

大気汚染物質の光学的リモートセンシング法の開発

メタデータ	言語: jpn
	出版者:
	公開日: 2012-04-12
	キーワード (Ja):
	キーワード (En):
	作成者: 増田, 健二
	メールアドレス:
	所属:
URL	https://doi.org/10.14945/00006565

大気汚染物質の光学的リモートセンシング法の開発

増田 健二

工学部技術部プロジェクトグループ

1. はじめに

大気中に含まれる様々な微量気体成分やエアロゾルは、地球規模で運搬されて住民の健康に大きな影響を与えるとともに、大気の放射収支を変化させ、気候変動や地球温暖化の進行にも大きな影響を与えている。代表的な汚染物質としては、二酸化窒素 (NO_2)、二酸化イオウ (SO_2)、オゾン (O_3) やエアロゾル（浮遊粒子状物質: SPM）などがあり、実際の大気中におけるこれら微量成分を定量的に測定する必要がある。エアロゾルも大気汚染物質であり、その散乱や吸収の光学特性は放射伝達に大きな影響を及ぼす。しかし、これらの物質の時空間分布変動は十分に把握されておらず大気汚染対策や気候予測における不確定要素となっている。

エアロゾルは、大気汚染、酸性雨などの大気環境問題に直接・間接的に深く関わっている。特に、東アジア地域では、驚異的な経済成長、人口増加などに伴う化石燃料に依存したエネルギー消費の増加によって、多量の酸性ガスや粒子状物質が排出され、地域レベルでの深刻な大気汚染問題となっている。東アジアから排出される莫大な量の酸性ガスやエアロゾルによる大気環境への影響は、越境酸性雨などの大気汚染としてローカルではなくグローバル化しており、衛星からの画像情報は、大気中の汚染物質観測のために信頼性の高いデータ源を提供している。

地上から高度 1-2km までの対流圏下部領域では地表面とそれに接する大気との間にさまざまな相互作用が生じており、大気境界層と呼ばれる。この領域における大気は、エアロゾルと呼ばれる数 nm から数 $10\mu\text{m}$ の固体・液体の粒子状物質が多く浮遊している。その発生源は、海塩や土壌粒子、黄砂といった自然起源のものから、工場の煤煙や自動車の排気ガスなど人為的なものまで、汚染物質の発生源の分布が地域的に偏在することや、気体分子に比べ大気中の滞在時間が短いことにより、時間的・空間的な変動が大きい。地上に近い都市大気境界層のエアロゾル量や粒径分布・形状・散乱吸収特性を観測することにより、エアロゾルの発生源を知ることができる。都市域における高濃度で小粒径のエアロゾル層が発達している場合、これは、工場の煤煙や自動車の排気ガスから発生する NO_2 、 SO_2 などの大気汚染物質が小さなエアロゾル粒子に変換されたと推定される。また、海水中の塩分やプランクトンの飛散による海塩粒子は大きなエアロゾルとなり、千葉地域では、自然起源のエアロゾルと人為起源のエアロゾルや酸性ガスとの相互作用が、大気環境への影響を複雑にしている [1]。エアロゾルは大きさや化学成分などがきわめて多様で、かつ地域的にも時間的にも大きく変動するため、エアロゾルに関わる現象の解明や酸性雨などに対する影響の定量的評価が課題となっている。

2. 測定方法

2.1 差分吸収分光法

大気汚染物質を光学的リモートセンシングにより測定する手法として、数 km 隔たった 2 点間での平均濃度が計測可能な長光路差分吸収分光 (DOAS) 法が有効である[2]。一方の端に光源を設置し、そのスペクトルを他方の端に設置した望遠鏡により受光後、分光器により分光する。実際には機器をパスの両端に設置するのは不便であるため、一方に光源と望遠鏡を設置し、他方にレトロリ

