレーザ利用において発展をもたらした Nd:YAG レーザが開発される。ライダーは、太陽光あるいは赤外放射を利用する受動型リモートセンシング技術とは対照的に、自ら光源を持つ能動型リモートセンシング技術である。ライダーは、レーザ光が照射された散乱体から散乱される光を調べることによって、遠距離にある大気微粒子、大気分子、水蒸気、大気微量成分等の距離、量、光学的情報等を高い時空分解能で観測できる。本稿は、2章においてライダー観測と方程式を示し、3章においてドップラー風ライダーを述べる。4章において将来の衛星搭載ドップラー風ライダーについて紹介する。

2. ライダー観測

ライダーは、大気分子や大気微粒子にレーザ光を照射し、レーザ光と粒子の間で起こる相互作用を調べることによって情報(例えば、距離、光学的な特性、速度、濃度等)を得る。ライダー観測から情報を得るために、二つの仮定の下で解析が行われる: 散乱過程は独立、そして、単一散乱である。干渉や多重散乱を生じる場合のライダー観測は注意

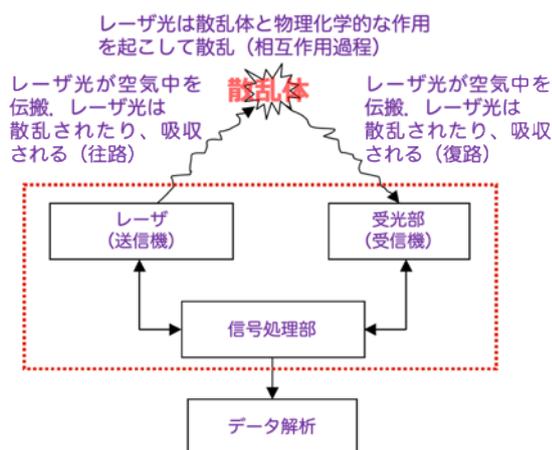


図 1 ライダー観測の物理的概念図

表 1 光と散乱体の相互作用

散乱体	種類	散乱波長
大気分子	レイリー散乱	レーザー波長と変わらない
	ラマン散乱	レーザー波長付近 (回転) 固有の波長分変化 (振動)
エアロゾル	ミー散乱	レーザー波長と変わらない
	蛍光	固有の波長分変化
大気分子 エアロゾル	吸収	レーザー波長と変わらない
金属原子 イオン	共鳴散乱	レーザー波長と変わらない

が必要である。ライダー観測の物理的概念図(図 1)を念頭に置いて、ライダー方程式を導入する。ライダー方程式は、送信レーザーの出力、大気透過率、散乱過程、受光確率、システム効率、幾何学的効率、背景光や光検出器ノイズから与えられる。ここでは、ライダー方程式を簡略化するために、背景光や光検出器ノイズを無視するものとする。

大気中の粒子から散乱される受信電力 $P(\lambda_R, r)$ [W]は、

$$P(\lambda_R, r) = C \cdot P_T(\lambda_T) \cdot \frac{A}{r^2} \cdot [\beta_a(\lambda_T, \lambda_R, r) + \beta_m(\lambda_T, \lambda_R, r)] \Delta R \cdot T_T(\lambda_T, r) \cdot T_R(\lambda_R, r) \quad (1)$$

と表される。ここで、 r はライダーからターゲット大気までの距離[m], C は装置係数, λ_T と λ_R は送信レーザーの波長[m]と受光信号の波長[m], $P_T(\lambda_T)$ [W](=レーザーパルスエネルギー[J]/レーザーパルス幅[s])は

尖頭出力[W], A は受光望遠鏡面積[m²], $\beta_a(\lambda_T, \lambda_R, r)$ は大気微粒子の後方散乱係数[1/m/sr], $\beta_m(\lambda_T, \lambda_R, r)$ は大気分子の後方散乱係数[1/m/sr], ΔR は1距離ビン[m], T_T は波長 λ_T に対するライダーからターゲット大気までの大気透過率, T_R は波長 λ_R に対するターゲット大気からライダーまでの大気透過率である。 ΔR は、光速 c ($=2.998 \times 10^8$ m/s) と1 距離ビン時間 Δt [s]を用いて、 $\Delta R = c \cdot \Delta t / 2$ と与えられる。(1)式の右辺の前半部分の内、 C , P_T はライダーの観測性能を決めるライダー装置に依存する項、後半部分 (β_m , β_a , T_T , T_R) はターゲット大気や観測散乱体の光学的特性に依存する項である。 $[\beta_a(\lambda_T, \lambda_R, r) + \beta_m(\lambda_T, \lambda_R, r)] \Delta R$ は、送信レーザーの拡がり角によって規定される立体角内で光が後方散乱される確率を表す。 A/r^2 は散乱体に対する望遠鏡の開口径によって規定される立体角を表し、散乱光が受信望遠鏡によって集められる光の確率を表す。

T_T と T_R は、大気分子の消散係数 $\alpha_m(\lambda_T, R)$ と大気微量粒子の消散係数 $\alpha_a(\lambda_T, R)$ を用いて

$$T_T(\lambda_T, r) = \exp \left\{ - \int_0^r [\alpha_a(\lambda_T, R) + \alpha_m(\lambda_T, R)] dR \right\} \quad (2)$$

$$T_R(\lambda_R, r) = \exp \left\{ - \int_0^r [\alpha_a(\lambda_R, R) + \alpha_m(\lambda_R, R)] dR \right\} \quad (3)$$

と表される。

風を測るドップラー風ライダー (Doppler Wind Lidar : DWL) を考えるために、(1)式を振りかえる。一般的にライダー観測は弾性散乱の観測を仮定しているため、大気微小粒子、もしくは大気分子に入射するレーザー光と散乱される光の間には波長差(周波数差)は生じない、したがって、 $\beta_a(\lambda, r) = \beta_m(\lambda, r)$ となる。しかしながら、実際の大気中では風が吹いているので、大気微小粒子や大気分子から散乱される光は、ドップラー効果によって波長(周波数)遷移を起こす。その結果、入射レーザーと散乱される光の間では、僅かな波長差(周波数差)を生じる。ドップラー風ライダーは、この僅かな波長差(周波数差)を計測することによって、視線方向 (Line

Of Sight : LOS) の風速を測るライダーである。次にドップラー風ライダーについて解説する。

3. ドップラー風ライダー

ドップラー風ライダーの研究は、1970年頃に始まり、光の分光方法からコヒーレント方式と直接検波（インコヒーレントとも呼ぶ）方式に分けられる。コヒーレントドップラー風ライダー（Coherent Doppler Wind Lidar : CDWL）は、光を分光するために光ヘテロダイン検波を用いる。CDWLの創成期においては、波長 $10.6 \mu\text{m}$ (28 THz) の CO_2 レーザを用いた CDWL の研究が行われた(Huffaker et al., 1970; Lawrence et al., 1972; Schwiesow, and Cupp, 1976; Post et al., 1978; Bibro et al., 1984; Werner et al., 1984)。1980年代に入ると固体レーザが注目されるようになり、波長 $1.064 \mu\text{m}$ (282 THz) の Nd:YAG レーザを用いた CDWL の研究が行われた(Kane et al., 1984, 1987; Kavaya et al., 1989)。1990年代になると、目に対する安全性が考慮されるようになり、波長 $2 \mu\text{m}$ (150 THz) 帯の CDWL が主流となった(Henderson et al., 1991, 1993)。光通信分野の部品や EDFA (Erbium-Doped Fiber Amplifier) によるレーザの高出力化により、波長 $1.5 \mu\text{m}$ (200 THz) 帯 CDWL が開発され、商業用製品化も実現されている(Asaka et al., 1998, 2001; Kameyama et al., 2007, 2013; Yanagisawa et al., 2018]。

直接検波方式ドップラー風ライダー（Direct-detection Doppler Wind Lidar : DDWL）は、十分な分解能をもつファブリー・ペロー・エタロンやヨウ素フィルターを用いて光を分光し、直接検波によりドップラー周波数を測定する。DDWL 研究は、波長 $0.448 \mu\text{m}$ (625 THz) の Ar レーザを用いた研究に始まる (Benedetti-Michelangeli et al., 1972; Congeduti et al., 1981)。DDWL は、1980年代に入ると成層圏・中間圏用として(Chanin et al., 1989; She and Yu 1994), 1990年代以後は対流圏用として風観測研究に用いられる(Abreu et al., 1992; McGill et al., 1997; Gentry et al., 2000)。DDWL は、差分フィルター法(Chanin et al., 1989; Gainer and Chanin 1992), 波長スキャ

ン法(Teplay et al., 1993), イメージプレーン法(Abreu et al., 1992), エッジ法(Flesia and Korb, 1999; Gentry 2000; Reitebuch et al., 2009; Shibata et al., 2009), 干渉法 (Grund et al., 2009; Tuchker et al., 2018; Baidar et al., 2018)など様々な方法がある。最近ではエッジ法や干渉法を用いる DDWL が多い。

ドップラー効果による偏移周波数を $\Delta\nu$ とすると視線方向の風速 v_{LOS} は、

$$v_{\text{LOS}} = \frac{\lambda_{\text{T}}}{2} \Delta\nu \quad (4)$$

と与えられる。例えば、風速 1 m/s, レーザの波長が $0.355 \mu\text{m}$ と $2 \mu\text{m}$ の場合では、ドップラー効果による周波数偏移は 5.6 MHz と 1 MHz となる。

3.1 コヒーレントドップラー風ライダー

CDWL による風観測の原理を図 2 に示す。周波数が安定化され、周波数スペクトルの線幅が非常に狭い参照光レーザからのレーザ光は、送信レーザの“種”として使われる。また、別の一部は、大気への射出するレーザ光と大気からの散乱される光の周波数を調べるために、光ヘテロダイン検波の局所光として使われる。種レーザとして、パルスレーザ(スレーブレーザ)に入る。スレーブレーザから大気へ射出される光の周波数 ν_{T} は、参照光レーザの周波数 ν_{L} より周波数シフターによって ν_{IF} 周波数分だけ偏移した $\nu_{\text{L}} + \nu_{\text{IF}}$ である。大気中に射出されたレーザは、風とともに移動する大気微小粒子によって散乱され、ドップラー効果によって周波数 $\Delta\nu$ 分だけさらに偏移し、周波数 $\nu_{\text{T}} + \Delta\nu$ として CDWL へ戻ってくる。その散乱された光は、望遠鏡によって集光され、周波数混合器として機能する光検出器上で参照レーザと混ぜられ、光ヘテロダイン検波が行われる。 $\nu_{\text{IF}} + \Delta\nu$ の周波数成分を有する電気信号へと周波数変換(ダウンコンバート)され、光検出器から出力される。同様に、パルスレーザの一部と参照レーザを光ヘテロダイン検波す

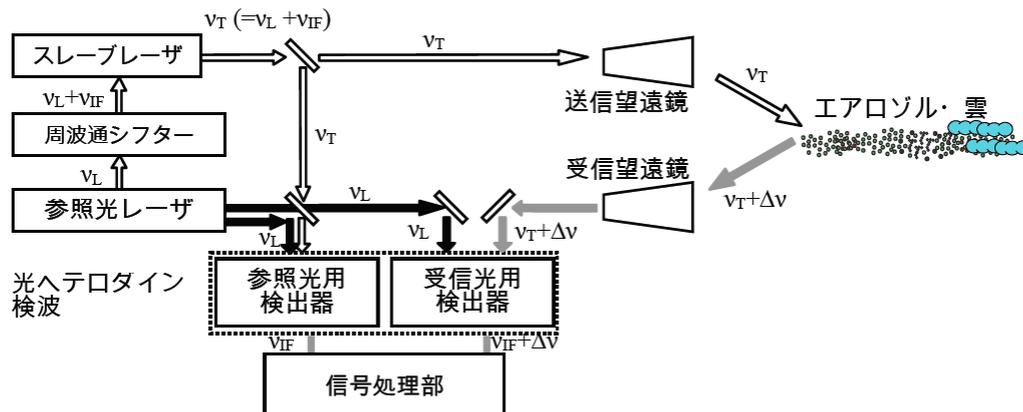


図 2 CDWL の測定原理図

ると、 ν_{IF} の周波数成分を有する電気信号が光検出器から出力される。高速フーリエ変換等を用いて、周波数シフターと受信信号光の周波数である ν_{IF} と $\nu_{IF}+\Delta\nu$ が決定される。そして、それらの周波数差 ($\Delta\nu=(\nu_{IF}+\Delta\nu)-\nu_{IF}$) からドップラー周波数が決定され、(4) 式を用いて視線方向の風速が得られる。CDWL で用いる光ヘテロダイン検波は、光のビート信号から周波数を決定するので、周波数を正確に測定できる、また、参照光を強くすることでショット雑音限界という理想的な光検出状態を実現できるので、微弱な光も検出可能となる。受光系の狭帯域化が容易なため、昼間の観測も適している。しかしながら、光ヘテロダイン検波は、光の波面を合成して行われるため、大気中の屈折率乱流による波面の乱れ、あるいは信号光と参照レーザーの波面合成時の乱れ等によって測定性能を劣化する、長いパルスを用いるために距離分解能が悪くなる等の弱点もある。

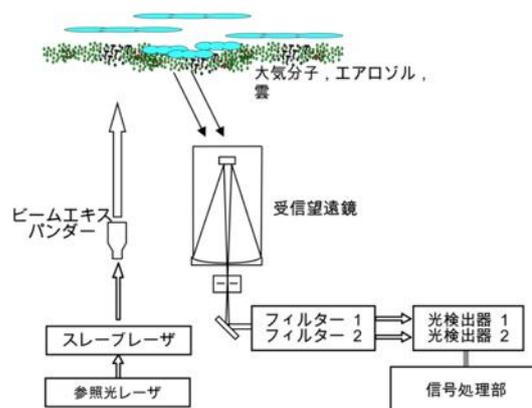


図 3 DDWL の測定原理図

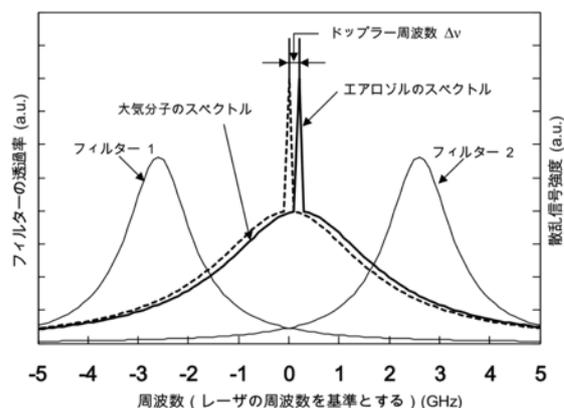


図 4 レーザ周波数と散乱体の散乱スペクトルの関係

3.2 直接検波方式ドップラー風ライダー

DDWL による風観測の一例として、ダブルエッジ法による DDWL を紹介する (図 3)。DDWL も CDWL と同じ様に、周波数安定化された種レーザー (参照光レーザー) と高出力パルスレーザー (スレーブレーザ) が用いられ、単一周波数の高出力パルスレーザーが大気中に射出される。DDWL は、大気分子の後方散乱のようにスペクトル幅の広い信号 (GHz オーダー) を扱うので、レー

ザのスペクトル線幅は CDWL と比べて広く、数十 MHz から 100MHz 程度である。近年では、高スペクトル分解ライダーと併用された DDWL もあり、20-30MHz とやや狭いスペクトル幅を持つレーザーも使用される (Grund et al., 2009; Tucker et al., 2018)。大気中に射出されたレーザーは大気分子や大気微粒子によって周波数 $\Delta\nu$ だけ偏移し、散乱され、望遠鏡によって集光される。集光さ

れた光は、ビームスプリッター等を用いて 2 系統に分けられる。図 4 に示すように、レーザの周波数 ν_T (周波数偏移=0 GHz) で透過率が対称となるように配置される 1 組のフィルター (例えば、エタロンフィルター) に受光した光を入射させる。ドップラー効果を受けた大気分子や大気微粒子のスペクトルは点線スペクトルの位置から実線スペクトルの位置に偏移するので、フィルターの透過率が変化する。その結果、それぞれのフィルターを透過する光の強度に差が生じる。各々のフィルターを透過した光は光検出器 1 と光検出器 2 によって受信信号 (電気信号) $S_{i=1,2}$ へ変えられる。図 5 に示すように、レーザの周波数 ν_T 付近においてエタロンフィルター 1 と 2 の透過率 $T_{i=1,2}$ は周波数 ν に比例する、エタロンフィルター 1 と 2 の最大透過率は等しい、また、 S_i は透過率 T_i に対して比例すると仮定すると、 S_i は周波数 ν_T 付近において周波数 ν に比例する。 S_i は、次のように与えられる：

$$S_1 = \frac{T_m}{f_{FWHM}} (\nu - \nu_T) + \frac{1}{2} T_m \quad (5)$$

$$S_2 = -\frac{T_m}{f_{FWHM}} (\nu - \nu_T) + \frac{1}{2} T_m \quad (6)$$

つづいて、ドップラー周波数 $\Delta\nu$ は $(S_1 - S_2) / (S_1 + S_2)$ を計算する：

$$\frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} = \frac{2 \cdot \frac{T_m}{f_{FWHM}} (\nu - \nu_T)}{T_m} = \frac{2(\nu - \nu_T)}{f_{FWHM}} = \frac{2 \cdot \Delta\nu}{f_{FWHM}} \quad (7)$$

よって、

$$\Delta\nu = \frac{f_{FWHM}}{2} \frac{S_1 - S_2}{S_1 + S_2} \quad (8)$$

となる。(4) と (8) 式を用いて視線方向風速を求める。DDWL は、パルス幅の短いレーザを使用するために、距離分解能を短くすることが出来る。背景光の影響を受けやすいため、昼間の観測の場合、観測高度範囲は限定される。昼間の対流圏の風測定は、時間的スケールとのトレードオフとなる。口径の大きな望遠鏡を使用することが多いため、小型化が難しいといった弱

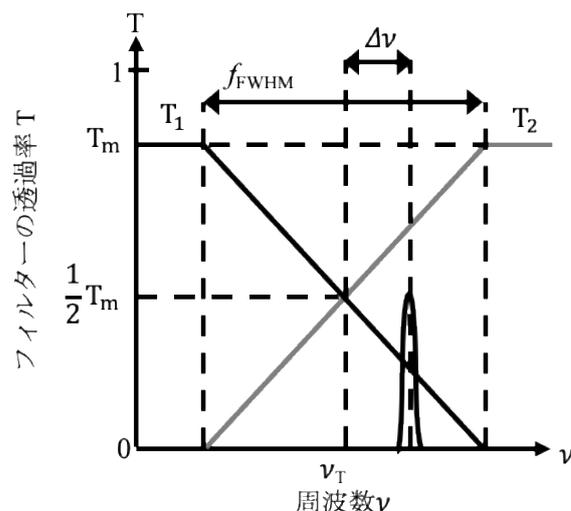


図 5 レーザ周波数とフィルター透過率の関係。 T_m : フィルター 1 と 2 の最大透過率。

点もある。

4. 衛星搭載ドップラー風ライダー

最後に宇宙から風を測る衛星搭載 DWL について紹介する。近年、気候変動に伴う自然災害が増えてきている。自然災害から人命や財産を守るために、予測に基づいた準備や行動が必要であり、そのためには、数値予報や気候変動モデル精度の向上が重要である。全球規模で気象データが取得できる衛星観測の重要性はさらに増しているが、現在の衛星による地球観測は、温度や水蒸気等の観測に偏っている。風の直接観測や地上リモートセンシング観測は、人口の多い地域や航空航路上の海域に限定されるため、大陸内陸部や海洋域は非常に大きな観測の空白域となっている。一方、風の高度分布データは衛星観測によって得ることが可能であるが、雲や水蒸気塊の画像を利用した大気追跡風、マイクロ波散乱計、マイクロ波イメージャによる海上風観測にほぼ限られる。大気追跡風は高度推定精度が向上しつつあるが、十分な高度分解能とは言いがたい。マイクロ波散乱計やマイクロ波イメージャによる観測は、ある特定層に限定されている。大気風の高度分布を観測できるセンサーとして DWL は有力なリモートセンシング技術であることから、衛星搭載 DWL による全球風観測は、数値予報

