

B-051 アジアにおけるオゾン・ブラックカーボンの空間的・時間的変動と気候影響に関する研究

(2) 対流圏化学衛星データによるオゾン及び前駆体物質の空間的・時間的変動の解析

- 1) アジアにおけるオゾン及び前駆体物質の解析
- 2) 衛星観測データによる対流圏微量成分濃度導出の高度化

独立行政法人海洋研究開発機構

地球環境フロンティア研究センター

入江仁士

金谷有剛

奈良女子大学理学部情報科学科

林田佐智子

〈研究協力者〉

奈良女子大学理学部情報科学科

野口克行・久慈誠

國學院大學文学部自然科学研究室

柴崎和夫

平成17～19年度合計予算額 23,639千円

(うち、平成19年度予算額6,475千円)

※ 上記の合計予算額には、間接経費5,454千円を含む

〔要旨〕 急速なエネルギー需要の増大によって大気汚染が深刻化している東アジア(特に中国・華北平原)において、対流圏中のオゾン及びその前駆気体(NO_x やVOC等)の空間的・時間的変動を定量的に理解することは急務である。その為には衛星を使って対流圏中の化学微量成分を地球規模で観測することが非常に有効であるが、東アジアの汚染地域では衛星データの検証に不可欠な独立観測は皆無に等しく、広域大気汚染の実態の定量的理解を困難にさせている。こういった問題を克服するために、本研究では衛星データの検証に最適な地上設置型の紫外可視分光計(MAX-DOAS)を開発するとともに、必要な解析ソフトウェア(非線形最小二乗法を用いたスペクトルフィッティング法・モンテカルロ法を用いた放射伝達モデル)も開発し、平成18年6月に世界で初めて中国・華北平原での観測を実施した。観測は本プロジェクト・サブテーマ1の中国泰山集中観測の枠組みの中で実現された。国際協力の下で整備した対流圏 NO_2 カラム濃度の衛星データと比較したところ、衛星データには系統的に約20%の正のバイアスがあることが分かった。他方、これまで衛星から長期にわたって観測された対流圏 NO_2 カラム濃度データを解析したところ、その季節変動・年々変動パターンは領域モデルで定性的に良く再現されることが分かった。また、対流圏オゾンのカラム濃度についても衛星データとオゾンゾンデデータを比較し、衛星データに約10%の正のバイアスがあることが分かった。これらの成果により、今後は衛星データとモデルの比較結果を定量的に解釈できるようになるなど、モデルを精密に検証する上で不可欠な科学的基盤を築くことができた。オゾンについてはさらに、オゾンゾンデデータの長期データも併せて

解析し、札幌・つくば・鹿児島では対流圏オゾン濃度の増加速度が近年鈍化している一方で、那覇では2000年以降、高濃度イベントが頻繁に観測されたことが分かった。

[キーワード] 対流圏衛星観測、二酸化窒素、オゾン、検証、紫外可視分光計

1. はじめに

対流圏中のオゾン及びその前駆気体(NO_x やVOC等)は大気環境を悪化させる重要な人為起源汚染物質であるが、これまでの観測は空間的・時間的に疎らであり、それら汚染物質の時空間分布の定量的理解には未だ至っていないのが現状である。その一方で、東アジアでは急速なエネルギー需要の増大に起因して大気汚染が深刻化している。このような背景の下、近年、人工衛星を用いた対流圏化学微量気体の観測が地球規模で行われ始め、そのデータ利用が欧米を中心に盛んになりつつある。しかしながら、我が国では独自の衛星観測が実現していないために、衛星データの利用が著しく立ち遅れている。また、衛星データを用いて広域大気汚染の実態を定量的に理解するためには衛星データを他の独立な観測データと比較して検証することが不可欠である。しかしながら、東アジアの汚染地域での検証観測は皆無に等しく、東アジアの広域大気汚染の実態を定量的に理解する鍵を握っている。

2. 研究目的

本研究では、対流圏中の NO_2 やオゾン等の衛星データを詳細に解析して、東アジアの広域大気汚染の時空間分布を定量的に解明することを目指す。そのために鍵となっている衛星データの検証を確実に実施するために、平成17年度では、2次元CCD検出器を備えた改良型のMAX-DOAS (Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy)装置を開発するとともに、測定されたスペクトルから NO_2 等の対流圏カラムを導出するためのアルゴリズム(スペクトルフィッティング法や放射伝達モデル(MCARaTS))も開発する。平成18年6月には、MAX-DOASによる観測を中国華北平原で実施し、世界に先駆けて、中国華北平原における対流圏 NO_2 カラム濃度の衛星データ(OMIデータ)を定量的に検証する。加えて、我が国の一般環境大気測定局・自動車排出ガス測定局のデータを使った検証も行い、検証された衛星データに基づいて、東アジアにおける NO_2 の空間分布を定量的に明らかにする。また、衛星センサGOMEによって長期間観測された対流圏 NO_2 カラムの季節変動・年々変動パターンを調べ、領域モデルと比較してその相違を明らかにする。さらに、オゾンについても異なる手法で得られた3種類の衛星データを相互比較するとともに、オゾンゾンデデータも組み合わせて、対流圏オゾンの時空間分布を明らかにする。

3. 研究方法

(1) 衛星観測

本研究で着目した衛星センサOMI (Ozone Monitoring Instrument)はNASAのEOS Aura衛星に搭載された直下視型センサで、紫外可視域(270-500nm)における太陽散乱光のスペクトルを測定する²⁾。

Aura衛星は2004年7月15日に打ち上げられた。OMIは、GOMEやSCIAMACHYの後継機と位置づけられ、2次元CCDの技術を取り入れた新しい衛星センサであり、空間分解能（衛星直下で通常13 km × 24 km）・時間分解能（1日で全球をカバー）に優れる。アメリカのNASAとオランダのKNMIが共同で開発したアルゴリズムで導出された対流圏NO₂カラム濃度データを本研究で用いた。また、ESAのERS-2衛星に搭載されたGOMEセンサが測定した太陽光散乱スペクトルをドイツ・ブレーメン大学が処理して得た対流圏NO₂データも解析した^{3,4)}。GOMEは直下視型の紫外可視分光計で、空間分解能は40 km × 320 km程度である。1995-2003年の長期にわたって全球観測を実施したことが特徴である。

対流圏オゾンカラム濃度としては、3種類の対流圏オゾンカラム濃度データを解析した。1つめは、TORデータと呼ばれ、TOMS で得られたオゾン全量からSBUV で得られた成層圏オゾンカラム量を差し引いて推定された対流圏オゾンカラム濃度である⁵⁾。2つめは、Cloud Slicingデータと呼ばれ、TOMSデータに基づき、積雲雲頂からの散乱光を利用して雲の上（対流圏界面から上層）のオゾン量を推定し、その値をオゾン全量から差し引いて推定した対流圏オゾンカラム濃度である⁶⁾。3つめは、GOME データに基づき、紫外域における直下視観測で得られた太陽光散乱スペクトルから逆問題を解いて得られた対流圏オゾンカラム濃度である⁷⁾。これら3種類の対流圏オゾンデータを相互比較するとともにオゾンゾンデデータと比較して衛星データを検証した。

（2）衛星と独立な観測

本研究で用いたMAX-DOAS装置は、従来の受動型DOAS装置（天頂の太陽散乱光を測定する紫外可視分光計）に複数の低仰角での測定を行う機能を加えた新規性の高い測器である。仰角を変えると各高度における散乱光の光路長が変化する（図1）。この性質を利用して、複数の仰角での測定と放射伝達モデルを組み合わせることによって、対流圏中のNO₂等の鉛直カラム量／高度分布を得ることができる^{8,9)}。MAX-DOAS装置の最大の特長は、低仰角方向からの散乱光を分光することで対流圏中の微量成分を高感度で観測できることにある。また、天頂方向のスペクトルを参照スペクトルとして用いることにより、成層圏とフラウンホーファー線の寄与を大幅に抑えることができる。我々は平成17年1月にMAX-DOAS装置を神奈川県横須賀市の独立行政法人海洋研究開発機構本部に設置し、6分ごとに仰角5, 10, 20, 30, 90度で太陽散乱光（波長範囲：370-500 nm、分解能：0.3-0.4 nm）を連続して測定した。その経験を活かし、平成17年度に複数の仰角での測定を同時に行える、2次元CCDを備えた改良型のMAX-DOAS装置を開発した。また、MAX-DOAS装置で測定された放射輝度スペクトルから対流圏NO₂等の情報を引