フレクターを設置している例が多い。この場合、光路が往復するため2倍の距離を確保することが可能となり感度が向上する。都市域で光化学オキシダントと揮発性有機種の検出を効率的に行うことが必要であり、DOASは、これまでにさまざまな気体に対して適用されてきた。

2.2 航空障害等を利用した DOAS 法

本研究では、航空障害灯を利用し、可視域に吸収帯をもつ NO_2 の微量気体成分の高感度計測およびエアロゾル計測を行う方法を **Fig.1** に示す[3]。観測装置のある場所から光源のある煙突までの距離は約 5.5 km である。長光路 (5.5 km) の大気中通過後の点光源を観測するため市販の天体望遠鏡 (口径 115mm、焦点距離 910mm) を煙突最上部の航空障害灯に向けて設置する。受光器として Si-array Spectrometer (Ocean Optics USB2000 : 波長領域 200–800 nm, 2048 pixel, 0.3 nm/pixel) を使用する。観測装置は、千葉大学の地上約 31 m の高さに設置されている。航空障害灯は、焼却炉の煙突の先端部、高さ 130 m の位置に取り付けられた Xenon flash lamp (40 flash/min) である。通常の DOAS 法では、航空障害灯のような点滅光源を用いることで、点灯時と消灯時の差分スペクトルを取得し、得られたスペクトルの構造をもとに、光路上の大気微量成分などの平均濃度を算出する。

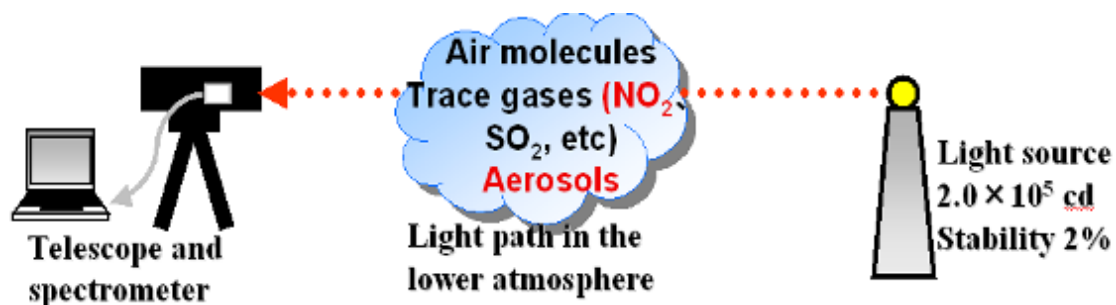


Fig. 1 Light source and detector setup for the pulsed DOAS measurement

3. 測定結果

3.1 スペクトルの解析

航空障害灯および背景光のスペクトルを **Fig.2** に示す。これは、2009.12.15 の 8:48:00~8:53:00 の 5 分間に観測された平均スペクトルである。取得したスペクトルには背景光のスペクトルが含まれているため、背景光のスペクトルを除去する必要がある。背景光は太陽の位置や雲、エアロゾルの影響により、常に変化するが、航空障害灯は点滅しているため、点灯時 (On) のスペクトルと、その直前の非点灯時 (Off) のスペクトルの差 (On-Off) を利用することで、問題なく背景光を除去できる。背景光を除去したスペクトルを観測スペクトルと呼ぶ。

航空障害灯は 1.5 秒間隔で点滅を繰り返しているが、そのタイミングを正確に捉えて、スペクトルを取得するのは難しい。そこで、分光器の積算時間を 100 ms に設定し、連続してスペクトルを取得し、そのデータから発光時と非発光時と区別している。本研究では 400-450nm の値を積算し、1 回前の測定での積算値と比較して 5%以上大きい場合を発光時として処理を行っている。5 分毎に CCD ゲート時間 300ms で 500 回の測定を行い、5 回に 1 回の割合で発光時スペクトルを取得する。その結果、全 500 回の測定で発光約 100 回、非発光約 400 回のスペクトルが取得され平均化される。