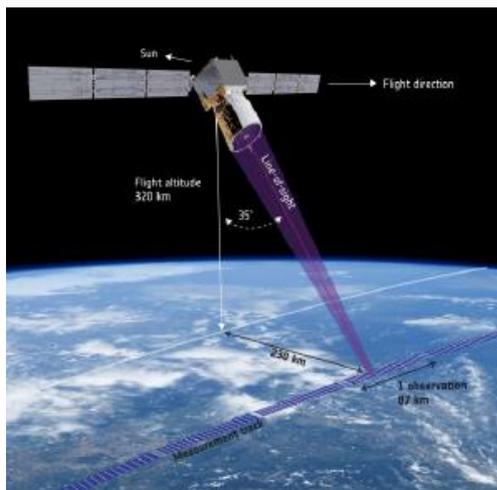


図 6(a) ESA が打上げた衛星搭載ドップラー風ライダー Aeolus(直接検波方式). Copyright: ESA/ATG medialab. (http://www.esa.int/spaceinimages/Images/2012/01/Aeolus_measurement_geometry)

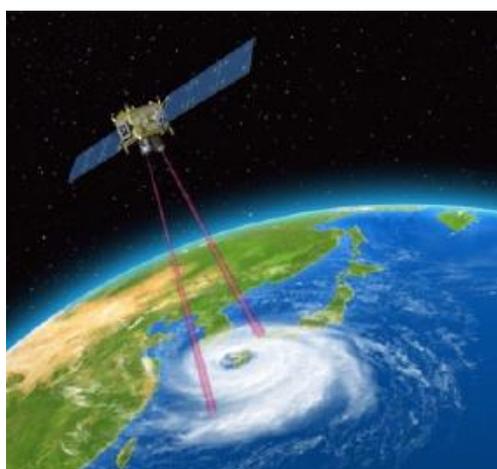


図6(b) 日本で検討が進むコヒーレント方式による衛星搭載ドップラー風ライダー(イメージ図)

や気候モデルの予測精度向上をもたらすと期待されている。ESA は 2018 年 8 月に世界初となる衛星搭載 DDWL Aeolus(図 6(a))の打ち上げに成功し、大気風の観測を開始している。日本においても衛星搭載 CDWL(図 6(b))の実現を目指して、情報通信研究機構、宇宙航空研究開発機構、気象庁気象研究所、東北大学、東京大学、京都大学、東北工業大学等で検討が進められている(Ishii et al., 2017; Baron et al., 2017; Okamoto et al., 2018)。今後、日本でも衛星による風観測を実現し、数値予報や気候モデルの精度向上に期待される。

5. おわりに

本稿では、大気中を浮遊する大気分子や大気微小粒子にレーザをあて、それらから散乱されて戻ってくる光を調べることによって、距離や光学的特性の情報が得られるライダーを解説し、風を測る事が出来るドップラー風ライダーを紹介した。ドップラー風ライダーは、大きく分けて、コヒーレント方式と直接検波方式の二つに分けられる。コヒーレント方式は、口径の小さな受光望遠鏡を用いるので走査型のシステム化が比較的容易に出来る。一方、直接検波方式は、口径の大きな受光望遠鏡が用いられるので走査型システムには不向きである。小型で走査が容易な CDWL の出現により、今まで人間の目では見ることが出来なかった大気の流れを 3 次元的に可視化できるようになった。また、最近では、小型の CDWL は、風力発電の風況調査や空港周辺の風況観測に用いられるようになっており、CDWL が活躍する場面が増えている。宇宙からの風観測によって数値予報において有用なデータが提供され、数値予報の予報精度向上への貢献が期待されている。今後も DWL が発展し、様々な場面での利用が期待される。

6. 参考文献

- Abreu, V. J., J. E. Barnes, and P. B. Hays (1992), Observations of winds with an incoherent lidar detector. *Appl. Opt.*, 31(22), 4509–4514.
- Asaka, K., Y. Hirano, Y. Morimoto, and K. Kasahara (1998), Er, Yb: Glass coherent lidar using a microchip laser as a reference optical source. *Rev. Laser Engineer*, 26, 876–880.
- Asaka, K., T. Yanagisawa, and Y. Hirano (2001), 1.5- μm eye-safe coherent lidar system for wind velocity measurement. *Proceedings of SPIE*, 4153, 321–328.
- Baidar, S., S. C. Tucker, M. Beaubien, and R. M. Hardesty (2018), The Optical Autocovariance Wind Lidar. Part II: Green OAWL (GrOAWL) Airborne Performance and Validation. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 35(10), 2099–2116.
- Baron, P., S. Ishii, K. Okamoto, K. Gamo, K. Mizutani, C. Takahashi, T. Itabe, T. Iwasaki, T. Maki, R. Oki, S. Ochiai, D. Sakaizawa, M. Satoh, Y. Satoh, T. Tanaka, and M. Yasui

- (2017), Feasibility study for future spaceborne coherent Doppler Wind Lidar, Part 2: Measurement simulation algorithms and retrieval error characterization. *J. Meteor. Soc. Japan*, 95, 319–342.
- Benedetti-Michelangeli, G., F. Congeduti, and G. Fiocco (1972), Measurement of Aerosol Motion and Wind Velocity in the Lower Troposphere by Doppler Optical Radar. *J. Atmos. Sci.*, 29, 906–9110.
- Bilbro J. W., G. Fichtl, D. Fitzjarrald, M. Krause, and R. Lee (1984), Airborne Doppler lidar wind field measurements. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 65, 348–359.
- Chanin, M. L., A. Garnier, A. Hauchecorne, and J. Porteneuve (1989), A Doppler lidar for measuring winds in the middle atmosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 16(11), 1273–1776.
- Congeduti, F., G. Fiocco, A. Adriani, and C. Guarrella (1981), Vertical wind velocity measurements by a Doppler lidar and comparisons with a Doppler sodar. *Appl. Opt.*, 20(12), 2048–2054.
- Flesia, C. and C. L. Korb (1999), Theory of the double-edge molecular technique for Doppler lidar wind measurement. *Appl. Opt.*, 38(3), 432–440.
- Gentry, B. M., H. Chen, and S. X. Li (2000), Wind measurements with 355-nm molecular Doppler lidar. *Opt. Lett.*, 25(17), 1231–1233.
- Grund C. J., J. Howell, R. Pierce, and M. Stephens (2009), Optical autocovariance direct detection lidar for simultaneous wind, aerosol, and chemistry profiling from ground, air, and space platforms. *Proceedings of SPIE*, 7312, 73120U1-73120U10.
- Hulbert, E. O. (1937), Observations of a Searchlight Beam to an Altitude of 28 Kilometers. *J. Opt. Soc. Amer.*, 27, 377–382.
- Henderson, S.W., C. P. Hale, J. R. Magee, M. J. Kavaya, and A. V. Huffaker (1991), Eye-safe coherent laser radar system at 2.1 μm using Tm,Ho:YAG lasers. *Opt. Lett.*, 16(10), 773–775.
- Henderson, S.W., P. J. M. Sumi, C. P. Hale, S. M. Hannon, J. R. Magee, D. L. Bruns, and E. H. Yue (1993), Coherent laser radar at 2 μm using solid-state lasers. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 31(1), 4-15.
- Huffaker, R. M., A. V. Jelalian, & J. A. L. Thomson (1970), Laser-Doppler system for detection of aircraft trailing vortices. *Proc. IEEE*, 58(3), 322–326.
- Ishii S., P. Baron, M. Aoki, K. Mizutani, M. Yasui, S. Ochiai, A. Sato, Y. Satoh, T. Kubota, Daisuke Sakaizawa, Riko Oki, K. Okamoto, T. Ishibashi, T. Y. Tanaka, T. T. Sekiyama, T. Maki, K. Yamashita, T. Nishizawa, M. Satoh, and T. Iwasaki (2017), Feasibility Study for Future Space-Borne Coherent Doppler Wind Lidar, Part 1: Instrumental Overview for Global Wind Profile Observation. *J. Meteor. Soc. Japan*, 95, 301–317.
- Johnson, E.A., R.C. Meyer, R.E. Hopkins, and W.H. Mock (1939), The Measurement of Light Scattered by the Upper Atmosphere from a Search-Light Beam. *J. Opt. Soc. Amer.*, 29, 512–517.
- Kavaya, M. J., S. W. Henderson, J. R. Magee, C. P. Hale, and R. M. Huffaker (1989), Remote wind profiling with a solid-state Nd:YAG coherent lidar system. *Opt. Lett.*, 14(15), 776–778.
- Kane, T. J., B. Zou, and R. L. Byer (1984), Potential for coherent Doppler wind velocity lidar using neodymium lasers. *Appl. Opt.*, 23(15), 2477–2481.
- Kane, T. J., W. J. Kozlovsky, and R. L. Byer (1987), Coherent laser radar at 1.06 μm using Nd:YAG lasers. *Opt. Lett.*, 12(4), 239–241.
- Kameyama, S. T. Ando, K. Asaka, Y. Hirano, and S. Wadaka (2007), Compact all-fiber pulsed coherent Doppler lidar system for wind sensing. *Appl. Opt.*, 46(11), 1953-1962.
- Kameyama, S., T. Yanagisawa, T. Ando, T. Sakimura, H. Tanaka, M. Furuta, and Y. Hirano (2013), Development of wind sensing coherent Doppler lidar at Mitsubishi Electric Corporation—from late 1990s to 2013~. Paper presented at 17th Coherent Laser Radar Conference, Barcelona, Spain.
- Lawrence, T. R., D. J. Wilson, C. E. Craven, I. P. Jones, R. M. Huffaker, and J. A. L. Thomson (1972), A Laser Velocimeter for Remote Wind Sensing. *Rev. Sci. Instr.*, 43, 512–518.
- Maiman, T.H. (1960), Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187, 493–494.
- Middleton, W. E. K. and A. F. Spilhaus (1953), *Meteorological Instruments* (3rd ed.), University of Toronto Press, Tronto.
- McClung, F. J. and R. H. Hellwarth (1962), Giant Optical Pulsations from Ruby. *Appl. Opt.*, 1(S1), 103–105.
- Okamoto, K., T. Ishibashi, S. Ishii, P. Baron, K. Gamo, T. Y.

Tanaka, K. Yamashita, and T. Kubota (2018), Feasibility Study for Future Space-Borne Coherent Doppler Wind Lidar, Part 3: Impact Assessment Using Sensitivity Observing System Simulation Experiments. *J. Meteor. Soc. Japan*, 96, 179–199.

Post, M. J., R. L. Schwiesow, R. E. Cupp, D. A. Haugen, and J. T. Newman (1978), Temporal and spatial frequency spectra for atmospheric aerosols. *J. Appl. Meteor.*, 17, 1179–1181.

Reitebuch, O., C. Lemmerz, N. Engelbert, and U. Paffrath (2009), The airborne demonstrator for the direct-detection Doppler wind lidar ALADIN on ADM-Aeolus. Part I: Instrument design and comparison to satellite instrument. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 26, 2501–2515.

Schwiesow, R. L. and R. E. Cupp (1976), Remote Doppler velocity measurements of atmospheric dust devil vortices. *Appl. Opt.* 15 (1) 1–2.

She, C. Y. and J. R. Yu (1994), Simultaneous three - frequency Na lidar measurements of radial wind and temperature in the mesopause region. *Geophys. Res. Lett.*, 21(17), 1771–1774.

Shibata, Y., C. Nagasawa, M. Abo, and T. Nagai (2009), System Evaluation of an Incoherent Wind Doppler LIDAR Using an Iodine Filter. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 4, 032401.

Teplay, C. A., S. I. Sargoytchev, and R. Rojas (1993), The Doppler Rayleigh lidar system at Arecibo. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 31(1), 36–47.

Tucker, S. C., C. S. Weimer, S. Baidar, and R. M. Hardesty (2018), The Optical Autocovariance Wind Lidar. Part I: OAWL Instrument Development and Demonstration. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 35(10), 2079–2097.

Tuve, M. A., E.A. Johnson, and O. R. Wulf (1935), A new experimental method for study of the upper atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 40(4), 452–454.

Werner, C., F. Köpp, and R. L. Schwiesow (1984), Influence of clouds and fog on LDA wind measurements. *Appl. Opt.* 23(15), 2482–2484.

Yanagisawa, T. Sakimura, K. Hirose, T. Takasaki, N. Samejima, M. Furuta, H. Tanaka, S. Kameyama, T. Ando, K. Asaka, and Y. Hirano (2018), History of 1.5 μ m laser source for the coherent Doppler LIDAR in Mitsubishi Electric. Pare presented at 19th Coherent Laser Radar

Conference, Okinawa Japan.

原稿受領日: 2019 年 1 月 11 日

掲載受理日: 2019 年 1 月 21 日

著者所属:

1. 情報通信研究機構 経営企画部
2. 首都大学東京 大学院システムデザイン研究科

*** 責任著者:**

Shoken Ishii <sishii@nict.go.jp>

GOSAT/TANSO-FTS データの検証解析

Validation analysis of GOSAT/TANSO-FTS

齋藤尚子^{1*}

2009年1月23日に打ち上げられたGOSAT (Greenhouse Gases Observing Satellite)は、約10年にかけて、大気中の二酸化炭素やメタン等の温室効果気体の観測を行っている。GOSAT に搭載されているTANSO-FTS (Thermal and Near Infrared Sensor for Carbon Observation-Fourier Transform Spectrometer)は、短波長赤外バンド (SWIR バンド) 及び熱赤外バンド (TIR バンド) の両方の観測バンドを持つ唯一のセンサーであり、同時に同視野で二酸化炭素とメタンのカラム平均濃度と鉛直濃度分布を観測することができる。本稿では、SWIR バンド及び TIR バンドで観測された二酸化炭素とメタンのカラム平均濃度と鉛直濃度分布のデータ質を、他の独立の観測データとの比較に基づいて検証した研究を紹介する。

1. はじめに

GOSAT (Greenhouse Gases Observing Satellite; 温室効果ガス観測技術衛星「いぶき」)は、2009年1月23日に打ち上げられた、温室効果ガス観測に特化した世界初の衛星である。GOSAT は、TANSO (Thermal and Near Infrared Sensor for Carbon Observation) -FTS (Fourier Transform Spectrometer) と TANSO-CAI (Cloud and Aerosol Imager) という二つのセンサーを搭載しており、前者で二酸化炭素 (CO₂) やメタン (CH₄) 等の温室効果ガス濃度を、後者で TANSO-FTS 観測視野内の雲及びエアロゾルの観測を行っている。TANSO-FTS は下方視型のセンサーで、短波長赤外波長 (short-wavelength infrared; SWIR) に 3 バンド (0.758–0.775 μm, 1.56–1.72 μm, 1.92–2.08 μm), 熱赤外波長 (thermal infrared; TIR) に 1 バンド (5.56–14.3 μm) の 4 バンドで構成されており [Kuze *et al.*, 2009], 前者は太陽放射の後方散乱光を利用して CO₂, CH₄ のカラム平均濃度 XCO₂, XCH₄ (気柱に含まれる乾燥空気分子の総数に対する CO₂, CH₄ 等の分子の総数の比)

等を [Yoshida *et al.*, 2011], 後者は地表面及び大気からの赤外放射光を利用して CO₂, CH₄ 等の鉛直濃度分布を観測している [Saitoh *et al.*, 2009]。

人工衛星による大気観測は、広域を長期間モニタリングできる反面、高精度計測機器による直接観測と比較して観測の確度や精度で劣ることが多く、衛星データを利用した科学的な解析を行う前にはデータ質の検証解析を行うことが重要である。本稿では、GOSAT 搭載 TANSO-FTS の SWIR バンド及び TIR バンドのデータ質の検証解析の結果を報告し、TANSO-FTS データを利用した科学的成果についてもごく簡単に述べる。

2. 人工衛星による温室効果ガス観測

下方視型センサーによる短波長赤外波長の分子の吸収特性を利用した大気成分の観測は、太陽光の後方散乱光を利用するため、濃度の高度分布の情報を得ることは難しいが、地表からの反射光を観測するため地表付近の濃度変動にも感度を持つという利点がある。一方で、雲やエアロゾルによる散乱の

影響を受けやすく、さらに、相対的に反射率が低い海域では光量が乏しく観測が難しくなるため、サンプリング領域に特化して観測を行う必要がある。短波長赤外波長で XCO_2 , XCH_4 の観測を行っているセンサーには、TANSO-FTS の他に SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography) [Buchwitz *et al.*, 2005], OCO-2 (Orbiting Carbon Observatory-2) [Wunch *et al.*, 2017], TanSat [Yang *et al.*, 2018], TROPOMI (Tropospheric Monitoring Instrument) [Hu *et al.*, 2016] などがある。

下方視型センサーによる熱赤外波長の分子の吸収特性を利用した大気成分の観測では、地表面から放射される赤外線が大気分子が吸収し、さらにその温度に応じて再放射を起こすことを利用して、濃度の高度分布の情報を得る。地表面の温度と大気下層の気温に大きな差がないため、地表面付近及び境界層内の濃度の情報を得ることは難しいが、気温の高度分布が既知であれば、分子による吸収の強度の波長依存性を利用して、分子の鉛直濃度分布が観測できる。一般には、地表面と大気との温度差が大きく、気温の勾配が大きい低緯度の陸域で、最も分子濃

度の高度分布情報が得やすい(図 1)。熱赤外波長のスペクトルには大気中の多くの分子の吸収線が含まれているため様々な分子の濃度が観測できる一方、異なる分子の吸収線が重なり合うことで各分子濃度の観測精度・精度が悪くなることもある。熱赤外波長で CO_2 , CH_4 の濃度を観測している下方視型のセンサーには、AIRS (Atmospheric Infrared Sounder) [Chahine *et al.*, 2005; Xiong *et al.*, 2008], TES (Tropospheric Emission Spectrometer) [Kulawik *et al.*, 2010; Worden *et al.*, 2012], IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) [Crevoisier *et al.*, 2009; Razavi *et al.*, 2009], CrIS (Cross-track Infrared Sounder) [Gambacorta and Barnett, 2013] などがある。