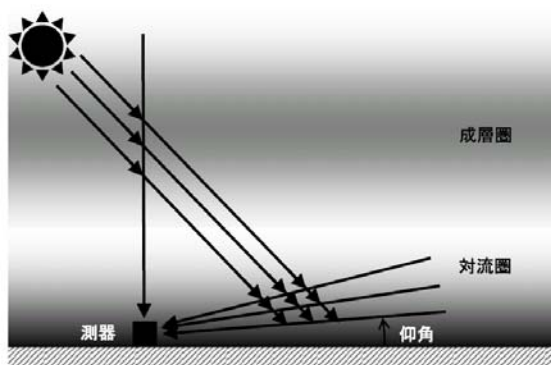


図1. MAX-DOAS装置の測定ジオメトリー。天頂(仰角90度)から測器に入射する散乱光スペクトルと低仰角のスペクトルの比を取ることによって、成層圏でのNO₂等による吸収成分を打ち消して高感度で対流圏(特に境界層)を測定できる。また、絶対強度の校正が不必要な点も特長である。

き出す為のソフトウェア（非線形最小二乗法(Levenberg-Marquardt法)を用いたスペクトルフィッティングアルゴリズム、ロジャース最適法、3次元の放射伝達モデル(MCARaTS)¹⁰⁾を開発・改良した。放射伝達モデルは国際相互比較の枠組み(欧州のプロジェクトACCENTの一環)で比較・検証された¹¹⁾。こういった平成17年度の成果を土台として、平成18年度では泰山集中観測(サブテーマ1を参照)が実施された6月に、泰山の山頂(36.3°N、117.1°E、標高1534 m)とその麓の街の泰安市(36.2°N、117.1°E、標高126 m)の2地点にそれぞれMAX-DOAS装置を設置し、約1ヶ月間の同時観測を行った。測定したスペクトルデータから対流圏NO₂カラム等の値を導出して衛星データと比較し、衛星データの検証を中国華北平原で初めて実施した。また、我が国の一般環境大気測定局・自動車排出ガス測定局のデータも解析し、それを使った検証解析も実施した。

対流圏オゾンの衛星データを検証するために、本研究ではWOUDC(World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre)および気象庁の観測したオゾンゾンデデータを解析した。オゾンゾンデデータを詳細に解析した先行研究¹²⁾では、対流圏の下層を2層(950-750 hPa(約0.5-2.5 km)、750-550 hPa(約2.5-5.0 km))に分けていた。本研究では、その2層に550-250 hPa(約5.0-10.0 km)を第3層目として加え、対流圏カラム量および層ごとの挙動を詳細に解析した。オゾンゾンデの対流圏カラムデータを衛星データと比較し、詳細に衛星データを検証した。

4. 結果・考察

(1) 紫外可視分光計(MAX-DOAS)を用いた新しい観測手法の開発

1) 改良型MAX-DOAS装置の整備

MAX-DOASの測定装置は、CCD検出器の付いた紫外可視分光器、可動ミラーの付いた受光部、の2つから構成される。平成17年1月から横須賀で行ってきた観測では1次元CCDを用いた装置を使用していたために仰角5, 10, 20, 30, 90度の順番で個々の測定を行うことしかできず、異なる仰角での完全な同時測定が行えなかった。こういった経験を踏まえて、2次元のCCD検出器を備えマルチトラック分光法を採用した紫外可視分光器を1台整備した(図2左)。また、仰角を固定した望遠鏡を5つ持つ受光部(図2右)を作成し、光ファイバーで分光器と接続して、MAX-DOAS装置を完成させた。平成17年度に初期試験観測を実施し多仰角が同時に測定できることを確認した(図3)。



図2. 改良型MAX-DOAS装置の(左)紫外可視分光器と(右)受光部。

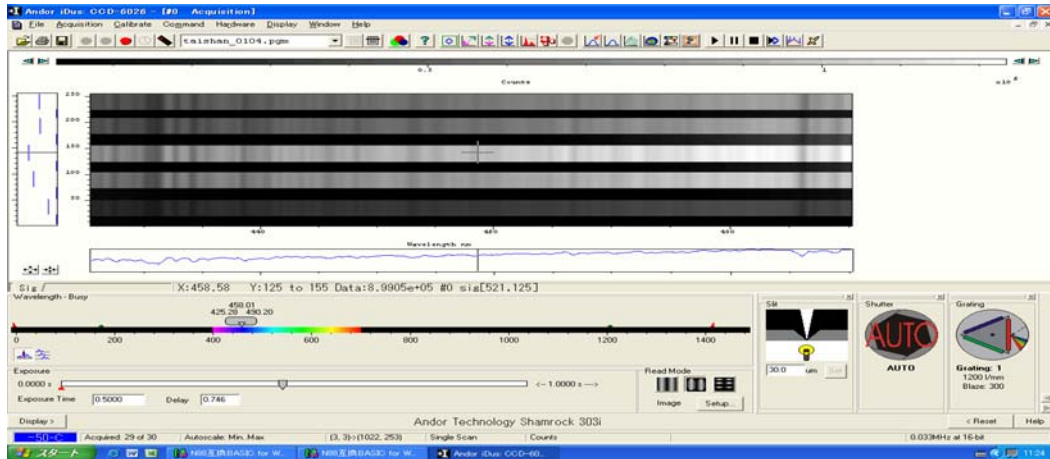


図3. 改良型のMAX-DOAS装置で測定された太陽光散乱スペクトル。5つの異なる仰角でのスペクトルが2次元CCD検出器に同時に投影されていることが分かる。

2) スペクトルフィッティングアルゴリズムの開発

MAX-DOAS装置で測定された放射輝度スペクトルから対流圏NO₂カラム濃度の情報を導出するために、Lambert-Beerの法則と非線形最小二乗法(Levenberg-Marquardt法)を用いたスペクトルフィッティング法を開発した。スペクトルフィッティングは465-490 nmの波長範囲で行った。レイリー・ミー散乱による緩やかな構造は3次の多項式で近似した。フラウンホーファー線の影響を最小限に抑える為に、ラマン散乱による影響(Ring effect)もアルゴリズムに取り入れた。微弱ながらも無視できない吸収を持つオゾン, O₄ (O₂-O₂; 酸素分子の衝突錯体) 等もNO₂と同時にフィッティングした。図4に我々のスペクトルフィッティング結果の例を示す。残差のRMSは0.002以下で、0.2%までの差分吸収を測定できることが分かった。導出されたNO₂のスラントカラム濃度は $(7.35 \pm 0.06) \times 10^{16}$ molecules cm⁻² (仰角5度)であった。その他の成分については、O₃ = $(1.94 \pm 0.07) \times 10^{19}$ molecules cm⁻², O₄ = $(5.87 \pm 0.02) \times 10^{43}$ molecules² cm⁻⁵であった。なお、これらの値は仰角90度に対する差分スラントカラム濃度で、対流圏(特に境界層)に大きく重み付けされたカラム濃度であると考えられる。残差が小さく差分スラン

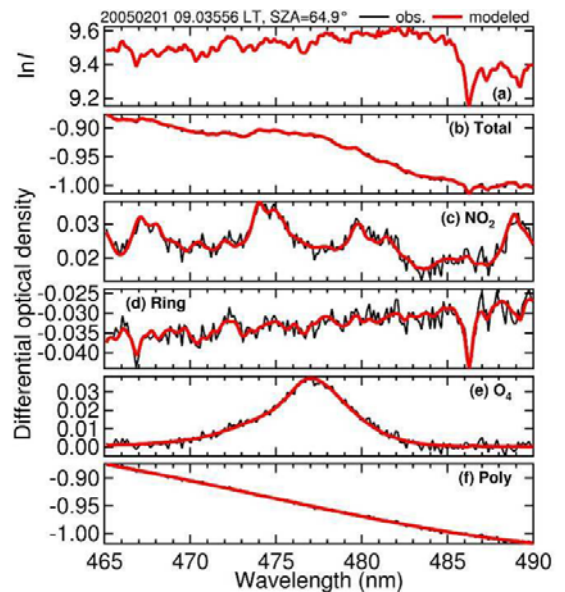


図4. 非線形最小二乗法を用いたスペクトルフィッティング結果の例。2005年2月1日に横須賀で得られたスペクトル(太陽天頂角 = 64.9度, 仰角 = 5度)を解析した結果である。細線は観測スペクトルを、太線はフィッティングしたスペクトルを示す。(a) スペクトルフィッティングはlnIで行った。参照スペクトル(仰角 = 90度)からの光学的厚みの差を(b)に示す。そのうちの各成分(NO₂, Ring effect, O₄, 3次の多項式)の寄与を(c-f)に示す。