差分光学的厚さ ($\Delta\tau$) と差分吸収断面積 ($\Delta\sigma$) スペクトルマッチングのグラフを **Fig.3** に示す。また、差分光学的厚さ ($\Delta\tau$) と差分吸収断面積 ($\Delta\sigma$) の相関図を **Fig.4** に示す。このときの 5.5 km 区間での NO_2 濃度は、 $9.2 \pm 1.0 \text{ ppb}$ 。スペクトルマッチングの R^2 値は 0.6764 であった。

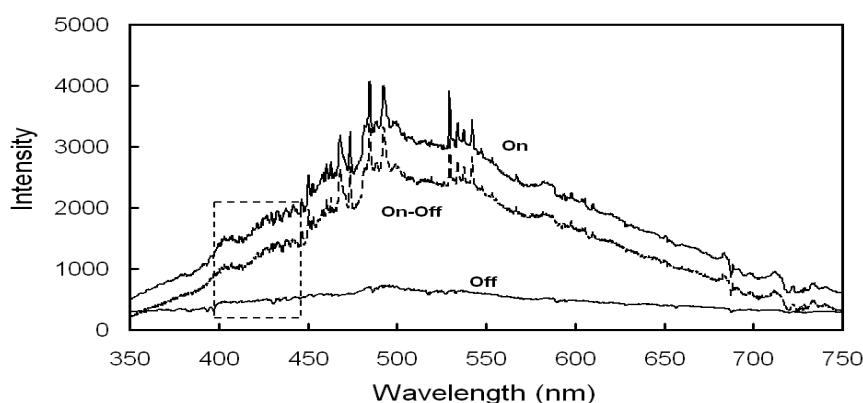


Fig.2 Pulsed DOAS spectra with and without the light source flash

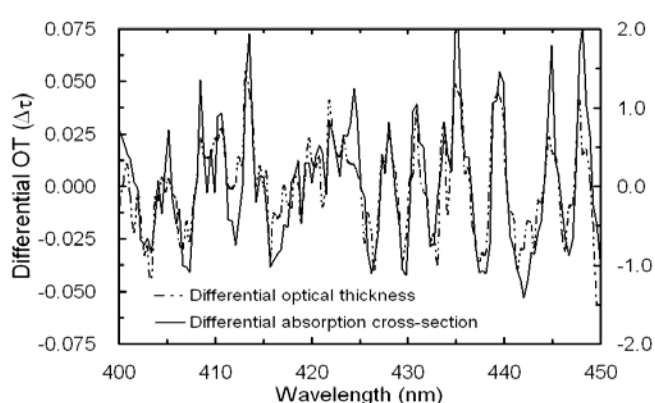


Fig.3 Spectral matching

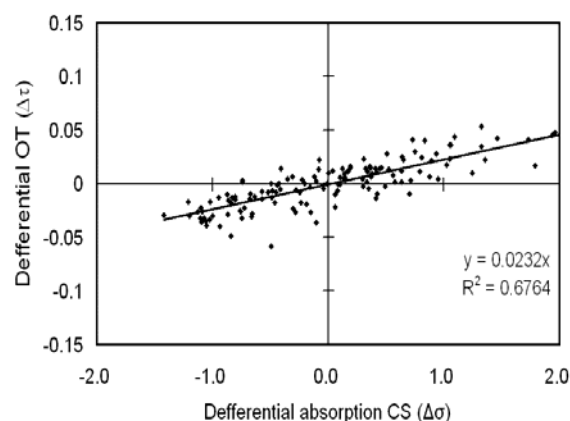


Fig.4 Determination of NO₂ concentration

3.2 オングストローム指数

大気中を浮遊するエアロゾルの物理的性質や卓越している粒径の違いに起因して、エアロゾル光学的厚さの波長依存性にも特徴的な性質が現れる。この波長依存性を示すパラメータは、オングストローム指数と呼ばれ、オングストロームの経験式 [4] により次のように定義される。