3. SWIR バンドの検証解析と科学的成果

TANSO-FTS の SWIR バンドの L2 (Level 2, 観測地点での濃度データ) XCO_2 , XCH_4 プロダクト導出 (リトリバル) アルゴリズムは複数の研究機関で開発されている。国立環境研究所 (以降、NIES) の最新の L2 プロダクトは V02.XX データである。TCCON (Total Carbon Column Observing

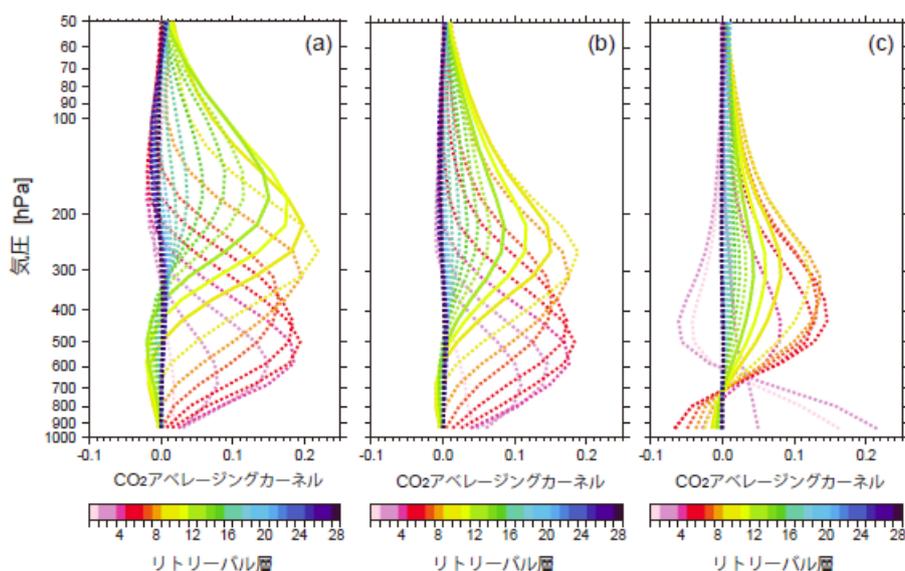


図 1 TANSO-FTS の TIR バンドによる CO_2 観測のアベレージングカーネル (Saitoh *et al.* [2016] の図 1 を一部改変)。アベレージングカーネルとは、観測感度の指標となる値であり、アベレージングカーネルの値が大きい高度は濃度変動に対する感度が高いと判断できる。TANSO-FTS の TIR バンドの V1 L2 CO_2 データは、地表面から 0.1 hPa までを 28 層に区切って濃度が導出されている。それぞれ、(a) 低緯度夏季、(b) 中緯度春季、(c) 高緯度冬季の大気条件を想定して計算している。

Network) [Wunch *et al.*, 2011]の地上 FTS データとの比較に基づいた検証解析により, NIES の XCO₂, XCH₄ プロダクトには, それぞれ平均すると -1.48 ± 2.09 ppm, -5.9 ± 12.6 ppb の僅かな負バイアスがあることがわかっている[Yoshida *et al.*, 2013]。CONTRAIL (Comprehensive Observation Network for Trace Gases by Airliner) [Machida *et al.*, 2008]や HIPPO (HIAPER Pole-to-Pole Observations) [Wofsy *et al.*, 2011]等の航空機観測による鉛直濃度分布データをカラム平均濃度に変換して比較したところ, NIES の L2 XCO₂ プロダクトの航空機観測データに対する負バイアスは海上 (-1.82 ppm) の方が陸上 (-0.68 ppm) より若干大きかったが, 濃度差のバラつき (標準偏差) は陸上 (2.56 ppm) の方が海上 (1.04 ppm) より大きくなる傾向があり, 陸上の検証解析では特に都市域でエアロゾルの影響が大きいことが示唆された[Inoue *et al.*, 2013]。一方, 同様にして NIES の L2 XCH₄ プロダクトを航空機観測の CH₄ データと比較したところ, TCCON データとの比較に基づいた検証解析とは逆に, NIES の L2 XCH₄ プロダクトに正バイアス (陸上で 1.5 ± 14.9 ppb, 海上で 4.1 ± 9.4 ppb) があることがわかった[Inoue *et al.*, 2014]。これは主に, 比較方法や, 比較に用いた TCCON の地上 FTS データと航空機観測データの濃度差に起因しており, 複数の異なる測器の観測データを用いて異なる方法で検証解析を行うにあたり, データセット間の整合性を精査することの重要性を示唆している。

TANSO-FTS の SWIR バンドの L2 プロダクトには, 上述の NIES L2 V02.XX プロダクトの他に, NIES PPDF (Photon path length Probability Density Function) 法プロダクト[Oshchepkov *et al.*, 2008], NASA/JPL のチームが開発している ACOS (Atmospheric CO₂ Observations from Space) XCO₂ プロダクト [O'Dell *et al.*, 2012], レスター大学が開発している UoL (University of Leicester) - FP (Full

Physics) プロダクト[Cogan *et al.*, 2012]及び UoL-proxy プロダクト[Parker *et al.*, 2011], SRON (Netherlands Institute for Space Research) /KIT (Karlsruhe Institute for Technology) が開発している RemoTeC-FP 及び RemoTeC-proxy プロダクト[Butz *et al.*, 2010]がある。Zhou *et al.* [2016]では, これらの複数の SWIR バンドの L2 プロダクト(NIES V02.21, ACOS V3.5, RemoTeC V2.3.5) を, TCCON の比較的海沿いの 5 つの地上 FTS データと比較した。なお, ACOS V3.5 及び RemoTeC V2.3.5 については, TCCON データ (GGG2014 及び GGG2012) に基づいてバイアス補正が施されている。NIES, ACOS, RemoTeC-FP プロダクトの XCO₂ のバイアスは, 陸上でそれぞれ -0.13% , -0.03% , 0.04% , 海上で -0.33% , 0.06% , 0.03% と, NIES プロダクトが海上で他プロダクトと比べて若干大きなバイアスを持っているものの, どのプロダクトも TCCON データと概ねよい一致を示している。一方, NIES, RemoTeC-FP, RemoTeC-proxy プロダクトの XCH₄ のバイアスは, 陸上でそれぞれ -0.35% , 0.20% , 0.06% , 海上で 0.02% , 0.04% , -0.02% と, 陸上でバイアスが大きくなる傾向がある。さらに, XCO₂ より XCH₄ の方が TCCON データに対する濃度のバラつきが全体的に大きくなることが明らかになった。

TANSO-FTS の SWIR バンドは, 瞬時視野およそ 10.5 km で XCO₂ を観測することができ, 上述の通り, データ質の検証解析も進んでいるため, SWIR バンドの XCO₂ データを用いた CO₂ の発生源・吸収源解析 (インバース解析) が近年盛んに実施されている[Maksyutov *et al.*, 2013; Saeki *et al.*, 2013a; Chevallier *et al.*, 2014; Basu *et al.*, 2013, 2014; Takagi *et al.*, 2014; Detmers *et al.*, 2015; Houweling *et al.*, 2015; Kondo *et al.*, 2016]。例えば, Detmers *et al.* [2015]は, TANSO-FTS の SWIR バンドの XCO₂ データを用いたインバース解析から, 2010 年から 2012 年の初頭にかけて, オーストラリアでラニーニャ発生に起因する強い CO₂ の吸収が起こっていたこと

を示した。また, *Kondo et al.* [2016]は, 地上の CO₂ データに加えて SWIR バンドの XCO₂ データを用いることで, 南半球の半乾燥地帯(特に南アメリカと南アフリカ)における CO₂ の吸収量が従来の理解より約 50%減少することを示した。*Houweling et al.* [2015]は, SWIR バンドの XCO₂ データをインバース解析に用いた場合, 陸上での CO₂ 吸収が熱帯で減少し, 北半球の温帯で増加する傾向になることを示したが, 一方で, 衛星による CO₂ 観測地点の空間非一様性が CO₂ の発生源・吸収源の推定結果に影響を及ぼす可能性があることを指摘している。また, *Basu et al.* [2013]では, 衛星の CO₂ データの時空間方向に非一様なバイアスが CO₂ の発生源・吸収源の推定結果に重大な影響を与えうることを示した。今後, 長期間の GOSAT/TANSO-FTS データを用いたインバース解析で CO₂ の発生源・吸収源の地域特性や年々変動を詳細に議論する場合, 前述の異なるリトリーバルアルゴリズムのプロダクト間のデータ質の違いやデータ質の経年変化が問題になることが予想されるため, 今後も継続的に TANSO-FTS データの検証解析を実施していく必要があると言えよう。

TANSO-FTS の SWIR バンドの観測スペクトルからは, XCO₂ や XCH₄ の他に, 水蒸気量 (XH₂O) や水蒸気の水素同位体比 ($\delta D = [HDO/H_2O]/[HDO/H_2O]_{\text{standard}} - 1$), SIF (Solar-induced chlorophyll fluorescence; 太陽光励起クロロフィル蛍光) などが導出されている [*Dupuy et al.*, 2016a,b; *Boesch et al.*, 2013; *Joiner et al.*, 2011; *Frankenberg et al.*, 2011]。NIES の L2 アルゴリズムでは, XH₂O は XCO₂ と XCH₄ と同時導出されており, データは一般に公開されている。*Dupuy et al.* [2016a,b]は, NIES の V02.21 の XH₂O データを TCCON の XH₂O データと比較し, SWIR バンドの XH₂O データに

約-3.1%の負バイアスがあるものの, 両者が 0.95 という高い相関を示していることを報告した。*Boesch et al.* [2013]は, TANSO-FTS のバンド 2 の観測スペクトルから, H₂O や CO₂ の強吸収の影響を比較的受けにくい波長で HDO の吸収線を選択し, H₂O と HDO の濃度を同時導出した。 δD の全球分布には高緯度で低く熱帯で高い値を取る明瞭な緯度勾配が見られ, TCCON や NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) の地上 FTS のデータとも概ねよい一致を示していた [*Boesch et al.*, 2013]。*Joiner et al.* [2011]及び *Frankenberg et al.* [2011]は, TANSO-FTS のバンド 1 (O₂ A バンド) の観測スペクトルから, SIF の全球分布の導出に成功している。SIF は植物が光合成を行う際に発する微弱的な光のことで, 植物の光合成によって CO₂ を吸収して生産する有機物総量 GPP (Gross Primary Production; 総一次生産量) や GPP から呼吸による CO₂ 放出 (有機物消費) を差し引いた NPP (Net Primary Production; 純一次生産量) と高い相関があることがわかっているため, 植物の光合成活性の新たな指標として注目されている。

4. TIR バンドの検証解析と科学的成果

TANSO-FTS の TIR バンドの L2 標準プロダクトとして一般に提供されているデータは CO₂ 及び CH₄ の鉛直濃度プロファイルであり, 最新 L2 プロダクトは V1 データである。TIR バンドの気温及び気体濃度導出には線形写像付き非線形最大事後確率推定法 [*Rodgers*, 2000] が採用されており, *Saitoh et al.* [2016]では, V1 の L2 プロダクトのリトリーバルアルゴリズムの改良点が述べられている。

TANSO-FTS の TIR バンドの V1 CO₂ プロダクトのデータ質は、CONTRAIL の CME (Continuous CO₂ Measuring Equipment) で上昇時、下降時、水平飛行時に取得された CO₂ データを用いて検証されている。図 1 に示されているように、TIR バンドの観測は上部対流圏の CO₂ 濃度に高い感度を持つ。そこで、Saitoh *et al.* [2016] では、2010 年の TIR バンドの上空 (287–162 hPa) の CO₂ データを、成田空港と海外の複数の空港を結ぶ 8 路線のフライトで得られた CME CO₂ データと比較した。なお、比較した CME 水平飛行時データの平均高度はおよそ 11.2 km である。この場合、比較的高緯度を飛ぶヨーロッパ路線などでは、対流圏、成層圏の両方で CO₂ 濃度を観測することになるため、対流圏と成層圏に分けて TIR バンドの CO₂ データとの比較が行われている。図 2 は、成田–シドニー間の春季の比較結果である。図 2 に示されている通り、TIR バンドの CO₂ データはどの緯度帯においても、アプリオリ (リトリーバル時に仮定する濃度の先験情報) である NIES-TM05 データ [Saeki *et al.*, 2013b] と比べて、CME データとよい一致を示していることがわかる。北半球では両者は概ね 0.5% 以内で一致しており、南半球においては両者の差は 0.1% 程度である。しかしながら、図 2

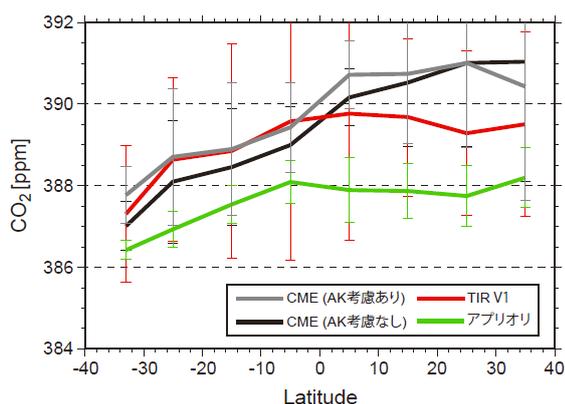


図 2 2010 年春季の成田–シドニー間の水平飛行時の CME CO₂ データ、TIR バンドの V1 CO₂ データ (赤線)、アプリオリ CO₂ データ (緑線) の比較結果 (Saitoh *et al.* [2016] の図 5 を一部改変)。縦線はそれぞれのデータの各緯度帯の季節平均値の標準偏差を示している。CME データは、TIR バンドの CO₂ アベレージングカーネル (AK) を考慮した場合 (灰線) と考慮しない場合 (黒線) の両方で比較している [Rodgers and Connor, 2003]。

にも示されているように、北半球の中低緯度の春季・夏季に TIR バンドの CO₂ データに負バイアスがあることがわかっており、このために北半球の中低緯度で TIR バンドの CO₂ データは CO₂ 濃度の季節変動を過小評価していることに注意が必要である。図 3 は、成田–ヨーロッパ間 (アムステルダム及びモスクワ) の冬季の同様の比較結果である。冬季の北半球高緯度における CME データの上部対流圏と下部成層圏の CO₂ 濃度の差は 2–3 ppm 程度 (最大で 4.24 ppm) であり、TIR バンドの CO₂ データの濃度差も同程度であることがわかる。一方、アプリオリデータには上部対流圏と下部成層圏の濃度差が見られないことから、TANSO-FTS の TIR バンドによって上部対流圏及び下部成層圏の CO₂ 濃度が十分な確度で観測できていることを示している。さらに、Saitoh *et al.* [2017] では、2010–2012 年の 3 年間に空港上空で離発着時に取得された CME の CO₂ 鉛直濃度分布データとの比較をもとに、TIR バンドの下部・中部対流圏 (736–287 hPa) の CO₂ データの濃度バイアスを評価した。CME データとの比較の結果、下部・中部対流圏の TIR バンドの V1 CO₂ データにはどの季節、どの緯度帯においても 1–1.5% 程度の負バイアスがあることがわかった。負バイアスが最も大きい高度帯は 541–398 hPa である。これは、TIR バンドの観測スペクトルデータにバイアスがあり [Kataoka *et al.*, 2014; Kuze *et al.*, 2016], 特に CO₂ の吸収帯でスペクトルバイアスが顕著であることに起因している。しかしながら、空港上空という限られた地点での比較結果をもとに、季節別・緯度帯別・高度別に濃度バイアス補正値を決定し、全球の TIR バンドの CO₂ データに濃度バイアス補正値を適用した上で、NICAM-TM (Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model – based Transport Model) CO₂ データ [Niwa *et al.*, 2011, 2012] と比較したところ、ほぼすべての季節・緯度帯・高度において両者はよい一致を示した。このことは、限られた地点での濃度バイ

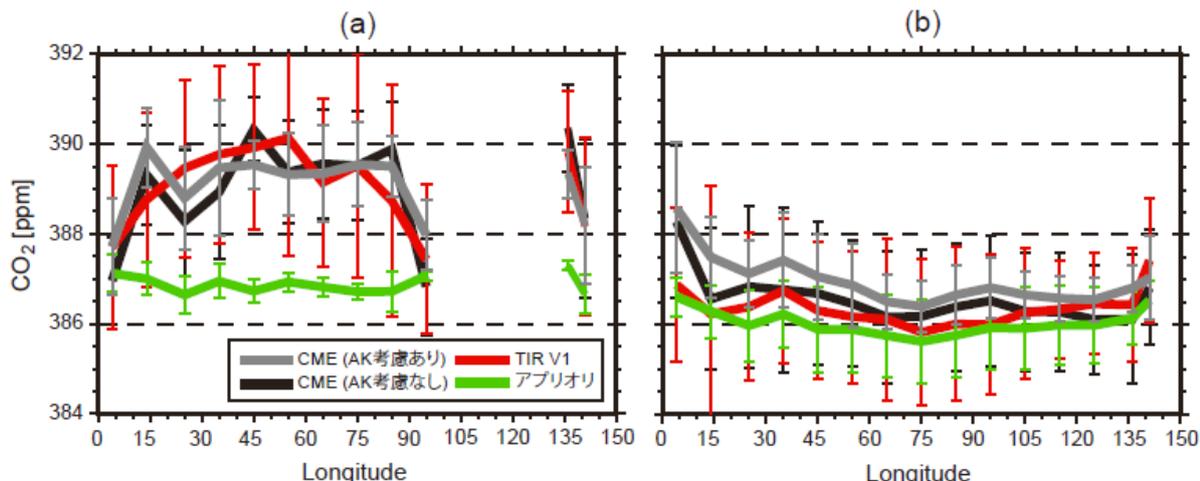


図3 図2と同様、ただし2010年冬季の成田ーヨーロッパ間の比較結果 (Saitoh et al. [2016]の図6(b)及び(c)を一部改変)。それぞれ、(a)上部対流圏、(b)下部成層圏の比較結果を示している。

アス評価であっても全球に適用可能であることを示しており、下部・中部対流圏の TIR バンドの V1 CO₂ データは、濃度バイアス補正を適用すれば、科学的解析に利用できることを意味している。

TANSO-FTS の TIR バンドの V1 CH₄ プロダクトのデータ質については、他衛星搭載センサーの CH₄ プロダクトとの相互比較や地上 FTS の CH₄ データとの比較に基づいて評価されている [Holl et al., 2016; Zou et al., 2016; Olsen et al., 2017]。TANSO-FTS の TIR バンドにおける観測スペクトルの SNR (signal-to-noise ratio) は、CH₄ の吸収帯付近で 50-70 と低いため、TIR バンドによる CH₄ 観測の自由度は低緯度でも 1 程度と低く、特に高緯度では有意な検証解析が難しい。しかしながら、北緯約 74°以北の北極圏で ACE (Atmospheric Chemistry Experiment)-FTS 及び地上 FTS の CH₄ データのそれぞれ 5.2-9.5 km, 5.3-9.7 km の高度範囲の部分カラム量と、対応する TIR バンドの CH₄ データの部分カラム量を比較したところ、両者にはそれぞれ有意な正相関があることがわかったことから、TANSO-FTS の TIR バンドの観測スペクトルには高緯度においても CH₄ 濃度の情報が含まれていることが例証された [Holl et al., 2016]。先に述べた通り、熱赤外波長での

