

B-8 地球温暖化に係わる対流圏オゾンと大気微量成分の変動プロセスに関する研究

(3) 対流圏エアロゾルの組成と光学特性に関する研究

研究代表者 資源環境技術総合研究所 大気圏環境保全部
大気計測研究室 吉山秀典

資源環境技術総合研究所

大気圏環境保全部 大気計測研究室 白波瀬雅明・小暮信之・大井明彦
環境影響予測部 広域域間環境研究室 古賀聖治
(委託先) 同志社大学工学部 伊藤正行

平成8～10年度合計予算額 24,000千円
(平成10年度予算額 7,911千円)

[要旨]

対流圏に浮遊する微粒子による地球温暖化への影響を検討することを目的として、微粒子の化学組成や光学特性、さらに地球環境への影響についてのシミュレーションを検討する。

対流圏のエアロゾル中の硫黄分を高感度で測定するため、硫黄分分析装置(SCD)を適用できるように設計試作した。最初、SO₂ガスにより性能を検討した結果、最低測定限界1.2ppbを確認した。さらに、硫黄元素を含んでいる硫酸アンモニウムエアロゾルを発生させて、濃度測定を行って性能を確認した。

粒子の特性測定については個々の粒子にレーザー光を照射して得られる散乱光の角度分布を迅速に測定する装置を開発した。この装置を用いることにより、1個の粒子の測定時間は40ミリ秒と非常に短時間であるため、多数の粒子を測定できる利点があり、未知の微粒子の粒径と屈折率を推定できる。PSL標準粒子と蚊取り線香の微粒子を発生させて散乱光を測定し、粒径と屈折率を推定した。

地球環境への影響についてシミュレーションについては、大気エアロゾルが変動した場合に生じるグローバルな太陽放射量および地表面温度の変化を数値解析により求め、その際引き起こされる地球環境への影響について考察した。最初に計算結果と実験観測値を比較することによって、LOWTRAN7の妥当性の検証をおこない、成層圏エアロゾル変動シナリオを設定し、そのシナリオに従ってグローバルな太陽放射量および地表面温度の変化を検討した。

[キーワード] エアロゾル、組成分析、光学特性、気温変動、シミュレーション

1. 序

地球規模の大気放射平衡を考える場合、雲をはじめとする大気中エアロゾル粒子の動態を無視するわけにはいかない。地表面上空20kmぐらいまでの成層圏には、火山噴火により吹き上げられた微粒子の火山灰やSO₂又はNO₂などのガスが光化学反応などにより、新たに生成した微粒子が浮遊している。しかし、成層圏エアロゾルは全量が少ないのにもかかわらず、寿命が著しく長いた

め、分布も地球規模に広がり、結果的に成層圏におけるエアロゾル粒子の濃度、複素屈折率に変動が起こると、全球年平均地表面照度が変化し、地表面気温は全地球的規模で変動する。

これに対し、対流圏エアロゾルは寿命が数週間と短いために、その分布は時間的にも空間的にも限定される。しかしながらその量は、成層圏エアロゾルと比べればはるかに多い。対流圏エアロゾルの発生が継続的かつ地球規模である場合、あるいは発生量に長期的な傾向があれば、地球規模での放射平衡について考える時には大きな問題となってくる。

地球温暖化対策として、この微粒子の組成や濃度、それにもなう光学特性などを把握した上で、将来的予測に役立てることは重要と考える。これらの微粒子は太陽光を遮り、地表面温度を下げることになる。これらの要因としては微粒子の複素屈折率と濃度が考えられる。

2. 研究目的

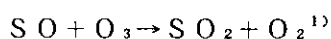
これらの視点から、本研究では対流圏エアロゾル粒子の主な組成の一つと考えられる硫黄を含んだ微粒子、例えば硫酸エアロゾルについてリアルタイムでの測定法を確立するとともに複素屈折率などの光学特性を推定する方法の確立を目差す。また、実際の微粒子をデータベースとして、考えられる範囲で微粒子の光学特性や濃度を仮定し、全地球的な地表面放射照度変動から生じる地球規模の気温変動について検討する。

3. 研究方法と結果

A. 組成分析

①硫酸ミスト分析装置

化学発光法をベースとしたSCDを試作した【図1】。全体はポンプで試料大気を200ml/minで吸引するタイプにし、前段においてSO₂をSOに変換させる反応炉を備えている。この反応炉において硫黄化合物をSO₂にし、さらに過剰の水素ガスによりSOに還元させ、その一部を発光セルに導く。後段では下記の反応によりO₃と反応させる。



SOがSO₂に酸化される時、紫外光(350nm)を発光するので、この光を光電子倍增管で検出する。

②感度校正

試作したSCDの検出限界などの校正について検討した結果を【図2】に示す。二酸化硫黄を希釈して測定した結果、最大濃度95ppb、最低濃度1.6ppbを検出し、直線性の良い校正曲線を得た。ノイズを考慮すると1.2ppbまで測定が可能であることが分かった。