トカラム濃度の誤差が非常に小さいことから、アルゴリズム・測器ともに実用段階まで十分に達していることが分かった。

2) 放射伝達モデルの改良・検証

図1で示されているようなMAX-DOASの測定ジオメトリについて、エアマスファクターを計算できるように放射伝達モデルを改良した後、異なる国際グループが開発した8つの放射伝達モデルの相互比較を実施した。相互比較は異なる複数の波長および大気条件(エアロゾルの有無等)について実施された。エアマスファクターはエアロゾルによる散乱の影響を強く受けることが分かり、MAX-DOASによる観測からNO₂等のガス成分だけでなくエアロゾルの光学的情報(消散係数や光学的厚み)も引き出せることが分かった。我々のモデル(MCARaTS)を含む全ての放射伝達モデルが計算したエアマスファクターは概ね5%以内で一致していることが分かった(図5)。このことは、我々のモデルが実用段階まで達していることを示す。また、光学的厚みが比較的薄い条件下では、低仰角におけるモデル計算のあいだで差が大きくなる傾向があることが分かった。我々のモデルを用いて、大気の球面効果を入れた計算と入れない計算を比較したところ、モデル間の差は主に球面効果の取り扱い手法の違いによることが分かった(図6)。

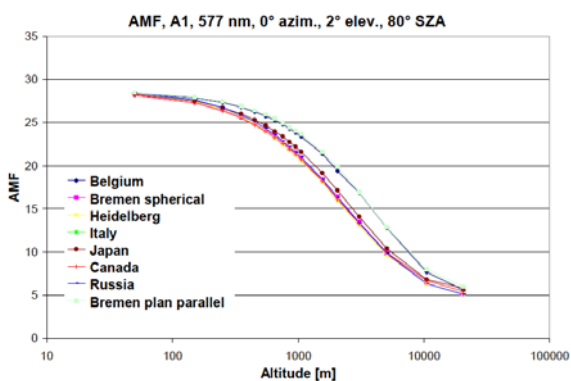


図5. MAX-DOASの測定ジオメトリーについて、異なる国際グループが開発した8つの放射伝達モデルのエアマスファクター計算の相互比較の例。我々の放射伝達モデルで計算した値(Japan)が他のモデルと良く一致していることが分かる

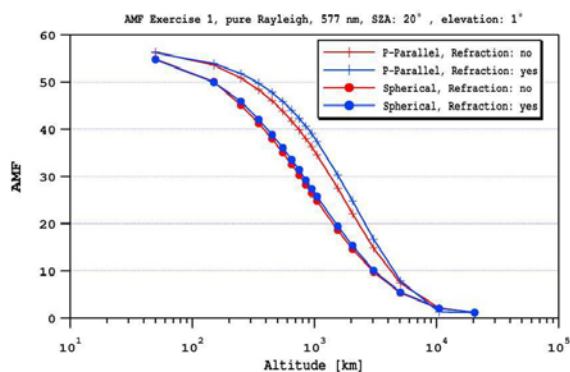


図6. 我々の放射伝達モデルを用いて計算したエアマスファクター。平面大気/球面大気を仮定した計算、および、屈折を考慮する/しない、についての結果がそれぞれ示されている。図5で見られたモデル間の違いは平面大気/球面大気の違いで大部分が説明できる。

3) 対流圏NO₂カラム濃度導出アルゴリズムの開発

上記のスペクトルフィッティングアルゴリズムと放射伝達モデルを組み合わせ、NO₂の対流圏カラム濃度を導出するアルゴリズムを開発した。導出法として差分スラントカラム濃度(DSCD)を非線形最小二乗法でフィッティングする手法を採用した。2005年2月1~14日の横須賀上空におけるNO₂の対流圏カラム濃度の時系列を図7に示す。また、同時に導出されたエアロゾルの光学的

厚さも示す。それぞれの値のエラーバーは、フィッティング残差から算出された標準偏差(1 σ)である。図7から分かるように、NO₂の対流圏カラム濃度の誤差は概ね10%以下と小さかった。これは衛星データの誤差に比べて小さいことから、MAX-DOASによる観測から得られたデータは衛星データを検証するために有効であることが確認された。

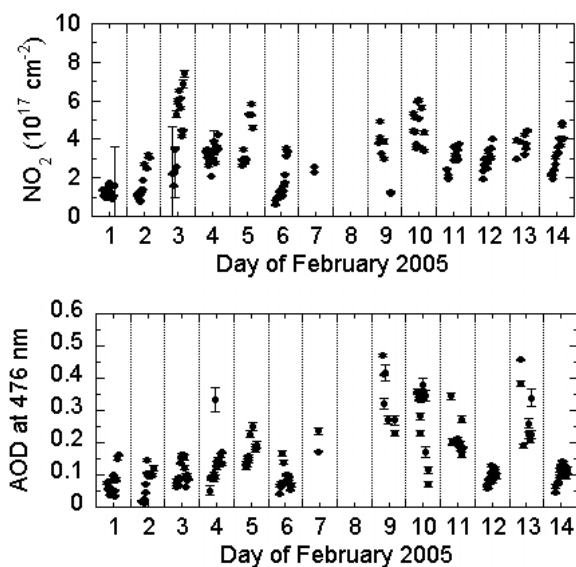


図7. 2005年2月1～14日に横須賀でMAX-DOAS法を用いて測定された(左)対流圏NO₂カラム濃度と(右)エアロゾル光学的厚さの時系列プロット。

(2) 対流圏衛星データ解析

1) 中国華北平原における対流圏NO₂カラムの衛星データの検証

我々は2006年6月に泰山集中観測(サブテーマ1を参照)に参加し、泰山山頂およびその麓の泰安市にそれぞれMAX-DOAS装置を設置して約1ヶ月間の連続観測を実施した。2006年6月において、Aura衛星に搭載されたOMIセンサが観測した対流圏NO₂カラム濃度の月平均値のマップを図8に示す。雲の影響を最小に抑える為に雲被覆率が10%以下のデータを使用した。図の中で泰山は”Mt. Tai”と記載された場所に位置している。期待されたとおり、泰山集中観測が行われた華北平原は大気汚染が深刻な地域であったことが分かる。エアロゾルについても同様に、華北平原で光学的厚さが非常に高かったことがMODISデータから分かった。

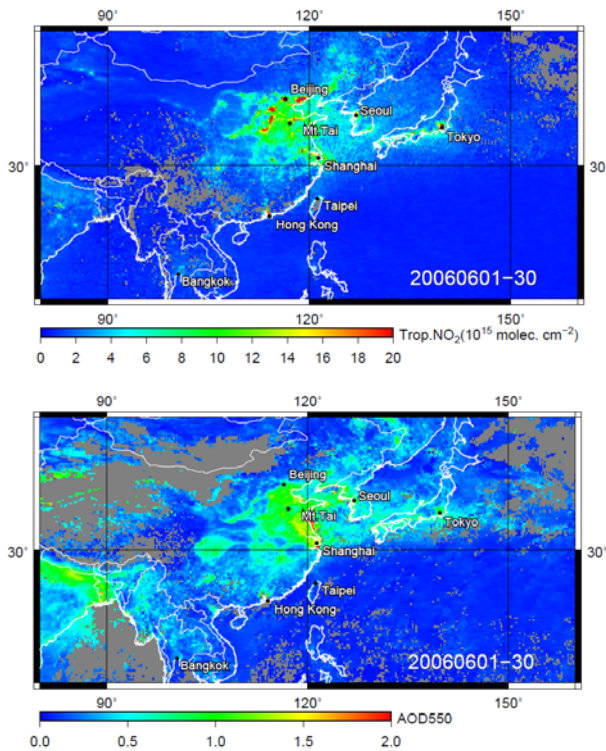


図8. 2006年6月の衛星データ。左図はOMIの対流圏NO₂カラム濃度、右図はMODISのエアロゾル光学的厚さのデータを示す。

本研究では、衛星データの検証を行う前に、MAX-DOASデータの評価を行った。泰山山頂では、化学蛍光法によるNO₂のその場観測（サブテーマ1を参照）が実施された。そのデータとMAX-DOASのデータを比較することで、MAX-DOASのデータを評価した。図9では、MAX-DOASの2種類のデータセット（泰山と泰安での観測による）とその場観測のデータが比較されている。観測した空気塊の体積は大きく違うにもかかわらず、3種類のデータセットは同じオーダーの値を示した。泰山に設置したMAX-DOASの値とその場観測の値の差は平均で、 -0.29 ± 0.65 ppbvと小さいことが分かった。また、泰安のMAX-DOASとその場観測の値の差も、 -0.01 ± 0.60 ppbvと非常に小さいことが分かった。泰安に設置した装置に関しては、MAX-DOASの測定原理より、1-2 kmよりも0-1 kmのほうが測器に近い為感度が高い^{8,13}。したがって、ここで得られた比較結果は図9bで示されている0-1 kmの値も確かな