分子吸収を利用した下方視型のセンサーは、一般に地表面と大気各層との温度差が小さくなる高緯度ほど観測が難しくなるが、TANSO-FTS の TIR バンドのように SNR が低くても高緯度の CH₄ の濃度変動の情報が得られる可能性があることが示されたことから、今後、SNR が高い下方視型の熱赤外波長センサーによる高頻度観測データを用いて、高緯度の湿地及び永久凍土から放出される CH₄ の濃度変動を明らかにする研究が進むことも期待される。一方、TIR バンドの CH₄ 観測の自由度が比較的高い中低緯度においては、AIRS と TANSO-FTS の TIR バンドの CH₄ データは、ともに最も CH₄ 濃度に感度がある 600-300 hPa において 1% 以内で一致しており、観測された両者の CH₄ 濃度の季節変動も現実的であった [Zou et al., 2016]。TANSO-FTS の TIR バンドの CH₄ データは、300 hPa より上空で AIRS の CH₄ データより小さい傾向があるが、これは TIR バンドの CH₄ 吸収帯での SNR が低いため CH₄ リターンにおいて相対的にアプリオリへの拘束が強くなったためであると考えられる。Olsen et al. [2017] は、TANSO-FTS の TIR バンドの CH₄ データを、NDACC の 16 の地上 FTS、ACE-FTS、MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric

Sounding) の CH₄ データと全球で比較し、緯度帯ごとに CH₄ データのデータ質を評価した。ACE-FTS, MIPAS はそれぞれ太陽掩蔽法、大気周縁観測法を採用しており、十分な精度で観測ができる高度が上部対流圏・下部成層圏より上であるため、TIR バンドと ACE-FTS 及び MIPAS の CH₄ データの比較から有意な結論を導くことは難しいが、より下層に感度がある NDACC の地上 FTS の CH₄ データと TIR バンドの CH₄ データは、特に低緯度でよい一致を示していることがわかった。両者の比較から、TIR バンドの CH₄ データに顕著な濃度バイアスが見られないことから、Olsen et al. [2017]は、全球で高頻度観測が可能な下方視型センサーである TANSO-FTS の TIR バンドでの CH₄ 観測の重要性を指摘しており、今後は TIR バンドの CH₄ データを利用した大気中の CH₄ の動態に関する研究の進展が期待される[e.g., Ricaud et al., 2014]。

TANSO-FTS の TIR バンドの観測スペクトルには多種の分子の吸収帯が含まれているため、CO₂ や CH₄ 以外の大気成分の濃度の観測が可能である。Ohyama et al. [2012]では、TANSO-FTS の TIR バンドの観測スペクトルからオゾンのカラム量及び対流圏のみのカラム量を導出し、ドブソン計やオゾンゾンデ

による観測と高い精度(相関係数 0.92–0.98)で一致していることを示した。Ohyama et al. [2013]では、TIR バンドの観測スペクトルから水蒸気の鉛直濃度プロファイルの導出を行っている。さらに、TANSO-FTS の TIR バンドの L2 の V1 リトリバルアルゴリズムでは、CH₄ のバイプロダクトとして一酸化二窒素(N₂O)の濃度を導出している。TIR バンドの観測スペクトルの N₂O 吸収帯の SNR は CH₄ 吸収帯の SNR よりさらに低いため、N₂O 濃度の高度分布の導出は難しいが、最も N₂O 濃度に感度がある 300 hPa 付近については N₂O 濃度の変動を捉えることに成功している。衛星データの解析に基づいて、アジア起源の高濃度 CH₄ の空気塊がアジアモンスーン循環によって地中海東岸の上部対流圏に輸送されることが報告されているが[Ricaud et al., 2014], 同様に、インドでの初夏の施肥に起因する高濃度 N₂O の空気塊がアジアモンスーン循環によって輸送され、地中海東岸で夏季に上空の N₂O 濃度が高くなることが、TANSO-FTS の TIR バンドの N₂O 観測から明らかになった(図 4)[Kangah et al., 2017]。

2018 年 10 月 29 日に GOSAT の後継機である GOSAT-2 が打ち上げられた。GOSAT-2 に搭載されている TANSO-FTS-2 の TIR バンド(バンド 4 及

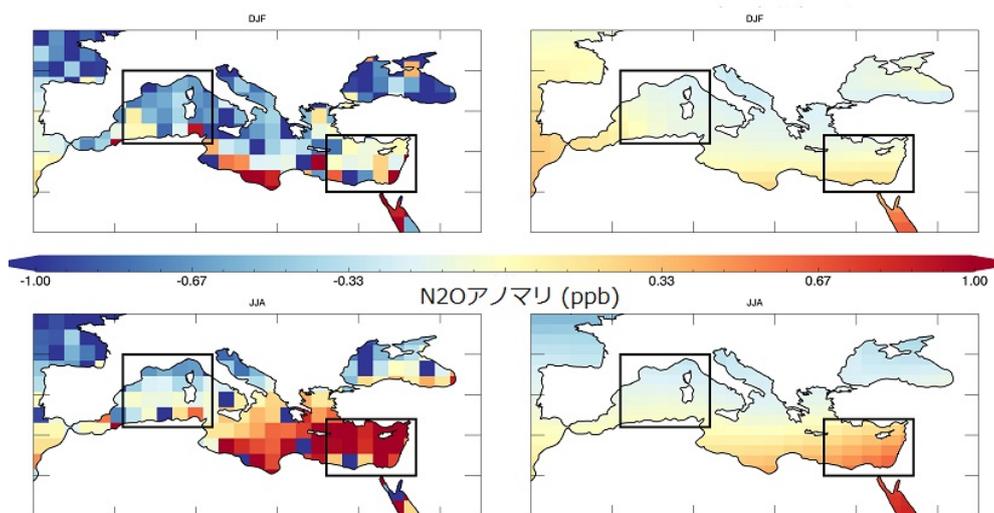


図 4 314 hPa における N₂O 濃度の 2010–2013 年平均からのアノマリ(Kangah et al. [2017]の図 4 を一部改変)。左側が TANSO-FTS の TIR バンドの観測データ、右側が LMDz-OR-INCA のモデルデータ。上側が冬季(12–2 月)、下側が夏季(6–8 月)。

びバンド5)は、打ち上げ前の熱真空試験の結果から、TANSO-FTSと比べて大幅にSNRが向上することがわかっている。TANSO-FTS-2のTIRバンドでは、さらに高精度な大気成分観測が可能であると見込まれるため、TANSO-FTS-2のTIRバンドの観測データを利用した科学的研究が進むことを期待したい。

最後に、本稿執筆にあたり、匿名の査読者から建設的なコメントを頂戴したことに対し、謝意を表したい。

5. 参考文献

- Basu, S. et al. (2013), Global CO₂ fluxes estimated from GOSAT retrievals of total column CO₂, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8695–8717.
- Basu, S. et al. (2014), The seasonal variation of the CO₂ flux over Tropical Asia estimated from GOSAT, CONTRAIL, and IASI, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 1809–1815.
- Boesch, H. et al. (2013), HDO/H₂O ratio retrievals from GOSAT, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 599–612.
- Buchwitz, M., et al. (2005), Atmospheric methane and carbon dioxide from SCIAMACHY satellite data: initial comparison with chemistry and transport models, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 941–962.
- Butz, A., Hasekamp, O. P., Frankenberg, C., Vidot, J., and Aben, I. (2010), CH₄ retrievals from space-based solar backscatter measurements: Performance evaluation against simulated aerosol and cirrus loaded scenes, *J. Geophys. Res.*, 115, doi:10.1029/2010JD0145514.
- Chahine, M., Barnett, C., Olsen, E. T., Chen, L., and Maddy, E. (2005), On the determination of atmospheric minor gases by the method of vanishing partial derivatives with application to CO₂, *Geophys. Res. Lett.*, 32, doi:10.1029/2005GL024165.
- Chevallier, F. et al. (2014), Toward robust and consistent regional CO₂ flux estimates from in situ and spaceborne measurements of atmospheric CO₂, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 1065–1070.
- Cogan, A. J. et al. (2012), Atmospheric carbon dioxide retrieved from the Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT): Comparison with ground-based TCCON observations and GEOS-Chem model calculations, *J. Geophys. Res.*, 117, doi:10.1029/2012JD018087.
- Crevoisier, C. et al. (2009), First year of upper tropospheric integrated content of CO₂ from IASI hyperspectral infrared observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 4797–4810.
- Detmers, R. G. et al. (2015), Anomalous carbon uptake in Australia as seen by GOSAT, *Geophys. Res. Lett.*, 42, 8177–8184.
- Dupuy, E. et al. (2016a), Comparison of XH₂O retrieved from GOSAT short-wavelength infrared spectra with observations from the TCCON network, *Remote Sens.*, 8, doi:10.3390/rs8050414.
- Dupuy, E. et al. (2016b), Correction: Dupuy, E., et al. Comparison of XH₂O retrieved from GOSAT short-wavelength infrared spectra with observations from the TCCON network, *Remote Sens.* 2016, 8, 414, *Remote Sens.*, 8, doi:10.3390/rs8120982.
- Frankenberg, C. et al. (2011), New global observations of the terrestrial carbon cycle from GOSAT: patterns of plant fluorescence with gross primary productivity, *Geophys. Res. Lett.*, 38, doi:10.1029/2011GL048738.
- Gambacorta, A. and Barnett, C. D. (2013), Methodology and information content of the NOAA NESIDS operational channel selection for the Cross-Track Infrared Sounder (CrIS), *IEEE T. Geosci. Remote*, 51, 3207–3216.
- Holl, G. et al. (2016), Methane cross-validation between three Fourier transform spectrometers: SCISAT ACE-FTS, GOSAT TANSO-FTS, and ground-based FTS measurements in the Canadian high Arctic, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 1961–1980.
- Houwelling, S. et al. (2015), An intercomparison of inverse models for estimating sources and sinks of CO₂ using GOSAT measurements, *J. Geophys. Res.*, 120,

- 5253–5266.
- Hu, H. et al. (2016), The operational methane retrieval algorithm for TROPOMI, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 5423–5440.
- Inoue, M. et al. (2013), Validation of XCO₂ derived from SWIR spectra of GOSAT TANSO-FTS with aircraft measurement data, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 9771–9788.
- Inoue, M. et al. (2014), Validation of XCH₄ derived from SWIR spectra of GOSAT TANSO-FTS with aircraft measurement data, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2987–3005.
- Joiner, J. et al. (2011), First observations of global and seasonal terrestrial chlorophyll fluorescence from space, *Biogeosci.*, 8, 637–651.
- Kangah, Y. et al. (2017), Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions, *J. Geophys. Res.*, 122, 4746–4759.
- Kataoka, F. et al. (2014), TIR spectral radiance calibration of the GOSAT satellite borne TANSO-FTS with the aircraft-based S-HIS and the ground-based S-AERI at the Railroad Valley desert playa, *IEEE T. Geosci. Remote*, 52, 89–105.
- Kondo, M., Saeki, T., Takagi, H., Ichii, K., and Ishijima, K. (2016), The effect of GOSAT observations on estimates of net CO₂ flux in semi-arid regions of the Southern Hemisphere, *SOLA*, 12, 181–186.
- Kulawik, S. S. et al. (2010), Characterization of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) CO₂ for carbon cycle science, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5601–5623.
- Kuze, A., Suto, H., Nakajima, M., and Hamazaki, T. (2009), Thermal and near infrared sensor for carbon observation Fourier-transform spectrometer on the Greenhouse Gases Observing Satellite for greenhouse gases monitoring, *Appl. Optics*, 48, 6716–6733.
- Kuze, A. et al. (2016), Update on GOSAT TANSO-FTS performance, operations, and data products after more than 6 years in space, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 2445–2461.
- Machida, T. et al. (2008), Worldwide measurements of atmospheric CO₂ and other trace gas species using commercial airlines, *J. Atmos. Ocean Tech.*, 25, 1744–1754.
- Maksyutov, S. et al. (2013), Regional CO₂ flux estimates for 2009–2010 based on GOSAT and ground-based CO₂ observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 9351–9373.
- Niwa, Y., Tomita, H., Satoh, M., and Imasu, R., (2011), A three-dimensional icosahedral grid advection scheme preserving monotonicity and consistency with continuity for atmospheric tracer transport, *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 89, 255–268.
- Niwa, Y. et al. (2012), Imposing strong constraints on tropical terrestrial CO₂ fluxes using passenger aircraft based measurements, *J. Geophys. Res.*, 117, doi:10.1029/2012JD017474.
- O'Dell, C. W. et al. (2012), The ACOS CO₂ retrieval algorithm – Part 1: Description and validation against synthetic observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 99–121.
- Ohyama, H., Kawakami, S., Shiomi, K., and Miyagawa, K. (2012), Retrievals of Total and Tropospheric Ozone From GOSAT Thermal Infrared Spectral Radiances, *IEEE T. Geosci. Remote*, 50, 1770–1784.
- Ohyama, H., Kawakami, S., Shiomi, K., Morino, I., and Uchino, O. (2013), Atmospheric Temperature and Water Vapor Retrievals from GOSAT Thermal Infrared Spectra and Initial Validation with Coincident Radiosonde Measurements, *SOLA*, 9, 143–147.
- Olsen, K. et al. (2017), Comparison of the GOSAT TANSO-FTS TIR CH₄ volume mixing ratio vertical profiles with those measured by ACE-FTS, ESA MIPAS, IMK-IAA MIPAS, and 16 NDACC stations, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 3697–3718.
- Oshchepkov, S., Bril, A., and Yokota, T. (2008), PPDF-based method to account for atmospheric light scattering in observations of carbon dioxide from space, *J. Geophys. Res.*, 113, doi:10.1029/2008JD010061.
- Parker, R. et al. (2011), Methane observations from the

- Greenhouse Gases Observing SATellite: Comparison to ground-based TCCON data and model calculations, *Geophys. Res. Lett.*, 38, doi:10.1029/2011GL047871.
- Razavi, A. et al. (2009), Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7889–7899.
- Ricaud, P. et al. (2014), Variability of tropospheric methane above the Mediterranean Basin inferred from satellite and model data, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 11427–11446.
- Rodgers, C. D. (2000), Inverse method for atmospheric sounding, *World Scientific Publishing*.
- Rodgers, C. D. and Connor, B. J. (2003), Intercomparison of remote sounding instruments, *J. Geophys. Res.*, 108, doi: 10.1029/2002JD002299.
- Saeki, T. et al. (2013a), Inverse Modeling of CO₂ Fluxes Using GOSAT Data and Multi-Year Ground-Based Observations, *SOLA*, 9, 45–50.
- Saeki, T., Saito, R., Belikov, D., and Maksyutov, S. (2013b), Global high-resolution simulations of CO₂ and CH₄ using a NIES transport model to produce a priori concentrations for use in satellite data retrievals, *Geosci. Model Dev.*, 6, 81–100.
- Saitoh, N., Imasu, R., Ota, Y., and Niwa, Y. (2009), CO₂ retrieval algorithm for the thermal infrared spectra of the Greenhouse Gases Observing Satellite: potential of retrieving CO₂ vertical profile from high-resolution FTS sensor, *J. Geophys. Res.*, 114, doi:10.1029/2007JD011500.
- Saitoh, N. et al. (2016), Algorithm update of GOSAT/TANSO-FTS TIR CO₂ product (Version 1) and validation of the UTLS CO₂ data using CONTRAIL measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 2119–2134.
- Saitoh, N. et al. (2017), Bias assessment of lower and middle tropospheric CO₂ concentrations of GOSAT/TANSO-FTS TIR version 1 product, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 3877–3892.
- Takagi, H. et al. (2014), Influence of differences in current GOSAT XCO₂ retrievals on surface flux estimation, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 2598–2605.
- Wofsy, S. C. (2011), HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO): fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols, *Phil. Trans. Roy. Soc.*, 369, 2073–2086.
- Worden, J. et al. (2012), Profiles of CH₄, HDO, H₂O, and N₂O with improved lower tropospheric vertical resolution from Aura TES radiances, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 397–411.
- Wunch, D. et al. (2011), The Total Carbon Column Observing Network, *Phil. Trans. R. Soc.*, 369, 2087–2112.
- Wunch, D. et al. (2017), Comparisons of the Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) XCO₂ measurements with TCCON, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 2209–2238.
- Xiong, X. et al. (2008), Characterization and validation of methane products from the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS), *J. Geophys. Res.*, 113, doi:10.1029/2007JG000500.
- Yang, D. et al. (2018), First global carbon dioxide maps produced from TanSat measurements, *Adv. Atmos. Sci.*, 35, 621–623.
- Yoshida, Y. et al. (2011), Retrieval algorithm for CO₂ and CH₄ column abundances from short-wavelength infrared spectral observations by the Greenhouse gases observing satellite, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 717–734.
- Yoshida, Y. et al. (2013), Improvement of the retrieval algorithm for GOSAT SWIR XCO₂ and XCH₄ and their validation using TCCON data, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 1533–1547.
- Zhou, M. et al. (2016), Validation of TANSO-FTS/GOSAT XCO₂ and XCH₄ glint mode retrievals using TCCON data from near-ocean sites, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 1415–1430.
- Zou, M. et al. (2016), Satellite observation of atmospheric methane: intercomparison between AIRS and TANSO-FTS retrievals, *Atmos. Meas. Tech.*, 9, 3567–3576.