$$\tau(\lambda) = B\lambda^{-A} \quad (\lambda \text{ in } \mu\text{m})$$

ここで、 A がオングストローム指数、 B は混濁係数 ($1\mu\text{m}$ における τ_a) である。

オングストローム指数は、エアロゾルの特性を示す重要なパラメータであり、一般に、値が大きいときには大気中に微小粒子が卓越し、値が小さいときには粗大粒子が卓越することが知られている。卓越するエアロゾルの種類によって、およそ 0.5~2.0 の範囲で変化するが、一般的には 1 程度の値をとる。

3.3 大気汚染物質の汚染源と広域移動

自動車の排気ガスなど地表面付近から発生した汚染物質の挙動と、工場・火力発電所の煙突から出た汚染物質の挙動は、異なったスケールの気象の影響を受け、季節によっても異なる。大気汚染物質の拡散にもっとも影響を及ぼすのは気温の垂直分布と風向・風速である。工場・火力発電所などの高い煙突から排出された汚染物質は、煤煙が空気よりも高温のため浮力によって上昇し、また風によって大気汚染物質は広域に拡散される。地表面付近から発生する自動車の排気ガスだけでなく、千葉の都市部は、臨海工業地域に位置しているため海陸風により、一酸化炭素 (CO) や一酸化窒素 (NO) などや、またその二次生成物質である NO₂ やエアロゾルの気象条件による影響を受けやすい立地条件となっている。

Fig.5 に 2009/12/5 6:00～12/6 18:00 の 36 時間の (a) DOAS のエアロゾル消散係数と地上観測局の SPM 値との比較、(b) 温度と風速の観測データを示す。12/5 の 6:00 から 15:00 頃まで北北東 1-2m/s 風速のときは、消散係数は $0.05 \times 10^{-3} \text{m}^{-1}$ 程度であり、SPM 値は 0.03mg/m^3 前後で推移した。12/5 の 15:00 頃に風向が西南西に変わり、風速も 12/6 深夜には 0.5m/s の微風になった。これに伴って、消散係数は $2.5 \times 10^{-3} \text{m}^{-1}$ 前後となり、SPM 値は 0.1mg/m^3 程度まで上昇した。12/6 12:00 頃からは 2m/s 前後と少し風が強くなったため、汚染物質が拡散して消散係数、SPM 値とも下降した。このことから、西方の周辺道路の排気ガスなどによる汚染物質が西からの 1m/s 前後の弱風によって流入し、風速の低下によって大気汚染物質がこの地域に蓄積したと推測される。