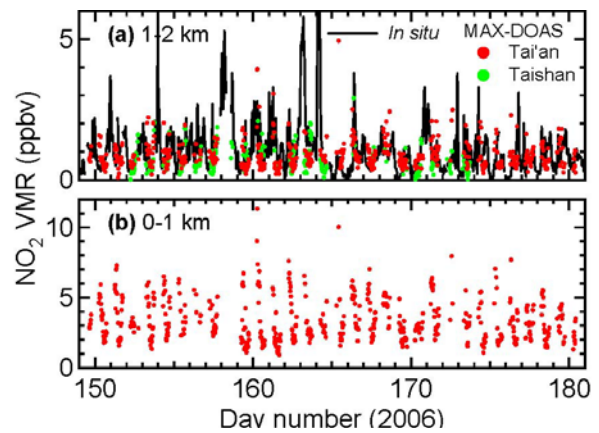


図9. (a) 泰安(赤)と泰山(緑)に設置したMAX-DOASにより測定された1-2 kmの層内の平均NO₂混合比。黒は泰山山頂(標高およそ1.5 km)のNO₂のその場観測データ。(b) 泰安に設置したMAX-DOASにより測定された0-1 km層内の平均NO₂。

ことを示す。さらに、対流圏中のNO₂は境界層内にほとんど存在していること、MAX-DOASでは2 km以上の高度分布も考慮していることから、MAX-DOASで測定されたNO₂対流圏カラム量は衛星データを検証するために十分な確度を持っていることが確認された。

次に、泰安のMAX-DOASで測定された対流圏NO₂カラムをOMIの値と比較した。泰安からの緯度経度が0.3度以内のOMIデータを選んだところ、その条件を満たすMAX-DOAS/OMIのペアは10例見つかった。緯度経度の一致基準を0.1度まで絞ると、4例まで減ることが分かった。

緯度経度の一致基準として0.3度を用いた場合、MAX-DOASとOMIの対流圏NO₂カラムデータのあいだには明瞭な相関関係が見られなかった。しかし、0.1度を用いると正の相関が見出された(図10)。このことは、NO₂は空間的に非常に不均一であるために、より精密に対流圏NO₂の衛星データを検証するには、この程度の厳しい一致基準が必要であることを示す。0.1度を一致基準としたときの差(OMI - MAX-DOAS)の平均値(±標準偏差)は、 $(+1.6 \pm 0.6) \times 10^{15} \text{ molecules cm}^{-2}$ (+20±8%)であった。したがって、OMIデータには $1.6 \times 10^{15} \text{ molecules cm}^{-2}$ (約20%)の正のバイアスがあることが分かった。しかしながら、見積もられた誤差は図8の値の範囲よりかなり小さいので、図8で示されている東アジアにおける対流圏NO₂の空間分布はほぼ正しいことが分かった。

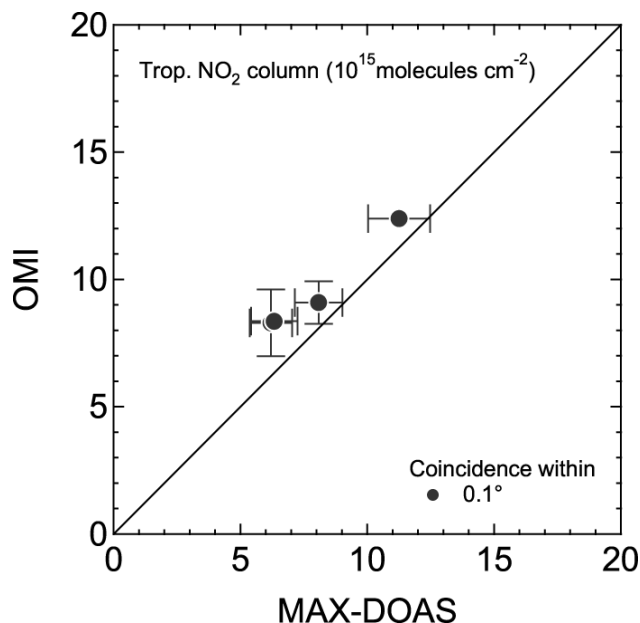


図10. MAX-DOASとOMIが測定した対流圏NO₂カラムの相関図。両者の観測地点の一致基準として緯度経度0.1°を用いたときの相関関係。

2) 衛星観測・数値モデル・地上観測を用いた対流圏NO₂の季節変化・年々変動パターンの解析

本研究では、独立行政法人国立環境研究所が地方公共団体から提供を受けている地表NO₂の地上観測(一般環境大気測定局・自動車排出ガス測定局)データによる衛星データの比較検証を行った。この地上観測では、測定方法が吸光光度法(湿式測定法)から化学蛍光法(乾式測定法)に移行されつつあるが、測定法の差による解析結果への影響を防ぐため、データ蓄積のある吸光光度法による測定データのみを使用することにした。

日本上空においてGOMEのNO₂対流圏カラム濃度デ

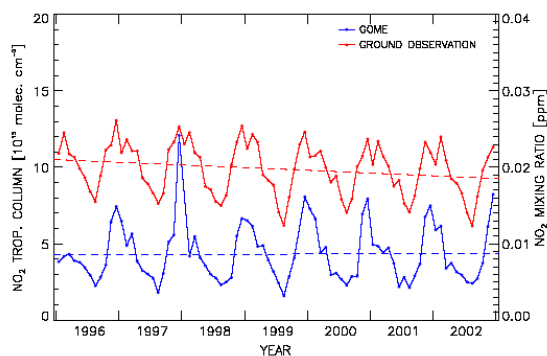


図11. 1996年1月-2002年12月に日本で測定されたGOMEの対流圏NO₂カラム濃度(下、縦軸左)および地上観測による地表NO₂濃度(上、縦軸右)の時系列プロット。破線は経年変動を表す。

一タと地上観測で得られた地表濃度データとの比較を行うことでGOMEデータの検証を行った。GOMEデータと地上観測データの単位は異なるが、ともに秋に急激に値が高くなり、春にゆっくりと減少する非対称の変化を示し、お互いの季節変化の傾向が良く一致していた(図11)。両者は強い相関を示すことから、GOMEは地表付近のNO₂に対して感度があり、その分布を良く捉えていることが分かった。

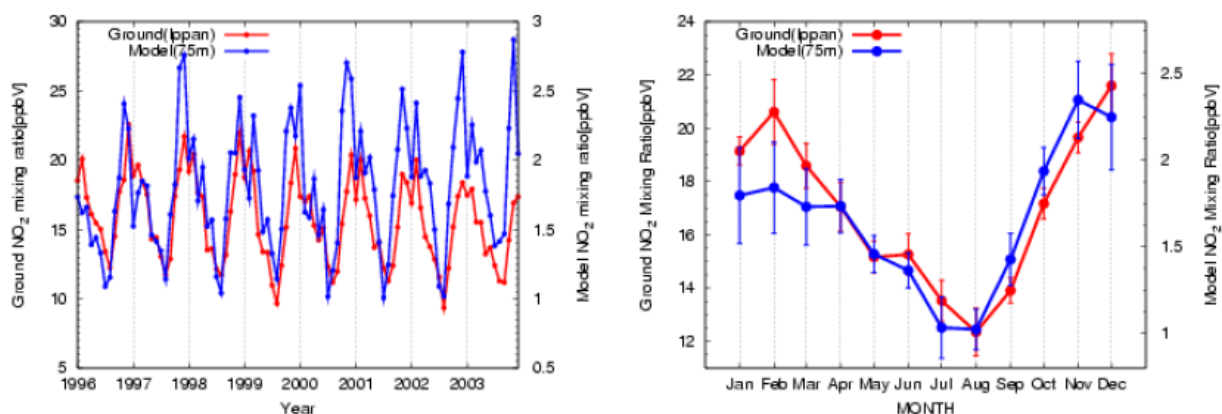


図12. 1996年1月～2003年12月の地上観測（一般局）によるNO₂濃度（縦軸左）および数値モデルによる高度75mでのNO₂濃度（縦軸右）の経年変化と季節変化。