原稿受領日: 2018年11月28日

掲載受理日: 2018年12月14日

著者所属

1. 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター

*** 責任著者**

Naoko Saitoh <nsaitoh@faculty.chiba-u.jp>

ベルギー滞在記

～MAX-DOAS 法による大気微量成分観測の研究～

Trace gas measurements by ground-based MAX-DOAS remote-sensing technique: international joint research activity in Belgium

高島 久洋^{1*}

1. はじめに

私は 2008 年から海洋研究開発機構にて、入江仁士博士 (現, 千葉大学), 金谷有剛博士とともに 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) と呼ばれるリモートセンシング観測手法により, 地上付近の大気微量ガス・エアロゾルの観測を行ってきた [e.g. Kanaya et al., 2014; Irie et al., 2011; Takashima et al., 2009; Takashima et al., 2015]。昨年 2018 年 2 月から 9 月まで科学研究費の国際共同研究加速基金をいただき, ベルギーの首都ブリュッセルにあるベルギー宇宙航空学協会 (The Royal Belgian Institute for Space Aeronomy (BIRA-IASB)) にて MAX-DOAS 法に関する研究をする機会を得た。本稿では MAX-DOAS 法についての研究とベルギーでの滞在生活について記す。

2. MAX-DOAS 法による大気微量成分の分光観測

MAX-DOAS 法は, 紫外-可視域の太陽散乱光を複数の仰角で観測し, その光の到達経路や高度層ごとの光路長の違いからエアロゾルや様々な微量ガス成分の鉛直分布 (および対流圏積算量)

を連続的に算出するリモートセンシング観測手法である (図 1)。酸素分子の 2 量体 $O_4(O_2-O_2)$ は絶対濃度の高度分布がわかっており, その吸収度を測定することで, 平均的な光路長が分かるので, エアロゾルの消散を導出できる。またこの光路長の情報とガス成分の吸収からガス成分濃度を導出する。複数の低い仰角で観測を行うことで, それらの鉛直分布を得ることもできる観測手法である。参照スペクトル (天頂方向) と低い仰角のスペクトルの差分の吸収を利用するため, 装置のキャリブレーションの必要がなく, また複数の成分を一台の簡易な観測装置で同時に連続観測できる手法である。観測可能な大気微量ガス成分は, 二酸化窒素 (NO_2), 水蒸気 (H_2O), ホルムアルデヒド ($HCHO$), 二酸化硫黄 (SO_2), グリオキサール ($CHOCHO$) に加え, 一酸化臭素 (BrO), 一酸化ヨウ素 (IO) などハロゲン物質など多種にわたり, 様々な観測に用いられている。

DOAS 法は 1970 年代に Platt 博士らによって生み出された観測手法であり (ほぼ私の年齢と同じ約 40 年の歴史がある), プローブ光に光源からの直達光を用いるアクティブ計測のほか, 散乱光等を用いるパッシブ計測がある。後者の方式は, 地上から天頂方向の観測による成層圏の組成観測

や、人工衛星観測などに利用されてきた。

複数の仰角の観測に発展させた MAX-DOAS 法
のアイデアは 1990 年代後半に欧州の Richter 博
士, Wagner 博士, Hönninger 博士, Platt 博士など
の研究グループ, および Wittrock 博士, Richter 博
士, Burrows 博士などのブレーメン大学のグルー
プにより生み出された [Wittrock *et al.*, 2004;
Hönninger *et al.*, 2004]。地上観測及び人工衛星デー
タの検証, 実験室内での吸収断面積の測定 of 3 つ
の相補的な研究と合わせ, さらに化学輸送モデル
を使うことで全球規模での大気組成の変動と変
動要因の解明に関する研究が発展してきた。日本
国内では, 海洋研究開発機構の研究グループがア
ジアやロシアにて MAX-DOAS ネットワーク観測
網

(<http://ebscpa.jamstec.go.jp/maxdoashp/index.html>)

を構築し, MAX-DOAS 法による観測をリードし
てきた [Kanaya *et al.*, 2014]。私もそのネットワー
クの展開, 維持に関わってきた。

MAX-DOAS 法は, 船舶, 航空機, 自動車, 自
転車など様々なプラットフォームに搭載して観
測が可能である。海洋研究開発機構の研究グルー
プでも海洋上でのエアロゾル・ガス成分の観測を
行うため, 海洋研究開発機構の研究船 (かいよう,
みらい, かいめい) に開発した船舶搭載型装置を
搭載して 2008 年より海洋上の組成観測を行って
いる [Takashima *et al.*, 2012; 高島他, 2016]。MAX-
DOAS 法では, 太陽散乱光を低い仰角で精度良く
測定する必要があり, そのため高い精度でテレス
コープの観測仰角を制御する必要がある。船上観
測を開始した当初は, 能動型ジンバルにより船上
に陸上と同じ水平環境を構築し, 陸上観測用の観
測装置を搭載して観測を行ってきた。最近では小
型化のため受光プリズム部で観測仰角を制御す
る際に, 船の揺れの分を合わせて補正制御する機
構を開発して観測を行っている [高島他, 2016]。

欧州の研究グループは MAX-DOAS 法の先駆け

として国際的な研究をリードしており, 今回ベル
ギー-BIRA にて M. Rozendael 博士のグループと
研究を進めた。滞在中は特に海洋上の DOAS 分光
法によるハロゲン物質濃度の定量化を目指し共
同研究を行った。海洋上の一酸化ヨウ素 (IO) や
一酸化臭素 (BrO) は濃度が低く, 検出が難しいた
め, 未だ十分な観測がなされていない。今回の滞
在で, これまで船上観測をしてきた北極から南半
球までの観測データを用いて, 熱帯海洋上の清浄
大気中で高い IO 濃度が示唆される結果を得た
[Kato, Takashima *et al.*, IGAC, 2018; AGU, 2018]。こ
の結果を受け, 今後はハロゲン類の対流圏化学に
おける役割についての研究を発展させていく計
画である。

MAX-DOAS 法によるリトリーバルは大きく分
けると 2 段階に分かれている。まず DSCD
(Differential Slant Column Density; 単位は単位面積
当たりの分子数) という参照角と低仰角との差分
の SCD (Slant Column Density) を DOAS 法 [Platt,
1994] により求める。次に放射伝達モデルを用い
て濃度の鉛直分布や鉛直積算量を求める。DOAS
法では, 解析する波長帯において, それぞれの成
分の吸収は吸収断面積と DSCD をかけたものにな
る。そして, その波長帯で吸収される様々な成分
の吸収を足し合わせたものが全体の吸収になる
ため, 実際に観測したスペクトルから各成分の吸
収を分離推定する計算を行う。吸収断面積は実験
室の観測等で与えられているので, DSCD が求ま
る。この DOAS 法による DSCD 導出時には, 様々
な細かい工夫が影響を与えることがしばしばあ
る。しかしながらこの工夫は通常の学術論文には
詳しくは書かれていない場合や, 問題点があつて
も結論が出ていないこともある。そのためノウハ
ウが蓄積されている欧州で研究できたことで, そ
の工夫等を直接伝授していただけたことはとて
も有意義であった。

また DOAS 法による解析を行う際, QDOAS

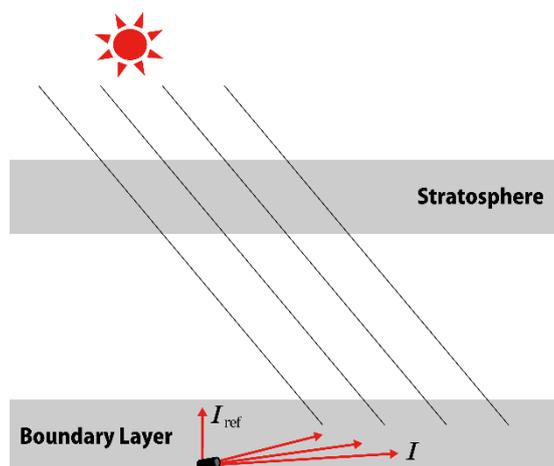


図 1. MAX-DOAS 法は、複数の低い仰角で太陽散乱光を観測し、その光路長の違いから対流圏下層のエアロゾル・ガス成分の鉛直分布/対流圏積算量を連続的に算出するリモートセンシング手法。絶対濃度の高度分布がわかっている O_4 の吸収度の測定から、平均的な光路長が分かり、エアロゾルの消散の情報を導出する。またこの光路長の情報とガス成分の吸収からガス成分濃度を導出する。さらに複数の低い仰角の測定から鉛直分布の情報を得ることができる (高島他, 2016)。

[Fayt et al., 2012] というソフトウェアを使う研究者が多く、DOAS 業界の標準となっている。QDOAS は DOAS 法で解析する場合の様々なパラメータの変更が容易であり、またツールが多数あるとともに、GUI で画面を確認しながらパラメータの調整が可能であるため、それぞれのパラメータの変化が結果にどのように影響するかを調べることが容易にできる。QDOAS は BIRA で開発されており、開発者・技術者との議論が日常的に行えたので、使い方やリトリバル時のノウハウを学ぶことができた。

なお放射伝達モデルについては、BIRA で使われているモデルと海洋研究開発機構で開発してきた手法と比較することができた。さらに MAX-DOAS 法による観測データにより人工衛星観測データ (Tropomi) の検証や、簡易センサーを使った実験・観測なども行い、自身の今後の観測および研究に役立たせたいと考えている。

3. ベルギーでの生活

滞在した BIRA の DOAS 研究グループに所属する研究者、技術者の人数は合計で 18 名程度であった。欧米では一般的と思うが、仕事が細分化さ

れており、それぞれの役割分担がはっきりしている。研究を指揮するリーダー、そして研究者、技術者 (システムエンジニア、プログラマー、装置製作者) がそれぞれの仕事をこなしている。それとは別に事務全般のスタッフがいるほか、研究所のコミュニケーションを円滑にするためのスタッフもいて、充実している。欧州の研究所でたびたび目にするところがあるが、コーヒーや紅茶などを無料で飲める場所も用意されている。土日祝日はしっかり休みを取り (夏季休暇もしっかり休む)、家族と過ごす時間を大切にすることを知ってはいたが、実際にその場にいると本当によく休みを取っているという印象だった (しかし仕事は回っている)。ポストドク雇用の問題は、日本では労働の法律が変わり、安定化が図られている場合もあるように思うが、BIRA では多くの人は任期付きのようで状況はあまりよくない印象を受けた。

ベルギーの国土面積は約 300 万 km^2 で九州と同程度、人口も同程度 (九州は 420 万 km^2 , 1300 万人)、首都ブリュッセルの人口は福岡程度のものである (Wikipedia)。国土の南側がフランス語圏、北側がオランダ語圏で、首都のブリュッセルは両方



写真 1. ベルギー南東部の Alle/Semois で息子と。研究者の別荘に滞在し皆でハイキングにいった。

の言語を扱う。平等の観点から、たとえばある公共交通機関の停留所の表記が、フランス語/オランダ語の順であれば、その隣の停留所ではオランダ語/フランス語の順で表記される。訪問者にとって 2 つの表記があり順が変わることはとても分かりにくい。研究所内の雇用もフランス語圏とオランダ語圏の人が平等になる仕組みがある。研究所に流れているメールは、フランス語・オランダ語が併記される (重要なことは英語でも併記される)。研究所のイベント時の所長の挨拶や説明は、3 か国語になるので、時間は 3 倍かかるのは印象的だった。ただし研究の打ち合わせやセミナーは英語で行われることが多かった。

7-8 月は学校が休みになるので、子どもはスタッシュとよばれる学校 (サマースクールのようなもの) でさまざまなことを経験するのが一般的のようである。その間は研究所内に保育所が開設され、BIRA では 1 日 3 ユーロで見てもらうことができ、長男もお世話になった (ただし言語はフランス語またはオランダ語である)。5 月から週 1 回程度所内で行われている昼休みのサッカーにも参加し、他の研究グループの人たちとも交流をはかることができた。夏季には、ある研究者の別荘

に招待してもらい交流する貴重な経験もさせてもらった (写真 1)。

前述のようにベルギーの国土面積小さく、また最も高度が高い場所が標高 700 m 程度だそうで、ほぼ平坦であり、2 時間もあればブリュッセルから国内のほとんどの場所に行くことができる。ロンドン、パリ、アムステルダム、ケルンなどのヨーロッパの主要都市も高速鉄道を使って 2 時間以内でアクセスできる。休みの日を利用してベルギー国内外の様々な場所へ出かけ、欧州の食 (特にビールとチョコレート) や文化・風土に触れ、日本では経験することができない貴重な体験をすることができた。

謝辞

ベルギーでの研究には科学研究費国際共同研究加速基金によって行われた。MAX-DOAS 法による観測は入江仁士博士、金谷有剛博士に大変お世話になった。ベルギー滞在中は Michel Van Roozendael 博士、Martine de Mazière 博士、Hugues Brenot 博士、Caroline Fayt 氏、Martina Friedrich 博士、François endrick 博士、Christian Hermans 博士、Alexis Merlaud 博士、Gaia Pinardi 氏、Frederik Tack 博士、Nicolas Theys 博士、Jeroen van Gent 博士、Huan Yu 博士に大変お世

話になった。不在中の大学関係の仕事を引き受けてくださった福岡大学の先生方にも大変お世話になった。最後に、5月の次男の出産のタイミングで国外長期滞在を認めてくれた妻に感謝したい。

4. 参考文献

- Platt, U. (1994), Differential optical absorption spectroscopy (DOAS), *Air monitoring by spectroscopic technique*, 127, 27-84.
- Fayt, C. and M. Van Roozendael: QDOAS Software User Manual Version 2.00, <http://uv-vis.aeronomie.be/software/QDOAS/>, last access: April 2012.
- Hönninger, G., C. von Friedeburg, and U. Platt (2004), Multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS), *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 231-254, <https://doi.org/10.5194/acp-4-231-2004>.
- Irie, H., H. Takashima, Y. Kanay, et al. (2011), Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations, *Atmospheric Measurement Techniques (AMT)*, 4, 1027-1044.
- Kanaya, Y., H. Irie, H. Takashima, et al. (2014), Long-term MAX-DOAS network observations of NO₂ in Russia and Asia (MADRAS) during 2007-2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 7909-7927, doi:10.5194/acp-14-7909-2014.
- Takashima, H., H. Irie, Y. Kanaya, A. Shimizu, K. Aoki, H. Akimoto (2009), Atmospheric aerosol variations at Okinawa Island in Japan observed by MAX-DOAS using a new cloud-screening method. *J. Geophys. Res.* 114, D18213.
- Takashima, H., H. Irie, Y. Kanaya, F. Syamsudin (2012), NO₂ observations over the western Pacific and Indian Ocean by MAX-DOAS on Kaiyo, a Japanese research vessel. *Atmos. Meas. Tech.* 5, 2351-2360.
- Takashima, H., Kanaya, H., Irie (2015), Spatiotemporal inhomogeneity in NO₂ over Fukuoka observed by ground-based MAX-DOAS, *Atmospheric Environment*, 100, 117-123, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.10.057.
- Wittrock, F., Oetjen, H., Richter, A., Fietkau, S., Medeke, T., Rozanov, A., and Burrows, J. P. (2004), MAX-DOAS measurements of atmospheric trace gases in Ny-Ålesund - Radiative transfer studies and their application, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 955-966, <https://doi.org/10.5194/acp-4-955-2004>.
- 高島 久洋, 金谷 有剛, 竹谷 文一 (2016), MAX-DOAS 法による船上エアロゾル・ガス観測装置の小型化, *JAMSTEC Rep. Res. Dev.*, 23, 34-40.

原稿受領日: 2018年12月3日

掲載受理日: 2018年12月26日

著者所属:

1. 福岡大学 理学部

* 責任著者:

Hisahiro Takashima <hisahiro@fukuoka-u.ac.jp>

粒子状物質を介した大気海洋間の物質循環過程

Biogeochemical cycle between atmosphere and ocean via particulate matters

岩本洋子^{1*}

大気と海洋は相互に作用し合いながら地球の気候を制御しています。海洋生物圏は、大気海洋相互作用というパズルの中で重要なピースの一つです。海洋生物圏は、大気から海洋に沈着する粒子に応答し、同時に、海洋から大気に放出される粒子の組成を変化させます。本稿では粒子状物質を介した大気海洋間の生物地球化学的な物質循環過程について、筆者のこれまでの研究を交えながら紹介します。

1. はじめに

まず初めに、この度の日本大気化学会奨励賞を頂いたことに対し、推薦して下さった先生、これまで在籍した研究室の先生方とメンバーの皆様、お世話になった共同研究者の方々に感謝します。これまでの研究生活を振り返って自信を持って言えることは、筆者は周囲の方々に大変恵まれてきたということです。今回の受賞は、「もっと研究しなさいと励まされている」のだと理解しています。この励ましを真摯に受け止め、未発表の研究成果を一報でも多くの論文として公表し、大気化学分野に貢献したいと思えます。

2. 海はどのように二酸化炭素を吸収するか -植物プランクトンが駆動する生物ポンプ-

海洋は、大気中に増加しつつある二酸化炭素(CO₂)を吸収し、急激な気候変化を緩和する能力を持つといわれています[野崎, 1994]。CO₂吸収源としての海洋の働きは、物理的な海水の循環と生物地球化学的な物質循環によって支えられています。ここでは、「生物ポンプ」と呼ばれる生物過程による表層から深層への炭素の輸送経路に着目します。海洋の植

物プランクトンは、光合成により CO₂ を有機炭素として固定します。固定された炭素の一部は深海に輸送され、バクテリアなどによる分解を経て再び無機炭素として海水中に放出されます。深層の無機炭素が、物理的な海水循環により再び表層に戻り大気に放出されるまでには数十年から数百年の時間がかかると言われています。もし、海洋表層の植物プランクトンが死に絶えれば、生物ポンプは止まり、深層の無機炭素は徐々に大気に放出されます。その結果、大気中 CO₂ 濃度の上昇は、これまで以上に加速すると考えられます。植物プランクトンは生物ポンプの主役として、地球温暖化の抑制に大きく貢献していると考えられます。

海洋がどの程度の CO₂ を吸収できるかを見積もるうえで、植物プランクトンの消長を支える必須元素の供給量を把握することが重要です。陸上植物と同様に、窒素やリンは海洋の植物プランクトンにとって必須元素です。通常、植物プランクトンは必須元素を一定の比率で取り込むため、海洋表層に溶けている窒素またはリンを使い尽くすまで増殖します。しかし、20世紀前半に行われた海洋調査から、表層に窒素が

余っているにも関わらず、植物プランクトンの現存量が低い海域があることがわかりました。これらの海域はHNLC (High Nutrient Low Chlorophyll) 海域と呼ばれ、北太平洋亜寒帯域、東太平洋赤道域、南極海などが相当します。1980年代に入り、コンタミネーションの少ない試料採取・分析方法が確立されると、HNLC 海域で植物プランクトンの増殖を抑制しているものが鉄であることが突き止められました[e.g., Martin and Fitzwater, 1988]。鉄は、様々な代謝過程に関わるため、植物プランクトンにとって最も多量に必要とされる遷移金属元素です。しかし、海水中で主に難溶性の水酸化物として存在するため、植物プランクトンが生育する海洋表層での溶存鉄濃度は極めて低く、鉄の枯渇によってプランクトンの増殖が抑制されます。HNLC 海域に人為的に鉄を散布することでプランクトンの増殖が促進されることは実験的に確かめられました[e.g., Boyd et al., 2007]。それでは、海洋に鉄を供給する自然現象にはどのようなものがあるでしょうか。

3. 海に落ちた風送ダストを測る

自然現象としての海洋表層への鉄供給には、河川を経由したものと大気を経由したものとがあります。河川から供給される物質のほとんどは沿岸域で底質に除去されるため、外洋域では特に大気を経由した鉄供給が重要です。大気中には鉄を含む微小な粒子(エアロゾル)が存在し、黄砂・火山灰などの鉱物ダストや燃焼起源の鉄粒子などが相当します。これらの鉄含有エアロゾルが外洋上に風送されると、いずれは重力沈降や降水によって海洋表層に沈着します。

筆者が大学院生であった当時、外洋域における風送ダスト沈着に関する報告は多くありましたが、主に大気エアロゾル観測とセジメントトラップ(海洋中を沈降する粒子を捕集する装置)実験に基づくものでした。植物プランクトンの生育する海洋表層に懸濁している風送ダストについて広範囲に調査した例は1970年代の国際的な大洋横断地球化学研究プロジェクト

GEOSECS (Geochemical Ocean Sections Study) で行われたものに限られていました [e.g., Krishnaswami and Sarin, 1976]。そこで、表層海水を濾した濾紙上にある懸濁粒子を個別に分析する手法を確立し [Iwamoto et al., 2009]、風送ダスト起源と考えられるアルミノケイ酸塩鉱物粒子の個数濃度や粒径を把握することにしました。