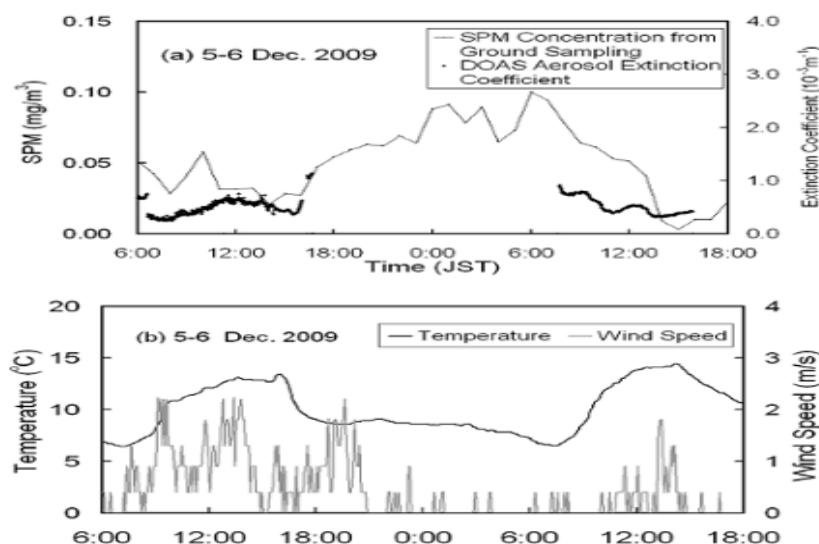


Fig.5 Temporal change of NO_2 concentration

3.4 千葉地域のエアロゾルの連続観測

Fig.6 に 2009/2/10 から 2/23 のエアロゾルの観測データを示す。(a) DOAS の NO_2 の濃度、(b) DOAS のエアロゾル消散係数と地上観測局の SPM 値との比較、(c) サンフォトメータの 500nm におけるエアロゾル光学的厚さ (AOT)、(d) オングストロームパラメータと風速の関係、である。冬季にあたる 2 月は、小笠原高気圧の影響で安定な晴天日が多く、日中の相対湿度も低く、大気汚染物質も多く推移する傾向がある。(a) 多くの日で、 NO_2 濃度はなだらかな変化を示し、地上観測の夜間に高くなる傾向が見られる。これは、(d) の風速のデータから、日中に海風によって運ばれた大気汚染物質が放射冷却によって夜間に弱風になり、接地逆転層が大気中における汚染物質の蓄積に影響を及ぼしている。消散係数と SPM 値との比較を (b) に示す。双方の濃度変化が全体的に良くあった傾向が見られる。(c) 500nm における AOT の観測データを示す。2 月の期間は、観測できたほとんどの日で 1～3 という高い値を示した。サンフォトメータ観測では、成層圏エアロゾルも加味したエアロゾル量、種類、鉛直プロファイルについての情報が必要とされる。エアロゾルの光学的厚さの波長変化対数は、オングストロームパラメータと呼ばれ、エアロゾルの大きさの指標となる。(d) オングストロームパラメータ (α_{ang}) の値が小さな値を示すときには、主に大きな粒子が優勢な海塩粒子であることが知られている [5]。弱風の時には、 α_{ang} は 1 よりも大きな値を示す傾向があり、これは、自動車の排気ガスや工場の燃焼に由来する粒径の小さな陸域エアロゾルであると推測される。また、強風になった 2/12、2/18 および 2/22 には、 α_{ang} は 1 よりも小さな値を示す時間帯があり、これは、粒径の大きな海塩粒子を含んだ海洋エアロゾルが運ばれてきたと推測される。