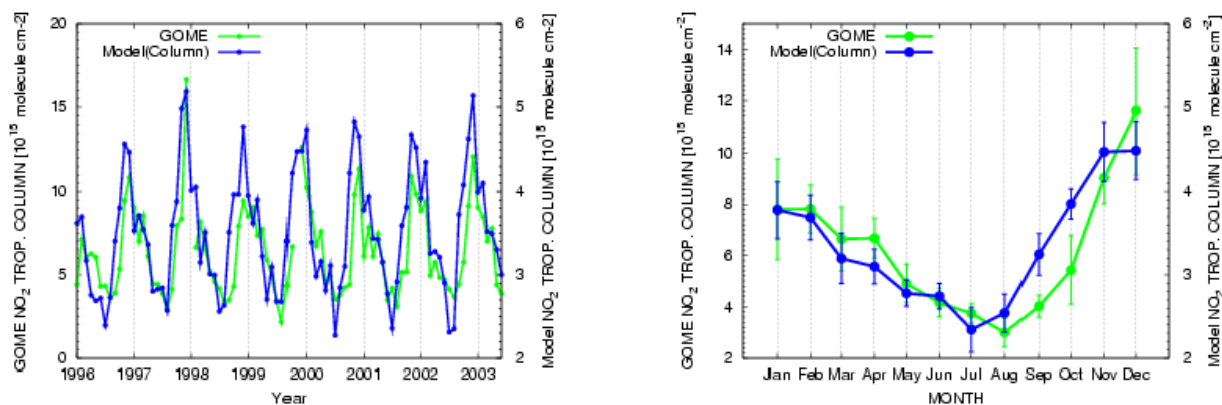


図13. 1996年1月～2003年6月の衛星観測による対流圏NO₂カラム量（縦軸左）および数値モデルによる対流圏NO₂カラム量（縦軸右）の経年変化と季節変化。

次に、日本におけるNO₂の振る舞いを知るために、地上観測データの解析を行った。日ごとの変化をみると、多くの方が休んでおり、自動車（ディーゼル車）の移動も少ないであろう正月、お盆、ゴールデンウィークなどで値が毎年低くなっていた。しかし、日変動をみると人間活動だけではなく、他の要因により濃度が高くなる場合があることがわかった。日本における季節変化は非対称であり、その季節変化には地域依存性がみられた。

これらの結果を踏まえて、地上観測・衛星観測データを数値モデルと比較した。モデルは九州大学の領域モデル¹⁴⁾を用いた。まず、地上観測と数値モデルを比較したところ、数値モデルは地表濃度の季節変化を定性的に再現した(図12)。次に、衛星観測と数値モデルを比較したところ、衛星から測定された対流圏カラム量でも地上観測で見られるような季節変化を示した(図13)。数

値モデルを用いて対流圏カラムに占める高度毎の寄与率を調べると、境界層下部(0-2.5 km)に90%以上が集中していたことが分かった。このことから定性的には衛星で観測された対流圏カラムの季節変化は、地表付近の濃度の季節変化に大きな影響をうけていると考えられ、衛星観測は地上観測のNO₂の変化を捉えていることが分かった。

3) 日本周辺における対流圏オゾンカラムの衛星データの解析

衛星観測から得られた3種類の対流圏オゾンカラム濃度データを相互比較するとともに、オゾンゾンデデータとの比較も行って衛星データを検証した(図14)。

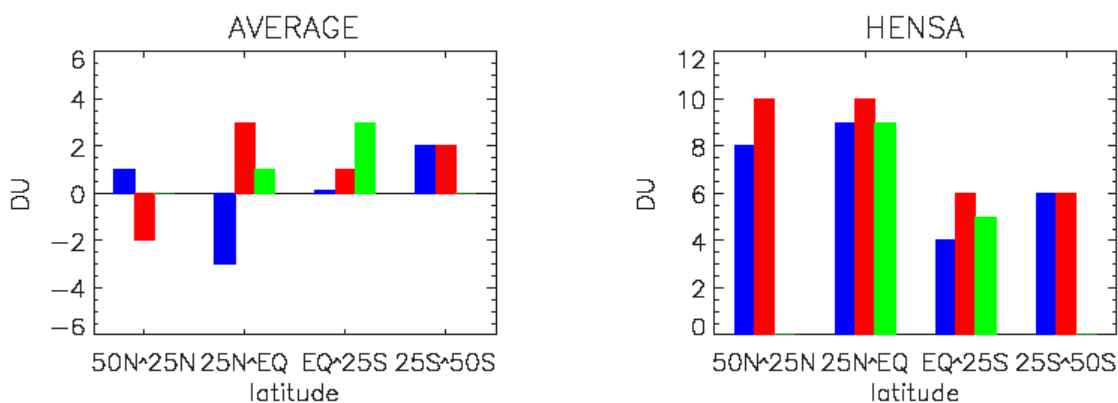


図14. 各衛星の対流圏オゾンカラム濃度データとオゾンゾンデデータの差の(左)平均値と(右)標準偏差。差は月平均値について計算され、緯度帯別に表示されている。図中の緯度帯ごとに、左からGOME, Cloud slicing, TORについての値が示されている。

その結果、衛星データ間の差は各衛星データの誤差の範囲内に収まっていた。また、ランダム誤差も数DU程度と小さいことが分かった。バイアスは緯度に依存していなかったが、ランダム誤差は南半球に比べて北半球で大きいという緯度依存が見られた。これは、北半球では対流圏オゾンカラム濃度の変動が激しいことに起因していると考えられる。

それら3つの衛星データのうち、オゾンゾンデデータと最も良く一致していたGOMEデータ(GOME-O₃)をさらに詳しく解析した。GOME-O₃データは先見情報(a priori)として与えた値よりもオゾンゾンデデータに有意に近づいていることが分かった。日本上空におけるGOME-O₃データには平均で、3 DU(約10%)の正のバイアスがあり、5-9 DU(約15-30%)のランダム誤差があることが分かった。このように、GOME-O₃データは誤差が比較的小さく、対流圏オゾンの挙動を理解する為に有効であることが分かった¹⁵⁾。図15に日本のオゾンゾンデ4地点における対流圏オゾン気柱量の月平均値の時系列を示す。いずれの地点においても良好な一致が得られている。

この結果を踏まえて、GOME-O₃データを用いて対流圏オゾンの季節変化を解析した結果、人間

活動が盛んな北半球中緯度で夏季にピークが見られた（図15）。これは、対流圏内でのオゾンの光化学生成過程が夏季に卓越しているためだと考えられる。また北半球の春季には、人間活動の最も盛んな地域からその風下側に高濃度の対流圏オゾン量が観測された（図16）。これは、春季には対流圏オゾンの寿命が十分長いので、効率よく長距離輸送されるためだと考えられる。降水量と対流圏オゾン量の振る舞いを比較した結果、バイオマス燃焼が盛んに起こる乾期に対流圏オゾンの増加が見られた。

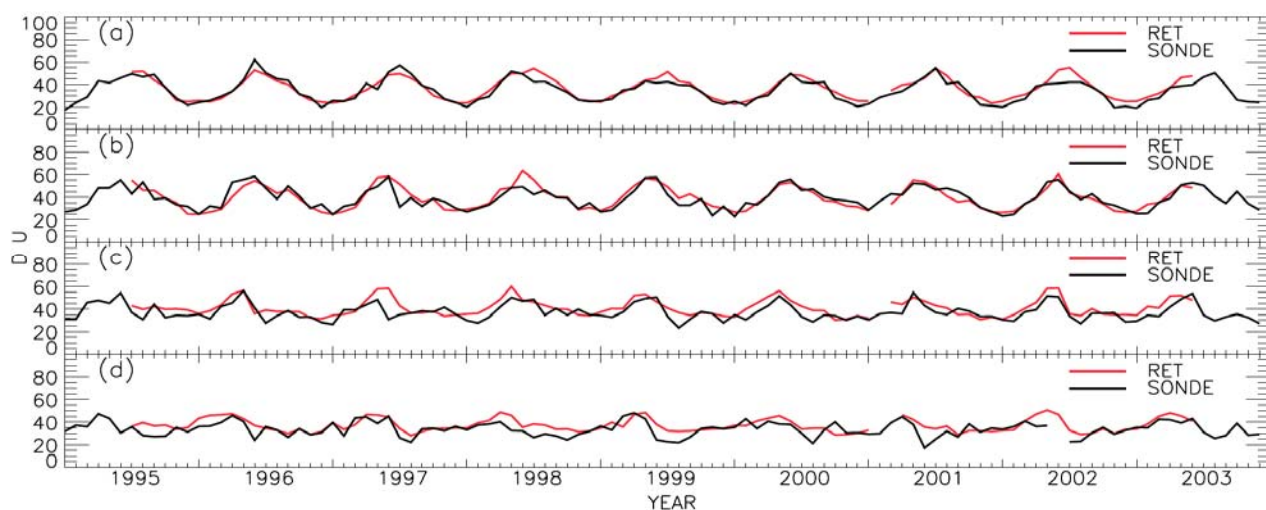


図15. 日本の4地点におけるオゾンゾンデ観測による対流圏オゾンカラム量(SONDE)とGOMEで導出された対流圏オゾンカラム量(RET)の月平均値の時系列を示す。