なるべく広範囲の試料を取得したかったため、大学院時代は多くの長期航海に参加させていただきました。初めての研究航海であった学術研究船白鳳丸 KH-04-3 航海では、北太平洋亜寒帯域で鉄散布実験 (SEEDS II) が行われました [Tsuda et al., 2007]。自身の研究人生の早い時期に、海に鉄を散布し植物プランクトンの応答やそれに伴う大気成分の変化を追うという壮大なプロジェクトを目の当たりにできたことは幸運というより他ありません。その後も白鳳丸や海洋地球観測船みらいの航海を通して、北太平洋を中心にさまざまな海域で表層懸濁粒子を集めました。それらを分析した結果、アジア大陸からの風送ダストの影響の小さい夏季であっても、北太平洋外洋域の表層には、アルミノケイ酸塩鉱物粒子が個数にして全体の1割弱の割合で存在し、その粒径分布は風送ダストと類似することがわかりました [Iwamoto and Uematsu, 2014]。

実際に黄砂イベントがあったとき、風送ダストの海洋沈着はどのくらいのインパクトを持つのか、というのは是非とも得たい知見でした。2007年に実施された学術研究船淡青丸(2013年1月末退役)KT-07-7航海でその念願を果たすことができました。BLOCKS (BLOOm Caused by Kosa Study) と名付けられた航海で、釧路沖で黄砂イベントを捉えることができました。飛来した黄砂が、海霧発生時に霧粒に取り込まれて大気から一気に除去される様子はエアロゾル計数装置によってリアルタイムで観測されました。その前後で表層海水中のアルミノケイ酸塩鉱物粒子の個数濃度はおよそ倍に増えていました。また、アルミノケイ酸塩鉱物粒子の鉛直濃度分布の比較から、黄砂イベン

ト 1 回あたりのダストフラックスを見積もることができました。さらに、1 回の黄砂イベントによる海洋表層への生物利用可能な鉄の供給は、植物プランクトンの増殖を促進させるのに十分な量であり、北部北太平洋の炭素吸収に寄与することがわかりました[Iwamoto et al., 2011]。

4. 植物プランクトンが気候を変える？

植物プランクトンが増殖すると、光合成や呼吸による大気海洋間の気体交換以外の過程で、大気質に影響を与える可能性があります。Charlson et al. [1987]は、気候変動と植物プランクトン起源気体であるジメチルスルフィド(dimethyl sulfide; DMS)との関係を CLAW 仮説として提唱しました。大気に放出された DMS は酸化されて硫酸エアロゾルになり、雲凝結核として働きます。雲形成によるアルベドの変化は気温の変化をもたらす、海洋生態系を変え、DMS の生成に影響を与えます。この海洋生物圏が持つ地球温暖化に対する負のフィードバックが CLAW 仮説のシナリオです。CLAW 仮説の真否は未解決ですが、DMS のフラックスから推算される硫酸エアロゾルだけでは海洋大気中の雲凝結核数濃度を説明できないという知見もあります。

2000 年代以降、海洋大気中の雲凝結核の供給源として、微小な海塩粒子や海洋起源有機エアロゾルの役割が注目を集めています。海洋表層には、生物活動によって生成される有機物が存在します。これらの有機物は海水面の気泡の破裂によってエアロゾルとなり大気へ輸送されます。特に植物プランクトンが増殖する時季に、海水起源エアロゾルに含まれる有機物の割合が高いことが報告されています[e.g., O'Dowd et al. 2004]。大学院を修了した筆者は名古屋大学に移り、ポスドク研究員として気泡の破裂によって生成する海水起源のエアロゾル(Bubble Bursting Aerosol; BBA)に着目し研究を開始しました。海に浮かべる BBA 生成装置を作成したり、生物の寄与を調べるために植物プランクトン培養実験を取り入

れるなど、海洋生物圏と BBA の物理・化学的特徴との関連を新しい手法で調査しました。また、BBA に関して先駆的な研究を行っていたイタリア学術会議大気気候科学研究所(ISAC-CNR)の Maria Cristine Facchini 博士らの研究室に半年間滞在し、有機物種組成の分析手法を学びました。研究成果は現在まとめている最中ですが、名古屋大学で身につけた大気エアロゾルに関する観測・計測技術や知識は筆者にとって貴重な財産のひとつです。

2012 年 4 月からの 2 年間は金沢大学環日本海域環境センターでポスドク研究員を務めました。能登半島の先端、小学校の廃校校舎の 2 階にある能登スーパーサイト(Noto Ground Based Research Observatory; NOTOGRO)において、大気エアロゾルの雲凝結核能と化学組成のオンライン通年観測システムの構築に関わり、エアロゾルに含まれる有機物の割合が高いときに雲粒の成長が遅くなることを観測から明らかにしました[Iwamoto et al., 2016]。NOTOGRO サイトでは現在も雲凝結核の観測が継続されており、アジア域では稀少な雲凝結核観測の長期観測サイトとして国際的に認知されています[Schmale et al., 2017; 2018]。

瀬戸内海に面した街で生まれ育ち、大学進学後は東京や名古屋で過ごした筆者にとって、日本海側の天気はとて新鮮でした。日本海の冬の風物詩に「波の花」があります。これは、海洋生物起源の有機物が強い風や波にあおられてできる泡状物質のことです。BBA を研究対象としたとき、大気海洋間に存在するマイクロレイヤーと呼ばれる薄膜の存在が気になっていました。マイクロレイヤーには界面活性の有機物が濃縮し、下層の海水と比べ粒子や微生物が豊富に含まれます。BBA にはマイクロレイヤーに濃集する物質が優先的に含まれると考えられましたが、化学分析に十分な量のマイクロレイヤー試料を集めるには特別な装置が必要です。それに比べ、同じ海洋起源の海面活性物質の塊である「波の花」は容易に集めることができました。試行的に「波の花」の化学

分析をしたところ、下層の海水と比べ 100-300 倍もの有機物を濃集していることがわかりました。この「波の花」研究をきっかけに、現在は海洋微生物分野の研究者の主導するプロジェクトに参画し、マイクロレイヤーでの BBA 形成過程と大気組成への影響について研究を進めています。

5. おわりに

5 年間のポスドクを経験した後に助教として着任した東京理科大学では、山岳大気や都市大気の観測に関わりました。都市大気の PM_{2.5} 観測では、これまで筆者の持っていた地球科学的視点ではなく、環境政策を見据えた新鮮な視点で観測データを記述することを学びました[岩本ら, 2018]。2017 年からは現職の広島大学に異動し、キャンパスや練習船豊潮丸を利用した大気観測に新たに着手しています。また、数年前から学生時代にお世話になった大型研究船に乗船し外洋域で大気観測をする機会に再び恵まれています。この文章を執筆している今まさに、学術研究船白鳳丸で東インド洋を調査し、ベンガル湾の大気の想像以上の汚染に驚いているところです。

大学院の指導教員であった植松光夫先生は「現場を見なさい」が口癖の一つでした。野外観測で得た現場のデータは、二度と同じものを取ることができない独自性の高いものである一方で、再現することは困難です。それ故に、現場観測から簡潔で普遍的な事象を見出すことは挑戦的で不可能に近いとすら思います。それでも、現場を見ること、地理的・時間的に異なるデータを蓄積することは、将来の地球環境をより良く理解し、その対策を打つうえで意味があることだと信じています。

6. 参考文献

Boyd, P. W., et al., (2007), Mesoscale Iron Enrichment Experiments 1993-2005: Synthesis and Future Directions, *Science*, 315, 612-617, doi: 10.1126/science.1131669.

Charlson, R. J., J. E. Lovelock, M. O. Andreae, and S. G.

Warren (1987), Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate, *Nature*, 326, 655-661, <https://doi.org/10.1038/326655a0>.

Krishnaswami, S. and M.M.Sarin (1976), Atlantic surface particulates: Composition, settling rates and dissolution in the deep sea, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 32, 430-440, [https://doi.org/10.1016/0012-821X\(76\)90083-2](https://doi.org/10.1016/0012-821X(76)90083-2).

Iwamoto, Y., Y. Narita, A. Tsuda. and M. Uematsu (2009), Single particle analysis of suspended particles during SEEDS II iron fertilization experiment, *Mar. Chem.*, 113, 212-218, doi:10.1016/j.marchem.2009.02.002.

Iwamoto, Y., et al. (2011), Biogeochemical implications of increased mineral particle concentrations in surface waters of the northwestern North Pacific during an Asian dust event, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L01604, doi:10.1029/2010GL045906.

Iwamoto, Y. and M. Uematsu (2014), Spatial variation of biogenic and crustal elements in suspended particulate matter from surface waters of the North Pacific and its marginal seas, *Prog. Oceanogr.*, 126, 211-223, <https://doi.org/10.1016/j.pocean.2014.04.019>.

Iwamoto, Y., K. Kinouchi, K. Watanabe, N. Yamazaki and M. Matsuki (2016), Simultaneous measurement of CCN activity and chemical composition of fine-mode aerosols at Noto Peninsula, Japan, in autumn 2012, *Aerosol Air Qual. Res.*, 16, 2107-2118, doi: 10.4209/aaqr.2015.09.0545.

岩本ら (2018), 光散乱式粒子計数器を用いた PM_{2.5} 吸湿特性の連続計測—2016 年 12 月の高濃度事例を交えて—, *エアロゾル研究*, 33, 238-247.

Martin, J. H. and S. E. Fitzwater (1988), Iron deficiency limits phytoplankton growth in the north-east Pacific subarctic, *Nature*, 331, 341-343.

野崎義行 (1994), 地球温暖化と海 炭素の循環から探る, 東京大学出版会, 196p.

O'Dowd, C. D., et al. (2004), Biogenically driven organic contribution to marine aerosol, *Nature*, 431, 676-680,

doi:10.1038/nature02959.

Schmale, J., et al. (2017), Collocated observations of cloud condensation nuclei, particle size distributions, and chemical composition, *Sci. Data*, 4, 170003, <https://doi.org/10.1038/sdata.2017.3>.

Schmale, J., et al. (2018), Long-term cloud condensation nuclei number concentration, particle number size distribution and chemical composition measurements at regionally representative observatories, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 2853-2881, <https://doi.org/10.5194/acp-18-2853-2018>.

Tsuda, A., et al. (2007), Evidence for the grazing hypothesis: grazing reduces phytoplankton in the western subarctic Pacific (SEEDS II), *J. Oceanogr.*, 63, 983-994, <https://doi.org/10.1007/s10872-007-0082-x>.

原稿受領日: 2018 年 12 月 13 日

掲載受理日: 2019 年 1 月 8 日

著者所属:

1. 広島大学 大学院生物圏科学研究科

*** 責任著者:**

Yoko Iwamoto <y-iwamoto@hiroshima-u.ac.jp>

速度論的手法による対流圏ハロゲン不均一反応化学の 定量的解明

Kinetic studies for quantitative elucidation of heterogeneous halogen chemistry in the troposphere

坂本陽介^{1, 2, 3*}

オゾンや OH ラジカルによるハロゲン化物イオンの気液不均一酸化反応は、ハロゲン化学種の重要な生成源のひとつと考えられており、また、その反応において気液界面で特殊な現象が起きていることが定性的に判明している。筆者は独自のアプローチによる速度論的研究により、ハロゲン化物イオンの気液不均一酸化反応の定量的な速度の記述には特殊な界面反応の寄与を組み込む必要があることを報告してきた。ハロゲン化学種は触媒的なサイクル反応を通じて、健康影響、環境影響、大気酸化力への影響そして温室効果を持つオゾンの動態に大きな影響を持っている。ハロゲン化学種の界面反応に着目した不均一反応の速度論的研究は、まだ新しい研究分野であり結論が出ておらず、また、より正確な大気化学の理解および将来的な大気質の予測に必要な不可欠であるため、今後一層の取り組みが必要である。

1. はじめに

本稿は 2018 年度日本大気化学会奨励賞受賞課題「速度論的手法による対流圏ハロゲン不均一反応化学の定量的解明」に関連した研究内容の総説である。本研究課題の中心は実験室系でのハロゲン不均一反応の物理化学過程の機構解明と定量的な反応速度パラメータの取得といった基礎的な研究となっている。そのため、大気プロセス全体での役割・重要性というマクロな視点での結論まで至っておらず、未熟な研究であるが、今回の受賞を大変光栄に思うとともに、そういった基礎研究を評価していただいた事を大変嬉しく思う。

本稿では、まず対流圏におけるハロゲン不均一反応について筆者が研究を始めた背景を述べ、その後筆者が行った対流圏における気相の酸化物であるオゾンや OH ラジカルとハロゲン化物イオンの気液不均

一反応を通じた塩素、臭素、ヨウ素の対流圏大気への放出過程の研究について関連する主要な論文とともに紹介する。

2. 対流圏におけるハロゲン化学

現在では、ハロゲンを含む化学種は非常に反応性が高く、様々な場所で大気化学反応に関与していることが知られている[Simpson *et al.*, 2015]。本節では大気化学におけるハロゲン化学の発展を主要な論文と共に簡単に紹介し、そして対流圏ハロゲン化学の文脈の中で筆者が何の解明を目的に研究を進めたかを述べる。

成層圏におけるハロゲン化学の重要性については 1974 年に Molina and Rowland (1974) が成層圏におけるオゾン層破壊にフロン類を起源とする塩素化学種の化学が深く関与していることを指摘して以来、

現在では広く周知されている。一方で、対流圏におけるハロゲン化学の重要性についても、Barrie et al. (1988) による臭素化学と春季の北極圏における大規模なオゾン消失イベントの関連性についての報告を始めとする 80 年代の報告を皮切りに認識され始め、まずは極域を中心に研究が進むこととなった。90 年代に入ると極域だけではなく、遠洋境界層における塩素・臭素化学が認識され始めた。例えば、Vogt et al. (1996) はモデル計算を基として遠洋境界層での海塩エアロゾルが介在する不均一な塩素・臭素化学種の触媒反応サイクルの提案をした。また、Spicer et al. (1998) は夜間に沿岸域で最大 150 ppt にも及ぶ塩素の存在を観測し、日の出直後の大気酸化における OH ラジカル以上の重要性を指摘した。

2000 年以降では、それまでの塩素・臭素の化学に加え、ヨウ素の大気化学に注目が集まった。O'Dowd et al. (2002) はスモッグチャンバーを用いた実験により、海藻由来のジヨードメタンの光分解で生成するヨウ素酸化物が新粒子生成の核となり、海洋エアロゾルの生成に寄与しうることを指摘した。Read et al. (2008) は、北アフリカの西沖合に位置するカーボベルデ諸島で DOAS 法を用いた観測を行い、一年を通じて日中に数 ppt レベルの一酸化臭素ラジカル (BrO) と共に一酸化ヨウ素ラジカル (IO) が存在し、観測された濃度条件ではヨウ素化学種の反応がオゾン消失過程の 50% 以上を占めることを報告した。

極域、遠洋境界層以外でも、火山噴煙、塩湖周辺、自由対流圏、沿岸都市域等においてもハロゲン化学の重要性は認識されている[Simpson et al., 2015]。

ハロゲン化学種の対流圏における代表的な役割は、その光化学反応により生成するハロゲンラジカルによる触媒的なオゾンの破壊である。オゾンは対流圏において、健康影響、環境影響、大気酸化力への影響を持つとともに、重要な温室効果ガスであるため、オゾン動態に大きな影響をもつハロゲン化学の把握は、精緻なオゾン動態の将来予測のため必要不可欠である。

一方で、上述した大気化学におけるハロゲン化学の発展と並行して、2000 年以降ハロゲン化物イオンの水溶液界面(気相-液相の境界領域)の特殊な挙動についても物理化学的観点から大きな発見がなされた。Knipping et al. (2000) はチャンバーを用いた室内実験において、気相および液相のみを考慮した不均一反応モデルでは室内実験での塩化ナトリウム粒子へのオゾン暴露により生成する塩素分子を再現できず、気液界面における反応を考慮する必要がある事を報告した。その後、このハロゲン不均一反応における気液界面反応の寄与は、オゾンおよびハロゲン化物イオンの界面親和性に由来することが報告されるなど[Hunt et al., 2004]、ハロゲンの界面反応の特異性について定性的な理解が大きく進んだ。2000 年代後半では、全般的な気相成分の取り込み過程に関して、界面反応を含む“抵抗モデル”を用いた速度論的記述の雛形がほぼ確立された[Pöschl et al., 2007]。

以上のような背景の下で、今後は界面反応の速度論的記述に含まれる各種係数を取得し、ハロゲン化物イオンの界面における特殊な現象の実大気における重要性を定量的に評価していくことが大気化学の発展にとって必要不可欠であると筆者は考え、2000 年代後半より受賞課題である 3 つの反応系での研究に取り組んだ: ヨウ化物イオンとオゾンの不均一反応 (3. 1, Sakamoto et al., 2009, 2013), 臭化物イオンとオゾンの不均一反応 (3. 2, Sakamoto et al., 2018a) および塩化物イオンと OH ラジカルの不均一反応 (3. 3, Sakamoto et al., 2018b)。次節でそれらについて紹介する。

3. 対流圏ハロゲン不均一反応の定量的解明

3. 1. ヨウ化物イオンとオゾンの不均一反応

ヨウ化物イオンは海水中の成分としては非常に小さく、存在比で塩化物イオンの 100 万分の 1 程度であるため、筆者が研究を始めた 2008 年ごろは気相酸化物との不均一反応はヨウ素放出過程としての重要性

は認識されていなかった。しかしながら、一方で界面親和性およびオゾンとの反応性はヨウ素以下のハロゲン化物イオンの中で最大であり、濃度の低さを打ち消す可能性があった。そこで筆者はヨウ素化学種を定量的かつ選択的に測定可能なキャビティーリングダウン分光法を用いた気液不均一反応生成物測定手法を新たに開発し、ヨウ化物イオンとオゾンの不均一反応を通じたヨウ素化学種の定量的な放出機構を解明するための研究を行った[Sakamoto et al., 2009]。この研究では気相成分の液面への気相拡散の影響が大きく絶対的な速度係数を得ることはできなかったが、IO ラジカルが直接観測されたことと、各種実験条件への依存性より、反応中間体 IOOO⁻の生成を介する界面反応機構を提案した(図 1)。また、海水の pH 8 程度の条件でもヨウ素が放出されることを示し、地表の 70%を覆う海水表面が潜在的にヨウ素の放出源になりうることを示した。更に鉄イオンが存在すると pH 緩衝効果によりヨウ素放出が促進されることを報告した[Sakamoto et al., 2013]。

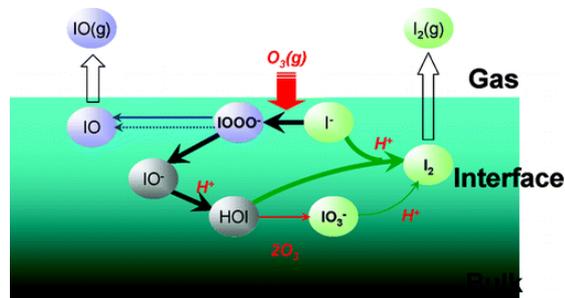


図 1 オゾンとヨウ化物イオンの不均一反応を通じたヨウ素化学種の放出機構。Sakamoto et al., 2009 より許可を得て再掲。Copyright (2009) American Chemical Society.