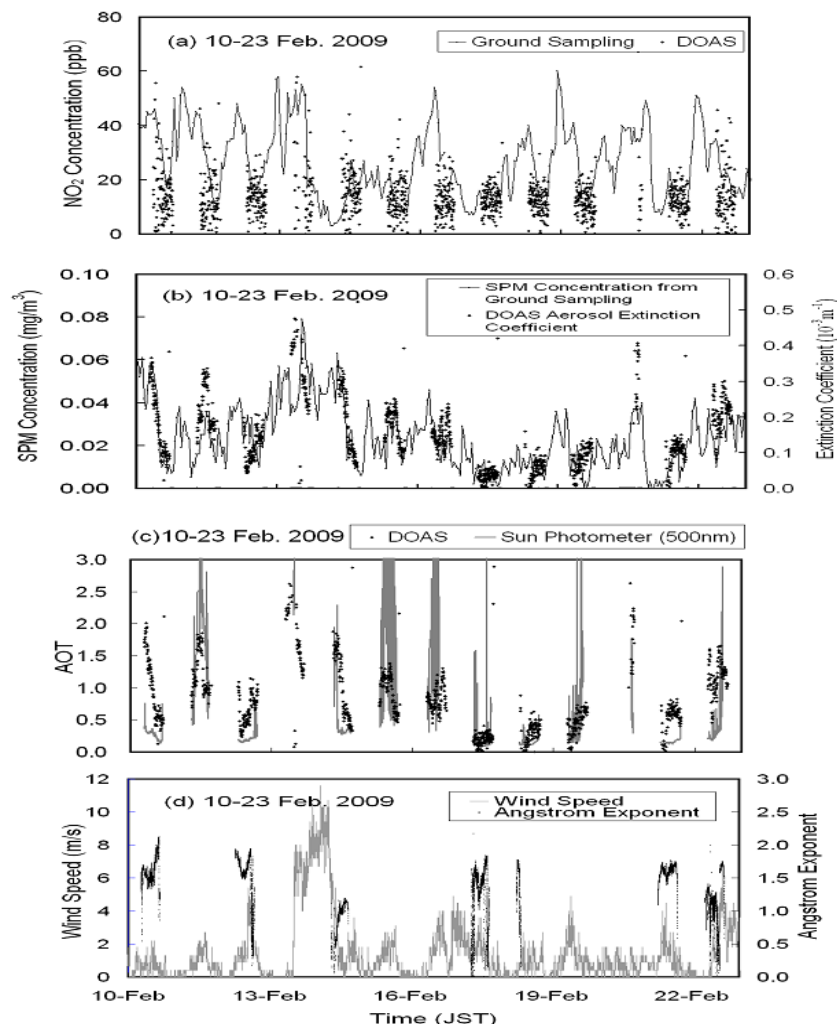


Fig.6 Results of long-term observation between 10 and 23 February 2009

3.5 エアロゾルの日変動と α_{ang} と風速の関係

Fig.7 にエアロゾルの日変動 (6:00-18:00) と α_{ang} と風速の関係を示す。エアロゾルのタイプと粒径分布の関係は Fig.3.4 に示すように、海洋エアロゾルは大きなサイズの高塩粒子が多く含まれており、陸域エアロゾルは半径 $1\mu\text{m}$ より小さなエアロゾル、成層圏エアロゾルは半径 $0.05\text{-}1\mu\text{m}$ の大きさの揃ったエアロゾルが標準タイプとして考えられている。(b) 2009/2/10 は、北東・北北東 1 m/s 前後の弱風であり、 α_{ang} は 1.0 より大きな値で推移していることから、(a) 粒径の小さな排気ガスに由来する陸域エアロゾルが徐々に拡散していく様子が確かめられた。(d) 2009/2/22、12:00 頃までは北北西 1 m/s 前後の弱風、13:00 頃から西南西・南西に風向が変わり、13:00 頃には 5 m/s の強風となった。それに伴って 13:00 頃から α_{ang} が下がり始めたことから粒径の大きな高塩粒子を多く含んだ海洋エアロゾルが強風で東京湾から運ばれてきたと推定される。

4. まとめ

千葉都市部の冬季夜間のエアロゾル濃度が上昇する現象のメカニズムを DOAS 法およびサンフォトメータなどの同時連続観測データを用いて解明した。大気汚染物質の輸送サイクルは、安定な高気圧圏に入る冬季においては、気圧の傾きによって起こる一般風が弱いと海陸風が卓越し、夜間から早朝にかけて大気汚染物質は陸風によって海上に輸送され、日中には海風により内陸部に輸

送される。このような海陸風による大気汚染物質の循環において、冬季は海風（西風）が卓越し、海陸風前線や接地逆転層によって深夜に微風となる。千葉の都市部は、西方に東京湾、臨海工業地域、幹線道路が位置しているため、海風（西風）の卓越および海陸風前線や接地逆転層による大気汚染物質の蓄積が発生するメカニズムを解明する上での有用性を発揮した。DOAS とサンフォトメータのデータ比較によって、陸域や海洋エアロゾルなどのタイプの違いを評価した。