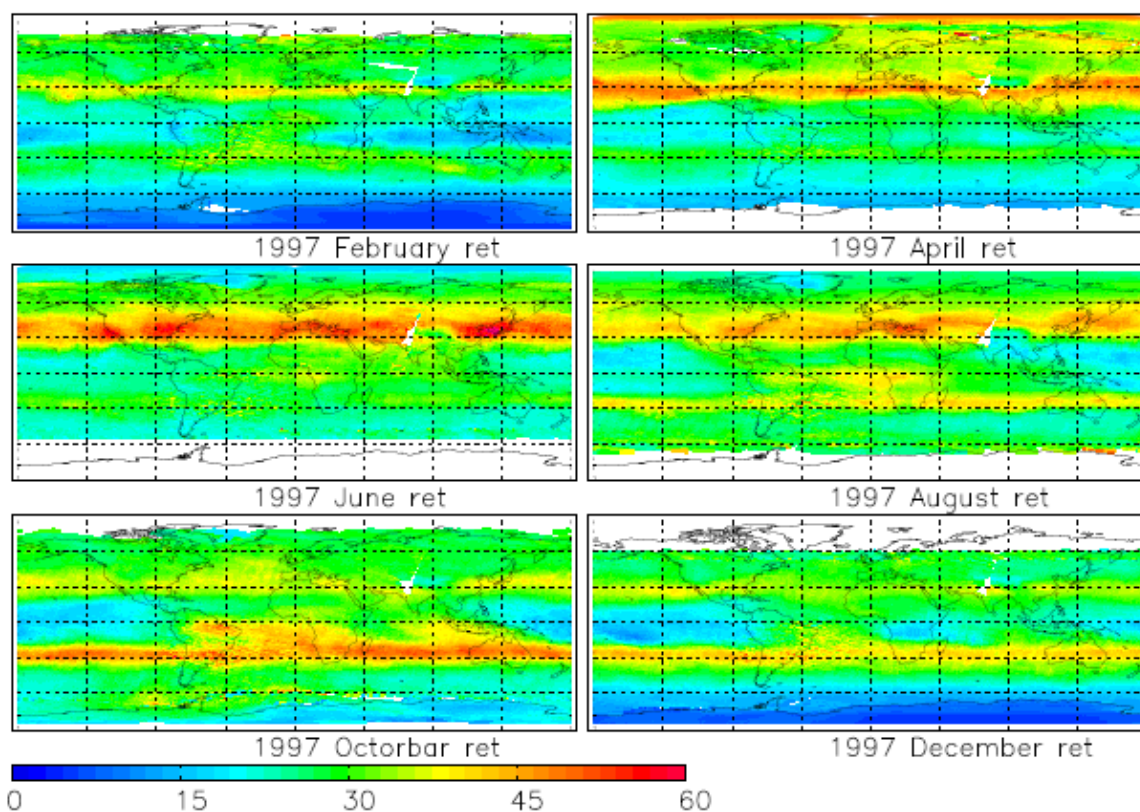


図16. 1997年2月、4月、6月、8月、10月、12月の対流圏カラム量の全球分布。

4) 日本付近における対流圏オゾンの長期トレンド

日本国内(札幌・つくば、鹿児島・那覇)で実施されているオゾンゾンデデータを用いて、流跡線解析に基づく空気塊分類を適用した対流圏オゾンの長期トレンド解析を行った。まず、Naja and Akimoto[2004]¹²⁾と同様の手法を用いて、空気塊の起源をユーラシア、中国汚染域、太平洋、日本に分類し、4地点における起源別の寄与率を調べた。その結果、札幌では1年を通して約70%がユーラシア起源、鹿児島・那覇では約40%が中国汚染域起源、つくばでは約30%が中国汚染域起源で最も寄与率が大きいことが分かった。そこで、札幌ではユーラシア起源、つくば、鹿児島、那覇では中国汚染域起源と分類されたオゾンゾンデデータのみを取り出し対流圏オゾンの長期トレンドを調べた。対流圏オゾンは長期傾向に比べて、季節変動が卓越しており、季節変動を考慮せずに長期傾向を求める事は困難であるため、オゾン生成が活発であるAMJJ(4-7月)とオゾン生成が不活発であるDJF(12-2月)に分けて解析を行った。図17に示されているように、札幌・つくば、鹿児島では1980年までは増加、その後横這いもしくは減少傾向であり、Naja and Akimoto[2004]¹²⁾で示された傾向が続いていることが分かった。また、2007年の那覇では高濃度の対流圏オゾンが頻繁に観測されており、その結果として2000年以降の長期傾向が上昇傾向になっていることが分かった。

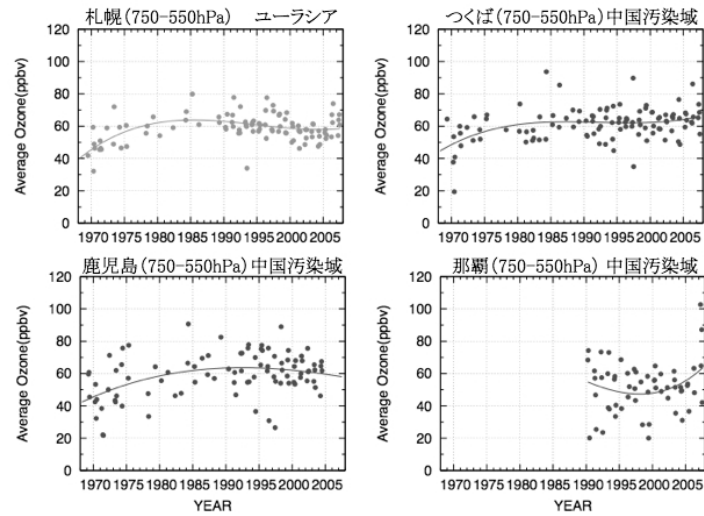


図17 750-550hPaの4, 5, 6, 7月における札幌のユーラシア空気塊、つくば、鹿児島、那覇の中国汚染域空気塊のオゾンの長期変動。点は月平均のオゾン濃度、実線は最小二乗法による3次関数のフィッティングである。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

平成17年度に開発し、衛星データの検証に極めて有効であることが確認されたMAX-DOAS装置による観測を、平成18年6月に中国華北平原で実施した。MAX-DOASデータを使って、世界で初めて、華北平原における対流圏NO₂カラムの最新の衛星データ(OMIデータ)の検証を行った。OMIデータには 1.6×10^{15} molecules cm⁻² (約20%)の正のバイアスがあることが分かった。他方、長期観測を行ったGOMEセンサーの対流圏NO₂カラムデータを領域モデルや地上観測と比較し、定性的には3者が示す季節変化・年々変動のパターンは良く一致することが分かった。また、GOMEの対流圏オゾンカラムデータをオゾンゾンデデータや他の衛星データと比較し、GOMEのオゾンデータには3DU(約10%)の正のバイアスがあることが見積もられた。オゾンゾンデデータの長期データを解析し、札幌、つくば、鹿児島では対流圏オゾン濃度の増加速度が近年鈍化していることが分かった。その一方で、那覇では2000年以降、高濃度イベントが頻繁に観測されたことが分かった。これらの成果は、これまで困難であった衛星データ等とモデルの定量的な比較に道を開き、モデルの検証研究を格段に発展させるものと期待される。