以上の結果は、従来海藻による有機ヨウ素化合物放出が主であると考えられてきたヨウ素化学種放出機構に対し、無機放出過程の可能性を示した重要な報告である。そのため後続のヨウ素無機放出過程に着目した室内実験のパイオニア的役割を果たすとともに、ヨウ素化学種に着目した観測および大気モデル計算の結果の解釈に大きく貢献した。例えば

Mahajan et al. (2010) は、モデル計算を用いて Read et al. (2008)が報告した遠洋境界層での IO ラジカルの濃度は、海藻由来の有機ヨウ素化合物の放出だけでは説明できないことを報告し、オゾン-海表面間の不均一反応を通じた無機放出過程の重要性を提案した。また、Carpenter et al. (2013)は、ヨウ化物イオンとオゾンの不均一反応についてより大気条件に近い条件で室内実験を行い、ヨウ素化学種は主として次亜ヨウ素酸(HOI)として放出されることを報告した。

3. 2. 臭化物イオンとオゾンの不均一反応

従来、不均一酸化反応の速度論的研究において主に初期の取り込み過程が着目されている。一方で取り込み反応を通じて生成する化学種の二次放出は、大気物質循環において重要であるという認識にも関わらず、複雑な諸過程を含むため、速度論的研究は定性的もしくは間接的なものに限定されている。オゾンと臭化物イオンの不均一酸化反応は、定性的に界面反応を介す反応機構が提案されているもの[Artiglia et al., 2017], 定量的な臭素放出機構についての報告は限られている。

そこで筆者はオゾンと臭化物イオンの不均一酸化反応をモデルケースとして、負イオン化学イオン化質量分析計を検出系に使用したフローチューブ法による生成物放出速度の実測と速度論モデルを用いた数値計算との比較を行い、不均一酸化反応における生成物放出過程に着目した速度論的研究を行った[Sakamoto et al., 2018a]。結果より、実測された臭素放出速度は従来の不均一反応モデルによる予測よりも大きく、現時点での放出系における記述が不十分であることを示すと共に、室温で最大 15%程度の界面反応の寄与の可能性を定量的に示した。不均一反応を通じた生成物放出における界面反応の寄与を定量的に評価している報告は貴重であり、大気不均一酸化反応における生成物放出機構の速度パラメータ決定において貢献が期待される。また、臭化物イオン-オゾンの不均一反応は夜間の主要な海洋

上臭素化合物放出源であり日中の触媒的オゾン消費サイクルの種となる重要な反応である。本研究で得られた速度論的パラメータによる海洋上大気化学理解への貢献が期待される。

3.3. 塩化物イオンと OH ラジカルの不均一反応

不均一反応の速度論的研究は従来フローチューブ法で行われてきた。この手法は確立された手法であるが、エアロゾルおよび酸化剤の安定供給、大気条件での測定、時間分解能など制限があり、反応系が複雑になるほど応用が難しくなっている。そこで筆者はフローチューブ法の不得意とする領域に応用可能な手法として、レーザー光分解法とレーザー誘起蛍光検出法を組み合わせたエアロゾルへのラジカル取り込み速度測定法を新たに開発した[Sakamoto *et al.*, 2018b]。本報告ではテストケースとして、高湿度条件における含水塩化ナトリウム粒子への OH ラジカルの取り込み速度を測定したが、これはラジカルとエアロゾルを短時間で混合する必要があるため低圧での実験が必須であるフローチューブ法では難しい測定である。測定の結果、これまで間接的手法で見積もられていた取り込み速度[Knipping and Dabdub, 2002; Laskin *et al.*, 2006]よりも数倍大きい値を報告した(図 2)。これは従来のパラメータを用いた大気モデルにおいて塩素放出が過小評価されていることを示した重要な報告である。更に、界面反応過程を含んだ抵抗モデルを用いて測定結果を再現することに成

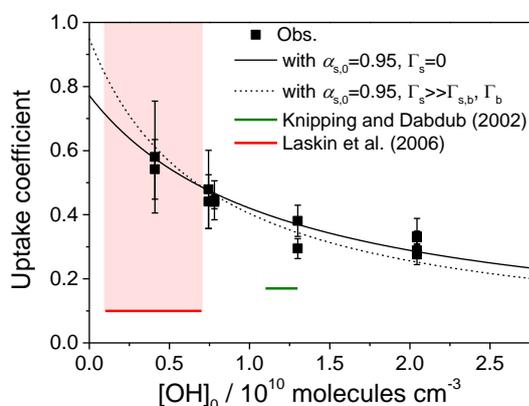


図 2 含水塩化ナトリウム粒子に対する OH ラジカル取り込み係数の初期濃度依存。Sakamoto *et al.*, 2018b より許可を得て再掲。Copyright (2018) American Chemical Society.

功し、初期 OH 濃度依存より界面の活性サイトの状態が取り込み速度に影響を及ぼすことを示した。

この手法は OH ラジカル以外のラジカル種や、さまざまなエアロゾルに応用可能であり、さらに従来法ではほぼ不可能であった実大気エアロゾルの取り込み速度直接測定の可能性を持っており、今後の発展が期待されている。

4. おわりに

筆者は独自の手法を開発し、2000 年代後半より受賞課題である気相酸化物によるハロゲン化物イオンの気-液不均一反応を通じた塩素、臭素、ヨウ素の対流圏大気への放出過程の速度論的研究を行うことで、定量的な反応速度の記述には特殊な反応場である気液界面における反応の寄与を組み込む必要があることを報告してきた。

ハロゲン化学種は触媒的なサイクル反応を通じて、健康影響、環境影響、大気酸化力への影響そして温室効果を持つオゾンの動態に大きな影響を持っている。そのため、ハロゲン化学種の界面反応に着目した不均一反応の速度論的研究を通じた定量的な動態把握は、それ自体そしてオゾンの動態把握を通じて大気化学の発展に貢献すると筆者は考えており、今後一層の取り組みを行うつもりである。

5. 謝辞

本受賞課題を行うに当たり、お世話になった方々への謝辞をこの場を借りて述べさせていただきたい。初めに、当受賞課題のきっかけを頂き、方向性の決定そして発展の方法をご指導いただいた修士課程および博士課程における指導教員である川崎昌博先生および戸野倉賢一先生に感謝の意を表させていただきたい。また、博士研究員時代そして現職において、研究設備を自由に使用させていただき、研究課題を継続させていただくとともに、多くの実りある議論により研究を深めていただいた廣川淳先生、梶井克純先生に感謝の意を表させていただきたい。

更に、共同研究者として当研究に関わり議論いただいた皆様、多くの時間を研究に割くことを理解し研究生活を支えてくれた妻と家族にも感謝の意を表させていただきたい。最後に、まだまだマイクロな視点での基礎研究である当受賞課題を評価していただいた日本大気化学会運営委員会にあらためてお礼を申し上げるとともに、今後一層の大気化学の発展を祈念して日本大気化学会奨励賞受賞記念論文のくくりとしたい。

6. 参考文献

- Artiglia, L., J. Edebeli, F. Orlando, S. Chen, M.-T. Lee, et al. (2017) *Nature Commun.*, 8,700.
- Barrie, L. A., J. W. Bottenheim, R. C. Schnell, P. J. Crutzen and R. A. Rasmussen (1988), *Nature*, 334, 138-141.
- Carpenter, L. J., S. M. MacDonald, M. D. Shaw, R. Kumar, R. W. Saunders, et al. (2013), *Nature Geosci.*, 6, 108-111.
- Hunt, S. W., W. Wang, L. M. Wingen, E. M. Knipping, D. J. Tobias, D. Dabdub and B. J. Finlayson-Pitts (2004), *J. Phys. Chem. A*, 108, 11559-11572.
- Knipping, E. M., M. J. Laskin, K.L. Foster, P. Jungwirth D. J. Tobias, R. B. Gerber, D. Dabdub and B. j. Finlayson-Pitts (2000) *Science*, 288, 301-306.
- Knipping, E. M., and D. Dabdub (2002), *J. Geophys. Res.* 107, 4360.
- Laskin, A., H. Wang, W. H. Robertson, J. P. Cowin, M. J. Ezell and B. J. Finlayson-Pitts (2006) *J. Phys. Chem. A*, 110, 10619-10627.
- Mahajan, A. S., J. M. C. Plane, H. Oetjen, L. Mendes, R. W. Saunders, et al. (2010), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 4611-4642.
- Molina, M. J. and F. S. Rowland (1974), *Nature*, 249, 810-812.
- O'Dowd, C. D., J. L. Jimenez, R. Bahreini, R. C. Flagan, J. H. Seinfeld, et al. (2002), *Nature*, 417, 632-636.
- Pöschl, U, Y. Rudich, M. Ammann (2007) *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5989-6023.
- Read, K. A., A. S. Mahajan, L. J. Carpenter, M. J. Evans, B. V. E. Faria, et al. (2008), *Nature*, 453, 1232-1235.
- Sakamoto, Y., A. Yabushita, M. Kawasaki and S. Enami (2009), *J. Phys. Chem. A* 113, 7707-7711.
- Sakamoto., Y., S. Enami and K. Tonokura (2013), *J. Phys. Chem. A*, 117, 2980-2986.
- Sakamoto, Y., M. Goda, J. Hirokawa (2018a), *J. Phys. Chem. A*, 122,2723-2731.
- Sakamoto, Y., J. Zhou, N. Kohno, M. Nakagawa, J. Hirokawa and Y. Kajii (2018b), *J. Phys. Chem. Lett.*, 9, 4115-4119.
- Simpson, W. R., S. S. Brown, A. Saiz-lopez, J. A. Thornton and R. von Glassow (2015), *Chem. Rev.*, 115, 4035-4062.
- Spicer. C. W., E. G. Chapman., B. J. Finlayson-Pitts, R. A. Plastridge, J. M. Hubbe, J. D. Fast and C. M. Berkowitz (1998), *Nature*, 394, 353-356.
- Vogt, R., P. J. Crutzn and R. Sander (1996), *Nature*, 383, 327-330

原稿受領日: 2018年12月5日

掲載受理日: 2018年12月17日

著者所属:

1. 京都大学 大学院地球環境学堂
2. 京都大学 大学院人間・環境学研究科
3. 国立環境研究所 地域環境研究センター

* 責任著者:

Yosuke Sakamoto

<sakamoto.yosuke.7a@kyoto-u.ac.jp>

SPARC General Assembly 2018 参加報告

江口菜穂

アジアで初となる第 6 回 SPARC (Stratosphere-Troposphere Processes And their Role in Climate; 成層圏・対流圏過程とその気候における役割) General Assembly (GA; 総会) が 2018 年 10 月 1 日から 5 日に京都みやこメッセで開催された。その前の週には香川・高松において Joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference が開催され、国内で大気物理学と大気化学関連の 2 つの国際学会が連続で行われるのは初めてである。

SPARC GA の開催日前日に、台風 24 号が関西地方を直撃し、波乱の幕開けとなった。開催前日の Icebreaker は中止 (来られた人だけに軽食を提供)、参加受付も早々に閉じた。さらに台風の影響によって移動手段が断たれ、予定していた空港以外で降ろされる等で発表者を含む参加予定者の多くの人が初日に到着できないもしくは不参加というハプニングが生じた。そのため学会前半のプログラム改訂を余儀なくされたが、それでも口頭 52 件 (招待講演 17 件含む)、ポスター約 439 件と盛会のうちに閉じることができたのは SOC, LOC および関係者の努力が大きいと感じた。なお、参加者は 382 名(延べ 31 ヶ国)、国内からの参加者は 72 名であった。

今回の SPARC GA では以下の 6 つのテーマでプログラムが構成された。

1. Connections of Atmospheric Composition and Chemistry to Weather and Climate
2. Climate Prediction from Weeks to Decades
3. Role of Atmospheric Dynamics for Climate Variability and Change
4. Atmospheric Impacts and Interactions Related to Tropical Processes
5. Advances in Observation and Reanalysis Datasets
6. SPARC Science for Society

前週の iCACGP/IGAC 2018 からの参加者を意識して、大会初日と 2 日目に大気化学関連のテーマが、また最終日は SPARC の科学成果の一般社会への関わり (研究成果を社会に還元する) に関連するテーマが設けられた。さらにテーマ毎に複数のサブテーマに振り分けられ、特に興味のあるポスター発表を探す際に便利であった。例えば、テーマ 1 では Aerosol observations and analysis, Volcanic emissions and analysis, Stratospheric Ozone, Dynamics and long range transport, Trace gas observations and analysis, Asian monsoon、UTLS (上部対流圏・下部成層圏領域)、Climate analyses といった具合である。



大会初日に撮影された集合写真。(大会中、集合写真上で各人の顔と名前を一致させる作業が行われ、Closing ceremony 時に発表された。)

SPARC GA では、対流圏表層から下部熱圏に至る広範囲領域の力学・化学・放射過程に関する観測、データ解析、理論、数値シミュレーションを通じた最新の研究成果が報告、議論されてきた。前回の GA (2014 年 New Zealand, Queenstown) [木下 2014; 門脇 2014] と比べ、SPARC の研究成果が社会へ果たす役割に関連した講演数が少なかった。また前回の GA は 2011 年に SPARC の名称内に「対流圏」が取り込まれたこともあり、対流圏における成層圏の役割が認識され始めた時期でもあった。今回の GA ではそれがより強く認識され、特に熱帯域で成層圏が対流圏の気候に果たす役割に関する研究発表が多い印象を受けた。またアジア初開催ということもあり、アジア域からの参加者が多く、アジア域に関連した研究発表数が多かったように感じた (個人的興味によるバイアスかもしれないのでその点はご了承下さい)。

以下で、筆者の特に興味のある熱帯 UTLS, アジアモンスーンに関連する研究発表をいくつか紹介する。Hans Schlager (DLR, ドイツ) は 2017 年 7-8 月にネパール上空 (12-20km) で初の航空機 (Geophysica) を用いた微量気体成分 (SO_2 , H_2SO_4 , HNO_3 等) の観測結果を報告した。最低気温で定義される対流圏界面高度よりも上で SO_2 と H_2SO_4 の増大がみられ、また極域のように極低温下での氷雲の HNO_3 の取り込みによる HNO_3 の枯渇が観測された。William Ball (ETH, スイス) は複数の衛星データの解析から、中・低緯度 (南緯 60 度～北緯 60 度) のオゾンカラム量のトレンドを調べ、下部(上部)成層圏では減少(増加)傾向がみられ、結果的にカラムオゾン濃度の回復が鈍化していることを示した。この要因として成層圏南北循環; Brewer-Dobson (BD) 循環の加速や対流圏界面高度の上昇等、力学的な変化が大きいと考えられるが、最新の数値モデルでも再現できておらずその原因は不明である。Marta Abalos (Madrid Complutense 大学, スペイン) は、オゾン破壊物質による BD 循環の加速が指摘されているが、その問題を成層圏化学と放射過程の双方の観点か

ら検討した。前者は南半球のオゾン破壊が南半球下部成層圏の力学場を変化させ、後者はオゾン破壊物質が温室効果ガスとして働くことで、海面水温を加熱し、それが結果的に BD 循環を駆動させていることを示した。

大会期間中のランチタイムや各日夕刻後に連日数件のサイドミーティングが開催され、各コミュニティにおいて議論が活発になされていた。また若手研究者 (Early Career Scientists) 向けのイベントが大会初日の夕方に開催され、約 100 名 (約 10 名のシニア含む) の若者が参加した。グループ毎に SPARC に関する単語の並べ替えや日本の”なぞなぞ”や”とんち”のようなクイズが出題され、大いに盛会であったようだ。また多くの ECS に口頭発表の機会があった。

最後に SPARC GA 恒例 (かつ名物?) のバンケット後のダンスパーティーでは、京大学生 JAZZ バンドによる生演奏で、踊りを通じた親睦が今回も行われた。このダンスパーティーでは、研究分野や年齢、国を超えて楽しく踊ることで、研究はもちろん研究者としての交流を深めることができた。また息子と一緒に踊ることができ (夫は知人と飲んで交流していた)、個人的には思い出に残る楽しい夜となった。

謝辞: ECS イベントの詳細は木下武也氏 (海洋研究開発機構) から教えていただきました。

木下武也ら (2014) 成層圏・対流圏過程とその気候における役割 (SPARC) 第 5 回総会報告, 天気, 7, 43-50.
門脇正尚 (2014) SPARC General assembly 学会参加報告, 日本大気化学会ニューズレター, 31, 3-4.
佐藤薫ら (2018) 成層圏対流圏過程とその気候における役割 (SPARC) 第 6 回総会報告, 天気, 準備中

著者所属:

1. 九州大学 応用力学研究所

* 責任著者:

Nawo Eguchi <nawo@riam.kyushu-u.ac.jp>

雪氷-大気間の化学 Cryosphere and Atmospheric Chemistry (CATCH)参加報告

野村大樹^{1*}, 原圭一郎², 服部祥平³

2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference (iCACGP-IGAC 2018)開催期間中に雪氷-大気間の化学 Cryosphere and Atmospheric Chemistry (CATCH)のサイドミーティングを実施した(9月26日)。CATCHとは、雪氷-大気間の物質交換や、雪氷・大気圏で起こる化学反応について解明を進める国際研究コミュニティであり、極域、山岳氷河、氷床、海氷などの自然環境下での観測、室内実験・モデルによる素過程の再現と評価を研究対象としている。今回は2017年にパリで実施された1回目の会合に続き、CATCHに関わる研究者が高松に集結し、各々の研究紹介、今後の共同研究に関して議論した。

本サイドミーティングでは30名近くの参加があった。また、若手研究者が多く参加していたということが印象深かった。本サイドミーティングでは、まずCATCH取りまとめ役のThorsten Bartels-Rausch博士によって、CATCH設立経緯、組織、意義などについての説明がなされた。その後、合計15名の研究者による1スライドを使用した研究発表会を実施した。雪氷表面でのエアロゾル生成、大陸氷床表面での化学過程などCATCHのテーマに関わる多義に渡る研究の紹介がなされた。また、今後実施される国際プロジェクトの紹介など今後の研究を進める上で有益な情報を共有しあった。例えば、2019-2020に実施される北極海通年漂流観測(MOSAIC)では、CATCHに関わる研究観測が実施される(<https://www.mosaic-expedition.org/>)。そして、本サイドミーティング後の夕食会では、今後の研究コラボレーションについての可能性について議論するとともに、研究者間での親交を深めた。

CATCHに関する詳細な情報、メーリングリスト登録は以下を参照されたい

(<http://www.igacproject.org/activities/CATCH>)。



CATCHのロゴ



CATCH サイドミーティング時の会場の様子(Megan Willis 博士提供)。

著者所属:

1. 北海道大学 大学院水産科学研究院
2. 福岡大学 理学部
3. 東京工業大学 物質理工学院

* 責任著者:

Daiki Nomura <daiki.nomura@fish.hokudai.ac.jp>

4th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 開催報告

持田陸宏^{1*}

日本大気化学会のご後援をいただき、2018年9月24日に4th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols(主催:名古屋大学宇宙地球環境研究所)を香川県高松市のサンポートホール高松において開催しました。本国際ワークショップのテーマである不均一化学過程は、大気エアロゾルの生成や変質に対して重要な役割を担っていることが明らかになりつつありますが、それらの化学過程の機構・速度や、大気物質循環に対する影響には、未解明の部分が多く残されています。本ワークショップでは、大気エアロゾルの不均一過程に関する最新の知見を共有し、その過程に関して鍵となる科学的問いを見出すこと、そして、当該分野の今後の研究の方向性を議論することを目的としました。同名のワークショップは、日中の研究者が中心となり2015年から毎年開催しており、今回は北京、つくば、上海での開催に次ぐ4回目となりました。また、今回は2018 joint 14th iCACGP Symposium and 15th IGAC Science Conferenceのサイドミーティングとしての開催にもなりました。

ワークショップでは、基調講演としてカナダ・トロント大学のJonathan P. D. Abbatt教授による講演「Exploring Heterogeneous Oxidation and Partitioning Processes Indoors: Criegees, Chlorohydrins, and HONO」と、ドイツ・ライプニッツ対流圏研究所のHartmut Herrmann教授による講演「Atmospheric Multiphase Chemistry: Developments Up to Now, Current Work and Future Directions」が行われました。また、カリフォルニア大学アーバイン校、東北大学、東京大学、京都大学、北京大學、山東大学、香港城

市大学、国立台湾大学の11名の研究者による招待講演が行われました。そして、これらの講演に対する質疑を通して、参加者の間で活発な議論が交わされました。今回、日本や中国をはじめ、イギリス、アメリカ、カナダ、シンガポール、スロベニア等から59名の参加があり、本ワークショップは幅広い国々の研究者の交流の場となりました。また、日本からは不均一過程に関係する研究に取り組む物理化学・分析化学の研究者に講演していただき、大気化学分野と他分野の研究者の交流の機会ともなりました。本ワークショップをきっかけとして、新たな議論・交流が広がることを願っております。

本ワークショップは、江波進一氏(国立環境研究所)、廣川淳氏(北海道大学)、猪俣敏氏(国立環境研究所)、森田明弘氏(東北大学)、秋元肇氏(国立環境研究所)、Tong Zhu氏(Peking University)と実行委員会を組織し、企画・開催しました。名古屋大学大学院環境学研究科の学生ほか、準備・開催にご協力いただいた皆様、そして、開催経費に対してご援助いただいた井上科学振興財団に厚くお礼申し上げます。

著者所属:

1. 名古屋大学 宇宙地球環境研究所(実行委員長)

* 責任著者:

Michihiro Mochida <mochida@isee.nagoya-u.ac.jp>

4th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols 参加報告

中川 真秀*

2018年9月24日に香川県高松市にて開催された4th International Workshop on Heterogeneous Kinetics Related to Atmospheric Aerosols (第4回大気エアロゾルに関わる不均一反応国際ワークショップ)に参加致しました。本ワークショップは The international Commission on Atmospheric Chemistry and Global Pollution (iCACGP) - International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) 2018 (9月25-29日)のSide Meetingとして行われました。ワークショップはサンポート高松で開催され、そこはJR高松駅、琴平電鉄高松築港駅の目と鼻の先、さらに眼下には瀬戸内海が広がる好立地でした。会議室はおよそ100人の参加者が集い、大気環境に関わる研究者が一堂に会しました。開催日当日は好天気にも恵まれました。(ただし、iCACGP-IGAC 2018 最終日は台風が接近していました。)

本ワークショップは、Session I から Session V までにわかれており、途中でコーヒブレイクを挟みながら進められました。エアロゾル表面の物理化学や、生成過程における化学的な変化などエアロゾルの不均一反応の研究に特化した内容が報告されていました。Dr. Jonathan P.D. Abbatt (University of Toronto), Dr. Hartmut Herrmann (Leibniz institute for Tropospheric Research) による基調講演をはじめ、日本、中国、アメリカの各大学や研究所から合計14件の講演が行われました。Dr. Jonathan P. D. Abbatt は屋内条件下でのヒトへの暴露経路を特定するため、単分子層の厚さや表面吸着された有機物の不均一酸化動態に関する発表をされていました。Dr. Hartmut Herrmann はこれまでのチャンバー実験結果から対流圏の多相



ワークショップ参加者の発表の様子。会場にはおよそ100名が参加、積極的なディスカッションが行われました。

系大気化学のレビューや今後の展望をお話いただきました。東北大学の火原彰秀先生のエアロゾル水滴の表面張力の計測は、筆者の所属研究室で実験されました。筆者也エアロゾルの光散乱からエアロゾルの物性を詳細に決定できるか否かという研究を行っているため、特に興味深かったです。

筆者にとって、今回が初めての不均一ワークショップの参加となりました。国内のワークショップとは違い、少しだけラフな雰囲気の中、活発な質疑応答がなされていたことが印象深かったです。今後も積極的にディスカッションに加わり、世界の研究者とともにエアロゾルの観点から大気の研究をもっと盛り上げていきたいです。

著者所属:

広島大学 理学研究科

* 責任著者:

Maho Nakagawa <mnaka66@hiroshima-u.ac.jp >

日本地球惑星科学連合 2019 年大会(JpGU2019)での 大気化学セッション開催のお知らせ

日本大気化学会では、1) 地球惑星科学分野全体に開かれた形で研究集会を実施すること、2) 正式な「学会」の場での発表を可能とすること、3) 他分野との交流を促進することを目的として、日本地球惑星科学連合大会において2007年から大気化学セッションを毎年開催してきました。これまで当該セッションには口頭・ポスター発表合わせて平均 50 件程度の申し込みがあり活発な議論が行われてきました。

日本地球惑星科学連合 2019 年大会 (JpGU2019) においても大気化学セッションが採択され、従来通り開催されることとなりました。以下、重要な点を抜粋してお知らせします。

- 1) 大気化学セッションにおける発表言語については、発表使用言語の区分の改訂により、「EJ」区分がなくなったため、2019 年は「J」区分、すなわち、スライド・ポスター表記および口頭発表の言語は英語または日本語を発表者が選択可としております。しかしながら、「大気化学セッション」では、外国人研究者を含めた多様な参加者が発表内容を理解できるよう、スライドおよびポスターは英語で作成頂けますよう、よろしくお願ひいたします。
- 2) 昨年度に引き続き、大気化学の周辺・境界領域や、近年特に注目されている分野の研究者 3-4 名による「招待講演」を実施する予定です。皆様の新たな研究の展開にご活用頂けると幸いです。
- 3) 日程確定を早めるため、口頭コマ数は前年の投稿数を元に仮配分され、その後、実際の投稿数により微調整されます。2019 年大会の大

気化学セッションには、2018 年大会の実績に基づき 5 コマが仮配分されております。なお 1 コマは 90 分、口頭発表 6 件に相当します。

12 月 3 日に JpGU2019 開催セッション/コマ割りが公開され、大気化学セッションの日程は 5 月 29 日～30 日に確定しました。本記事が公開される頃には、予稿原稿投稿受付が開始されていることと思います。2019 年大会における投稿数は 2019 年大会だけでなく 2020 年大会のコマ数にも影響を与えます。日本大気化学会として、大気化学に関連する研究を盛り上げるためにも、皆様からの積極的な発表申込みをお願い申し上げます。

記

名称： 日本地球惑星科学連合 2019 年大会
日程： 2019 年 5 月 26 日（日）～30 日（木）
（大気化学セッションは 5 月 29 日～30 日）
会場： 幕張メッセ・東京ベイ幕張ホール
（千葉県千葉市美浜区）

スケジュール：
2019 年 1 月 8 日、予稿投稿・参加登録開始
2019 年 2 月 4 日 23:59、予稿投稿早期締切
2019 年 2 月 19 日 17:00、予稿投稿最終締切

（日本大気化学会 運営委員会（プログラム担当：中山智喜、岩本洋子、豊田栄、江口菜穂））

第14回日本大気化学学会奨励賞の選考結果について

受賞者氏名:岩本洋子(広島大学大学院生物圏科学研究科助教)

受賞研究課題名:粒子状物質を介した大気海洋間の物質循環過程に関する研究

受賞理由:海洋は大気中に増加しつつある二酸化炭素を吸収し、急激な気候変化を緩和する能力を持つ。海洋の二酸化炭素吸収能を正確に見積もる上で、その一端を担う植物プランクトンの消長を支える必須元素の供給量を把握することは重要である。鉄は海洋の植物プランクトンにとって必須元素であるにもかかわらず、海洋表層における溶存鉄の濃度は極めて低い。そのため鉄の枯渇によって植物プランクトンの生長が制限される海域が存在する。大気中には、鉱物ダストなど鉄を含むエアロゾルが存在し、海洋への鉄の供給源として重要である。また、大気から供給される鉄の動態を把握することは、植物プランクトンを起源とする海洋エアロゾルの生成による温暖化抑制過程の解明にも繋がる。

岩本洋子会員は、これまでの研究で、黄砂飛来時に太平洋上で発生した海霧による鉱物ダストの沈着現象を大気と海洋の同時観測により捉えた。バルク化学分析と個別粒子分析を併用した独自の手法を用いて、海水中懸濁粒子の組成変化からダスト沈着の生物地球化学的な影響を解析した。その結果、1回の黄砂イベントによる海洋表層への生物利用可能な鉄供給量が、植物プランクトンの増殖を促進させるのに十分な量であり、北部北太平洋の炭素吸収能に寄与することを定量的に明らかにした。また、北太平洋とその縁辺海の表面水中に存在する懸濁粒子の広範囲のマッピングデータから、黄砂飛来の影響の小さい夏季においても、大気起源の鉱物粒子が表面水に普遍的に存在することを明らかにした。大気物

質の輸送・沈着過程を海水試料から推定するという従来にない発想で、しかも観測データの乏しい北太平洋の広域において世界的に将来不可欠となる貴重なデータセットを提供した。その手法と成果は大気科学、海洋科学の分野に大きな進展を導くことが期待される。

一方、植物プランクトンの増殖は、大気エアロゾルの生成を通して大気環境の変化を引き起こし、気候に影響を与える。岩本氏は、雲凝結核として重要な微小粒径の海洋性エアロゾルに着目し、研究を進めている。日本海沿岸域に位置する金沢大学能登スーパーサイトでは、大気エアロゾルの雲凝結核能と化学組成のオンラインによる通年観測システムの構築に関わり、エアロゾルに含まれる有機物の割合が高いときに雲粒の成長が遅くなることを観測から明らかにした。現在は、海水中の生物起源懸濁物粒子組成変化と大気中海洋生物起源エアロゾルとの相関や、大気海洋境界面のマイクロレイヤーでのエアロゾル生成過程と大気環境への影響について研究を展開している。

岩本氏の大気と海洋の境界領域を含めた広い視点での研究展開と野外観測でのリーダーシップは、大気化学諸分野の今後の発展に重要な貢献をもたらすものである。以上の理由から日本大気化学学会運営委員会は、岩本洋子会員が同賞に値するものと認める。



岩本洋子氏

受賞者氏名:坂本陽介(京都大学大学院人間・環境学研究科助教)

受賞研究課題名:速度論的手法による対流圏ハロゲン不均一反応化学の定量的解明

受賞理由:対流圏におけるハロゲン化学は、地球表面の約70%を占める海洋上でのオキシダント生成過程および、それに続く大気微量成分の酸化除去過程に関与することが知られている。海塩エアロゾル成分などと気相酸化剤との不均一酸化反応は、ハロゲン種の主要な大気放出過程と考えられているが、その速度論的記述はいまだ確立されておらず、実験的な困難さゆえに定量的パラメータも十分に得られていない。坂本陽介会員は、不均一反応を通じたハロゲン放出過程の正確な把握が、今後の大気化学の発展のための重要な課題であると考え、独自の実験手法を開発し、従来の手法では得ることができなかった定量的な成果を報告してきた。

まず、海洋上のオゾン収支やエアロゾル核生成に寄与を持つと報告されているヨウ素化学種の大気への放出過程を明らかにするため、坂本氏は、キャビティリングダウン分光法や質量分析法を用いた気液不均一反応生成物測定手法を新たに開発し、ヨウ化物イオンとオゾンの不均一反応を調べた。そこからヨウ素化学種の定量的な放出機構を提案し、さらに鉄イオンによる放出の促進を見いだした。この研究は、生物起源の有機ヨウ素化合物放出が主であると考えられてきたヨウ素化学種放出機構に対し、無機放出過程の重要性を示したもので、ヨウ素化学種に着目した観測および大気モデル計算の結果の解釈に大きく貢献した。

また坂本氏は、臭化物イオンとオゾンの不均一反応において、生成物である臭素分子の放出速度を負イオン化学イオン化質量分析法とフローチューブ法で実測し、従来の速度論モデルでは考慮されていない界面反応の可能性を定量的に示した。不均一反応からの生成物放出を定量的に評価した研究は貴重であり、その速度論的な記述の確立に貢献すること

が期待される。また、本研究で報告された速度論パラメータは、海洋境界層での反応性臭素化学種の供給過程を解明する上でも重要性が高い。

さらに最近、坂本氏はレーザー光分解法とレーザー誘起蛍光検出法を組み合わせたエアロゾルへのラジカル取り込み速度測定法を新たに開発した。そして従来のフローチューブ法では直接測定が不可能であった高湿度条件における塩化ナトリウム粒子へのOHラジカルの取り込み速度を測定し、これまで間接的手法で見積もられていた取り込み速度よりも数倍大きい値を報告した。これは現在の大気モデルにおいて塩素放出が過小評価されていることを示した重要な報告である。またこの手法は、従来法ではほぼ不可能であった実大気エアロゾルの取り込み速度直接測定への応用可能性を持っており、今後の発展が期待されている。

以上のように、坂本氏は独自の実験手法を用いて、速度論的観点から対流圏ハロゲン不均一反応の定量的な解明につながる先駆的な成果を上げ、国内外の大気化学の分野で高い評価を得ている。大気化学の今後の更なる解明に貢献することが期待されるため、日本大気化学会運営委員会は坂本陽介会員が同賞に値するものと認める。



坂本陽介氏

(日本大気化学会 運営委員会)

日本大気化学学会役員選挙の公示

1. 役員選挙について

日本大気化学会則の選挙細則に基づき下記の要領で第 11 期(大気化学研究会からの期)運営委員会役員を選出しますので、会員の皆さまのご協力をお願い致します。2018 年度の会費を 12 月 31 日までに納入したすべての会員に選挙権と被選挙権があります。ただし、例外として選挙細則第 6 条により、会長及び運営委員選出の被選挙権を持たない方が数名いるのでご注意ください(下にお名前があります)。

2. 選挙選出日程

2019 年 1 月 大気化学研究 40 号による公示(本記事)と郵送による投票の開始

2019 年 2 月 22 日(金) 投票締め切り(選挙管理委員会必着)

2019 年 3 月 開票・当選者の確定(その後、電子メールと大気化学研究 41 号によって結果公表)

2019 年 5 月 会員集会にて報告

2019 年 7 月 新運営委員会活動開始

3. 選挙要領

1. 選出役員数:運営委員会役員 10 名、および会長 1 名。
2. 投票の締め切り:2019 年 2 月 22 日(金)までに選挙管理委員会へ必着のこと。
3. 投票用紙送付先:
〒263-8522 千葉県稲毛区弥生町 1-33
千葉大学 環境リモートセンシング研究センター
入江仁士宛
4. 投票方法:投票用紙に 6 名を連記(内1名は会長への投票)した後、投票用封筒に入れ、密封したうえで、さらに郵送用封筒に入れて送付する。投票

は無記名とする。

4. 選挙細則

第 1 条 役員選挙の管理事務を行うため、3 名の委員をもって構成する選挙管理委員会を置く。

第 2 条 選挙管理委員会委員は、会長が運営委員より 3 名を委嘱する。委員長は互選とする。

第 3 条 選挙管理委員会は次の事業を行う。

1. 選挙の公示
2. 投票および開票に関する事務
3. 投票結果の確認と当選者の確定
4. 選挙結果の運営委員会への伝達および会員への公表
5. その他選挙管理に必要な事項

第 4 条 選出すべき運営委員会役員およびその定数は以下の通りとする。

会長 1 名、運営委員 10 名

第 5 条 選出すべき運営委員会役員は、当該年度会費を納入した全ての正会員同士の互選とし、正会員は選挙に際して選挙権と被選挙権を有する。

第 6 条 役員任期を 2 期連続したものは被選挙権を持たない。ただし例外として会長の選出については、会長を 2 期連続したものの以外の正会員は被選挙権を持つものとする。

第 7 条 選出すべき運営委員会役員として、6 名を無記名投票する。この内 1 名を会長への投票とする。会長への投票数は、運営委員会役員の選出のための得票としても数えるものとする。

第 8 条 当選者は得票数の多い順に選出され、得票同数の場合は抽選によるものとする。

第 9 条 副会長は選出された運営委員会役員による互選とする。

第10条 監事は運営委員会で、正会員の中のうち運営委員以外から運営委員会で選出される。

2 監事は、再任は妨げないが、3期連続して監事になることはできない。

附則

1. 本会設立後の最初の役員選出選挙における第6条の適用においては、設立前の大気化学研究会の運営委員会役員を務めた期間も含めるものとする。

2. この細則は平成26年1月1日より実施する。

5. 第11期運営委員会役員選出に関する注意

会長に関しては、すべての会員(2018年度の会費を納入した方)に被選挙権があります。運営委員の選出に関しては、2期連続して役員をされている次の5名の方(▲印)は、被選挙権をもちませんのでご注意ください(注:▲のついた方にも、会長としての被選挙権はあります)。

なお第10期の運営委員会役員(委員会推薦の役員を含む)は以下の通りです。

会 長:谷本浩志

副会長:▲持田陸宏

運営委員:▲入江仁士, ▲岩本洋子, 江口菜穂,

▲江波進一, 金谷有剛, 豊田栄,

永島達也(庶務幹事), 中山智喜, 廣川淳,

▲町田敏暢(会計幹事), 森本真司 (50音順)

(日本大気化学会 選挙管理委員会
(入江 仁士(委員長), 江波 進一, 豊田 栄))

編集後記

多くの皆様にご協力いただき、「大気化学研究」誌第40号が完成しました。今号のトピックスとして「大気化学とリモートセンシング」を取り上げ、3名の方にご寄稿頂きました。重要な観測手法の一つである「リモートセンシング」に関してこれまでの経緯から最新情報まで分かりやすく解説されています。貴重な原稿をご執筆いただきました皆様には改めてお礼申し上げます。

なお、近年で最大のイベントであった14th iCACGP – 15th IGAC 2018 (2018年9月)に関する記事は、「大気化学研究」特集号として出版されることになり、特集号編集委員会の元で準備が始まっています。どうぞご期待ください。(S.M.)

大気化学研究 第40号 (2019年1月28日 発行)

編集兼発行：日本大気化学会

編集委員：江波進一(共同編集長), 森本真司(共同編集長), 関山剛, 山地一代

連絡先：〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5 アカデミーセンター 日本大気化学会事務局

電話：03-5389-6237

FAX：03-3368-2822

電子メール：jpsac-post@bunken.co.jp

ホームページ：<https://jpsac.org/publications/aacr/>

《本誌掲載著作物の転載を希望される方へ》

本誌に掲載された著作物を転載される場合は、上記までご連絡ください。無断での二次使用や勝手な加工はお控えください。