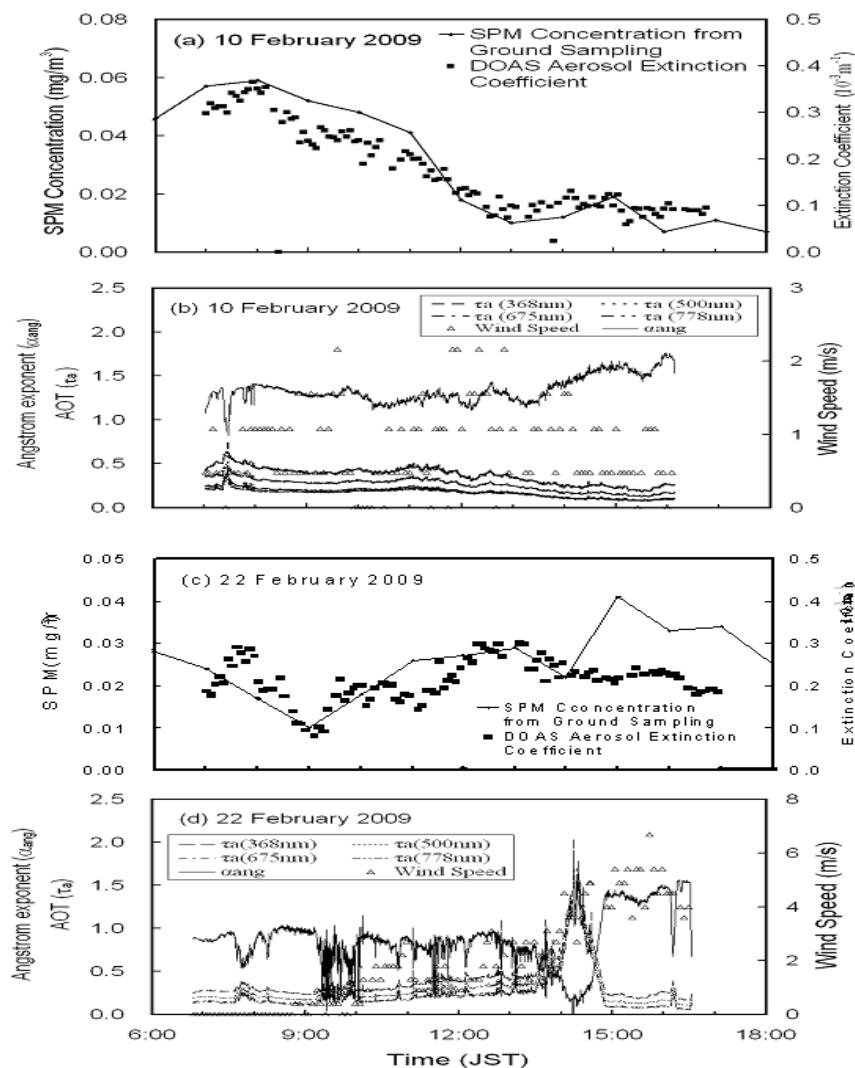


Fig.7 Change of aerosol type from the temporal changes of the Angstrom parameter and wind speed

参考文献

- [1] Fukagawa, S. et al., 2006 : Characterization of seasonal variation of tropospheric aerosols in Chiba, Japan, Atmospheric Environment 40, 2160-2168
- [2] Platt, U and Perner, D., 1980. Direct measurement of atmospheric CH₂O, HNO₂, O₃, NO₂, and SO₂ by differential optical absorption in the near UV. J. Geophys. Res., Vol. 85, pp. 7453-7458.
- [3] Yoshii, Y., Kuze, H., Takeuchi, N., 2003 : Long-path measurement of atmospheric NO₂ with an bstruction flashlight and a charge coupled device spectrometer, Applied Optics, 42(21), 4362-4368
- [4] Angstrom, A., 1930. On the atmospheric transmission of Sun radiation. Geografis. Ann., 12, 130-159
- [5] 竹内延夫, 2001. 地球大気の分光リモートセンシング, 日本分光学会 測定法シリーズ 39, 53