(2) 地球環境政策への貢献

本研究で開発・実施しているMAX-DOAS装置による観測は、衛星データとの比較を通じてアジア域における大気汚染ガス・エアロゾルに対する衛星データの精度・信頼性を高める。衛星データを解析して得られた成果も組み合わせることによって、現在打ち上げられている欧米の対流圏化学センサー(SCIAMACHY, OMI, GOME-2)からの大気汚染ガス・エアロゾルのアジア域におけるデータ利用を促進し、アジア越境大気汚染及び大気汚染・温暖化共制御・共便益の議論に対する社会的

関心を喚起し、国際的議論において我が国の発言力を増大させる社会的効果が期待される。一方で、MAX-DOAS法は大気汚染ガス・エアロゾルの観測を同時に実現する低コスト型観測網に最適である。本研究で得られた成果は、そういった新たな観測網を東アジア域に展開してWMO/GAWなどの国際的観測網の大きな観測空白域を埋めるような次世代観測網を実現させる為の科学的な基礎材料となりうる。さらには、我が国における対流圏化学衛星センサ開発の技術的検討に道を開き、これまで国際的に大きく後れをとっている我が国の対流圏化学衛星センサーの打ち上げに向けて、社会的関心を喚起することが期待される。特に、我が国にとって今後10-20年の中期的将来において深刻となることが予測されている、アジアからの越境大気汚染を抑止する国際的抑止戦略の一助として、アジア大気汚染衛星の議論へ繋がり得ることが期待される。

6. 引用文献

- (1) Platt, U., Differential optical absorption spectroscopy (DOAS), Air Monitoring by Spectroscopic Techniques, edited by M.W. Sigrist, John Wiley&Sons, Inc., New York, 127, 27-84, 1994
- (2) Levelt, P.F., et al., The Ozone Monitoring Instrument, IEEE Trans. Geosci. Remote Sens., 44, 5, 1093-1101, 2006
- (3) Richter, A., and J.P. Burrows, Tropospheric NO₂ from GOME measurements, Adv. in Space Res., 29, 1673-1683, 2002
- (4) Richter, A., et al., Changes in tropospheric NO₂ levels observed from space by GOME and SCIAMACHY, Nature, 437, 129-132, 2005
- (5) Fishman, J., et al., Global distribution of tropospheric ozone from satellite measurements using the empirically corrected tropospheric ozone residual technique: Identification of the regional aspects of air pollution, Atmos. Chem. Phys., 893-907, 2003
- (6) Ziemke, J.R., et al., A 25-year data record of atmospheric ozone in the Pacific from Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) cloud slicing: Implications for ozone trends in the stratosphere and troposphere, J. Geophys. Res., 110, D15105, doi:10.1029/2004JD005687, 2005
- (7) Liu, X., et al., Ozone profile and tropospheric ozone retrievals from the Global Ozone Monitoring Experiment: Algorithm description and validation, J. Geophys. Res., 110, D20307, doi:10.1029/2005JD006240, 2005
- (8) Irie, H., et al., First retrieval of tropospheric aerosol profiles using MAX-DOAS and comparison with lidar and sky radiometer measurements, Atmos. Chem. Phys., 8, 341-350, 2008
- (9) Irie, H., et al., Validation of OMI tropospheric NO₂ column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 8, 8243-8271, 2008
- (10) Iwabuchi, H., Efficient Monte Carlo methods for radiative transfer modeling, J. Atmos.

Sci., 63, 9, 2324-2339, 2006

(11) Wagner, T., et al., Comparison of Box-Air-Mass-Factors and Radiances for Multiple-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) Geometries calculated from different UV/visible Radiative Transfer Models, Atmos. Chem. Phys., 7, 1809-1833, 2007

(12) Naja, M., and H. Akimoto, Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: analysis of long-term ozonesonde data over Japan, J. Geophys. Res., 109, D21306, 2004

(13) Frieß, U., et al., MAX-DOAS O₄ measurements: A new technique to derive information on atmospheric aerosols: 2. Modeling studies, J. Geophys. Res., 111, D14203, doi:10.1029/2005JD006618, 2006.

(14) Uno, I., et al., Systematic analysis of interannual and seasonal variations of model-simulated tropospheric NO₂ in Asia and comparison with GOME-satellite data, Atmos. Chem. Phys., 7, 1671-1681, 2007.

(15) Noguchi, K., et al., Validation and comparison of tropospheric column ozone derived from GOME measurements with ozonesondes over Japan, SOLA, 3, 041-044, doi:10.2151/sola.2007-011, 2007.

7. 国際共同研究等の状況

MAX-DOASの解析に使用した放射伝達モデルは、ドイツ・ハイデルベルグ大学(Dr. T. Wagner)主導の下で欧州のプロジェクト(ACCENT)の一環として実施された放射伝達モデル国際相互比較で検証された。衛星データは、NASAのDISCサーバや、ドイツ・ブレーメン大学(Dr. A. Richter、Dr. Burrows)、アメリカ・ハーバード大学(Dr. X. Liu、Dr. K. Chance)から入手し、各機関と共同で解析された。さらに、最新のOMIデータを検証するにあたり、我々のプロポーザルがNASAのAura Validation Data Centerに受理され、密接な連携の下で検証研究が実施でき、現在もその関係が継続している。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

1) Wagner, T., et al., Comparison of Box-Air-Mass-Factors and Radiances for Multiple-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy (MAX-DOAS) Geometries calculated from different UV/visible Radiative Transfer Models, Atmos. Chem. Phys., 7, 1809-1833, 2007

2) Noguchi, K., et al., Validation and comparison of tropospheric column ozone derived from GOME measurements with ozonesondes over Japan, SOLA, 3, 041-044, doi:10.2151/sola.2007-011, 2007.

- 3) Uno, I., et al., Systematic analysis of interannual and seasonal variations of model-simulated tropospheric NO₂ in Asia and comparison with GOME-satellite data, Atmos. Chem. Phys., 7, 1671-1681, 2007.
- 4) Inomata, S., et al., Technical note: Determination of formaldehyde mixing ratios in polluted air with PTR-MS: laboratory experiments and field measurements, Atmos. Chem. Phys., 8, 273-284, 2008.
- 5) Irie, H., et al., First retrieval of tropospheric aerosol profiles using MAX-DOAS and comparison with lidar and sky radiometer measurements, Atmos. Chem. Phys., 8, 341-350, 2008.
- 6) Irie, H., et al., Validation of OMI tropospheric NO₂ column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 8, 8243-8271, 2008.

<査読付論文に準ずる成果発表> (社会科学系の課題のみ記載可)

なし

<その他誌上発表(査読なし)>

なし

(2) 口頭発表(学会)

- 1) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, and H. Iwabuchi, Radiative transfer model for MAX-DOAS observations in Japan, Workshop on radiative transfer modelling, Heidelberg, June 2005
- 2) 金谷有剛、入江仁士、秋元肇、小型分光器を用いたMAX-DOAS装置の製作と横須賀での試験的NO₂連続測定、大気化学討論会、奈良県奈良市、2005年6月
- 3) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、岩淵弘信、MAX-DOAS装置による対流圏NO₂の観測ーカラム量導出アルゴリズムと放射伝達モデルの開発ー、第2回対流圏微量成分衛星解析の会、京都府京都市、2005年9月
- 4) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, and H. Iwabuchi, Tropospheric NO₂ measurements by MAX-DOAS, The First International Seminar on High-mountain Air Quality Monitoring Technology and Simulation, Tai'an, October 2005
- 5) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、岩淵弘信、MAX-DOAS装置による対流圏NO₂の観測(1)ーカラム量導出アルゴリズムの開発ー、日本気象学会、兵庫県神戸市、2005年11月
- 6) 岩淵弘信、入江仁士、金谷有剛、秋元肇、MAX-DOAS装置による対流圏NO₂の観測(2)ー放射伝達モデルを用いたAMFの計算、日本気象学会、兵庫県神戸市、2005年11月
- 7) 太田絵美、瓜田直美、野口克行、林田佐智子、Andreas Richter、John P. Burrows、GOMEのデータを用いた対流圏NO₂分布の解析ー発生源からの輸送に着目してー、日本気象学会、兵庫県神戸市、2005年11月

- 8) 瓜田直美、太田絵美、野口克行、林田佐智子、J. R. Ziemke, X. Liu, K. Chance、衛星観測から得られた対流圏オゾンデータの検証、日本気象学会、兵庫県神戸市、2005年11月
- 9) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、岩渕弘信、MAX-DOAS装置による対流圏中のNO₂とO₄の観測、大気化学シンポジウム、愛知県豊川市、2006年1月
- 10) 太田絵美、瓜田直美、野口克行、林田佐智子、A. Richter, J. P. Burrows、東アジア域の汚染源からの輸送に着目した対流圏NO₂分布の解析、大気化学シンポジウム、愛知県豊川市、2006年1月
- 11) 瓜田直美、太田絵美、野口克行、林田佐智子、J. R. Ziemke, X. Liu, K. Chance、GOMEセンサーで得られた対流圏オゾンの検証と初期解析結果、大気化学シンポジウム、愛知県豊川市、2006年1月
- 12) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, and H. Iwabuchi, MAX-DOAS measurements of tropospheric NO₂ in Japan, Third International DOAS Workshop, Bremen, Germany, March 2006
- 13) 金谷有剛、入江仁士、秋元肇、マルチトラック分光を採用したMAX-DOAS法による対流圏NO₂カラム濃度測定装置の開発、地球惑星科学連合2006年大会、千葉県幕張市、2006年5月。
- 14) 瓜田直美、野口克行、林田佐智子、衛星観測から得られた対流圏オゾンデータの検証と短期変動解析、地球惑星科学連合2006年大会、千葉県幕張市、2006年5月。
- 15) 金谷有剛、入江仁士、秋元肇、MAX-DOAS法による対流圏微量成分の測定：CHOCHO、H₂Oの検出とIO検出可能性、大気化学討論会、山形県山形市、2006年6月。
- 16) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、岩渕弘信、MAX-DOAS法による対流圏NO₂とエアロゾルの同時観測、日本地球化学会、東京都世田谷区、2006年9月。
- 17) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、岩渕弘信、MAX-DOAS法による対流圏NO₂とエアロゾルの同時観測、日本気象学会、愛知県名古屋市、2006年10月
- 18) 伊藤春菜、野口克行、林田佐智子、鶴野伊津志、A. Richter, J.P. Burrows、衛星及び地表観測で得られた日本におけるNO₂季節変化の数値モデルによる比較、日本気象学会、愛知県名古屋市、2006年10月
- 19) 柴崎登紀子、野口克行、林田佐智子、須藤健悟、A. Richter, J.P. Burrows、太田絵美、衛星観測データと化学気候モデルを用いた東アジア域からの窒素酸化物の長距離輸送の事例解析、日本気象学会、愛知県名古屋市、2006年10月
- 20) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、王自発、中国泰山集中観測：MAX-DOAS法によるエアロゾル・NO₂の同時観測、大気化学シンポジウム、愛知県豊川市、2007年1月
- 21) 有山悠子、林田佐智子、野口克行、中澤高清、青木周司、菅原敏、町田敏暢、C. Frankenberg、SCIAMACHYセンサによるメタンデータと地上観測データの比較解析、大気化学シンポジウム、愛知県豊川市、2007年1月
- 22) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, and Z. Wang, Simultaneous observations of tropospheric NO₂ and aerosols by MAX-DOAS during the Taishan intensive field campaign, The Second International Seminar on High-mountain Air Quality Monitoring Technology and Simulation,

Beijing, February 2007

- 23) Irie, H., Y. Kanaya, and H. Akimoto, MAX-DOAS: the new ground-based measurements of NO₂ and aerosols, The 3rd Symposium on Asian Ozone Pollution in Eurasian Perspective, Yokohama, April 2007
- 24) Noguchi, K., H. Itoh, T. Shibasaki, S. Hayashida, I. Uno, A. Richter, J. P. Burrows, Comparison between GOME and surface measurements of tropospheric NO₂ over Japan, European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2007, Vienna, April 2007
- 25) 有山悠子、林田佐智子、野口克行、町田敏暢、中澤高清、青木周司、菅原敏、SCIAMACHY センサによるメタンデータと航空機観測・地上観測データの比較解析、日本地球惑星科学連合 2007年大会、幕張、2007年5月
- 26) Irie, H., and H. Akimoto, Synergistic use of satellite and ground-based observations to understand air quality issues, Norway-Japan Symposium on Polar, Space, and Climate Research, Tokyo, May 2007.
- 27) Irie, H., Synergistic use of satellite and ground-based observations to understand air quality issues, CITES2007, Tomsk, Russia, July 2007.
- 28) Noguchi, K., H. Itoh, T. Shibasaki, S. Hayashida, I. Uno, A. Richter, J. P. Burrows, Comparison between tropospheric NO₂ vertical columns by GOME and surface NO₂ mixing ratio by the air-monitoring network over Japan, Tropospheric NO₂ measured by satellites (ACCENT/TROPOSAT-2 workshop), De Bilt, September 2007.
- 29) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、衛星・地上観測の複合利用による大気汚染物質の時空間分布の研究—静止衛星観測に期待すること—、日本気象学会、北海道札幌市、2007年10月.
- 30) 伊藤春奈、野口克行、柴崎登紀子、林田佐智子、鶴野伊津志、A. Richter、J.P. Burrows、人工衛星による対流圏NO₂観測と大気環境常時環視局による地表NO₂観測との比較、日本気象学会、北海道札幌市、2007年10月.
- 31) 川岸諒子、川添夕子、林田佐智子、野口克行、オゾンゾンデ観測から得られた対流圏オゾンの解析—空気塊分類に基づく解析結果—、日本気象学会、北海道札幌市、2007年10月.
- 32) 川岸諒子、川添夕子、林田佐智子、野口克行、流跡線解析ツールSPIRALの開発と対流圏オゾン解析への応用、日本気象学会、北海道札幌市、2007年10月.
- 33) 柴崎登紀子、野口克行、伊藤春奈、林田佐智子、OMIセンサで得られた対流圏NO₂気柱量の初期解析結果、日本気象学会、北海道札幌市、2007年10月.
- 34) 入江仁士、金谷有剛、秋元肇、谷本浩志、王自発、衛星センサーOMIの対流圏NO₂カラムデータの検証—中国華北平原で実施したMAX-DOAS観測との比較—、大気化学討論会、愛知県名古屋市、2007年11月.
- 35) 瓜田直美、川岸諒子、川添夕子、林田佐智子、野口克行、東アジアに着目した対流圏オゾンの解析 2. 衛星観測から得られた季節変化、大気化学討論会、愛知県名古屋市、2007年11月.
- 36) 川添夕子、川岸諒子、瓜田直美、林田佐智子、野口克行、東アジア域に着目した対流圏オゾ

ンの解析 1. 空気塊分類によるオゾンゾンデデータの解析、大気化学討論会、愛知県名古屋市、2007年11月.

37) Irie, H., Validation of OMI tropospheric NO₂ column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006, International Seminar on Air Quality Measurements and Simulations in China, Yokohama, Japan, November 2007.

38) Irie, H., Y. Kanaya, H. Akimoto, H. Tanimoto, Z. Wang, J.F. Gleason, and E.J. Bucsela, Validation of OMI Tropospheric Nitrogen Dioxide Column Data Using MAX-DOAS Measurements Deep Inside the North China Plain in June 2006, AGU Fall Meeting, San Francisco, December 2007.

39) 入江仁士、OMI対流圏NO₂データの検証、第4回ゼヒュロスの会(対流圏微量成分衛星解析研究会)、奈良県奈良市、2008年2月

40) 林田佐智子、瓜田直美、川岸諒子、川添夕子、野口克行、オゾンゾンデで観測された空気塊の起源と対流圏オゾンの季節変化の対応、第4回ゼヒュロスの会(対流圏微量成分衛星解析研究会)、奈良県奈良市、2008年2月

41) 野口克行、柴崎登紀子、伊藤春奈、林田佐智子、GOME/SCIAMACHY/OMIで観測された東アジア域における二酸化窒素の時空間分布、第4回ゼヒュロスの会(対流圏微量成分衛星解析研究会)、奈良県奈良市、2008年2月

42) 有山悠子、衛藤聡美、林田佐智子、野口克行、SCIAMACHY観測によるメタンデータの検証とアジアの水田からのメタン放出について、第4回ゼヒュロスの会(対流圏微量成分衛星解析研究会)、奈良県奈良市、2008年2月

43) 瓜田直美、川岸諒子、川添夕子、林田佐智子、野口克行、GOMEで観測された東アジア域対流圏オゾンの季節変動について、第4回ゼヒュロスの会(対流圏微量成分衛星解析研究会)、奈良県奈良市、2008年2月

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催(主催のもの)

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

(6) その他

なし