また、再現性について90.2ppbのSO₂ガスにより検討した結果を【図3】に示す。3回の繰り返し測定においても同じ値を示していることから再現性は良く、かつ安定していることが分かる。

③硫酸アンモニウムエアロゾルの測定

噴霧乾燥法により硫酸アンモニウムのエアロゾルを発生させて本装置による硫黄元素の濃度を測定し、静電式エアロゾル分析器と比較した結果を【図4】に示す。濃度は硫黄元素の単位体積当たりの個数濃度を示しており、エアロゾル粒子の粒径分布を測定したEAAと本装置には良い相関があることが分かる。なお、硫黄元素を含まない、硝酸アンモニウムエアロゾルは検出

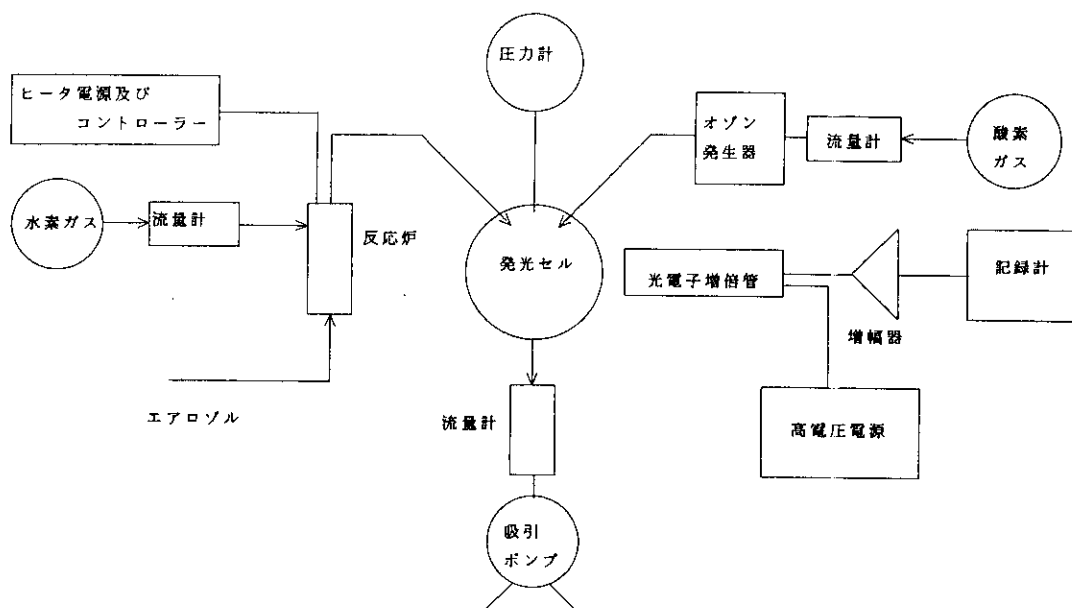


図1 硫酸エアロゾル測定装置の概略図

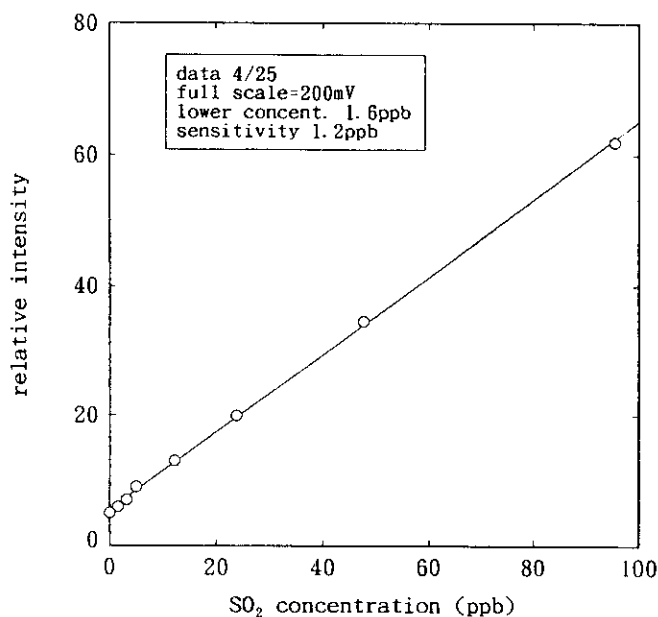


図2 SO₂ガスによる校正直線

④圧力による影響

本装置による化学発光分析では、一酸化硫黄とオゾンとを反応させる際のセル内の圧力に影響がある。そこで、吸引ポンプの直前に圧力調節バルブを取り付け圧力を調整できるようにして、一定濃度のSO₂ガスと反応させて発光強度を測定して、影響を調べた結果を【図5】に示す。この図から発光セル内の圧力を低くする程、指示値は高くなっており、感度が上昇することを示している。

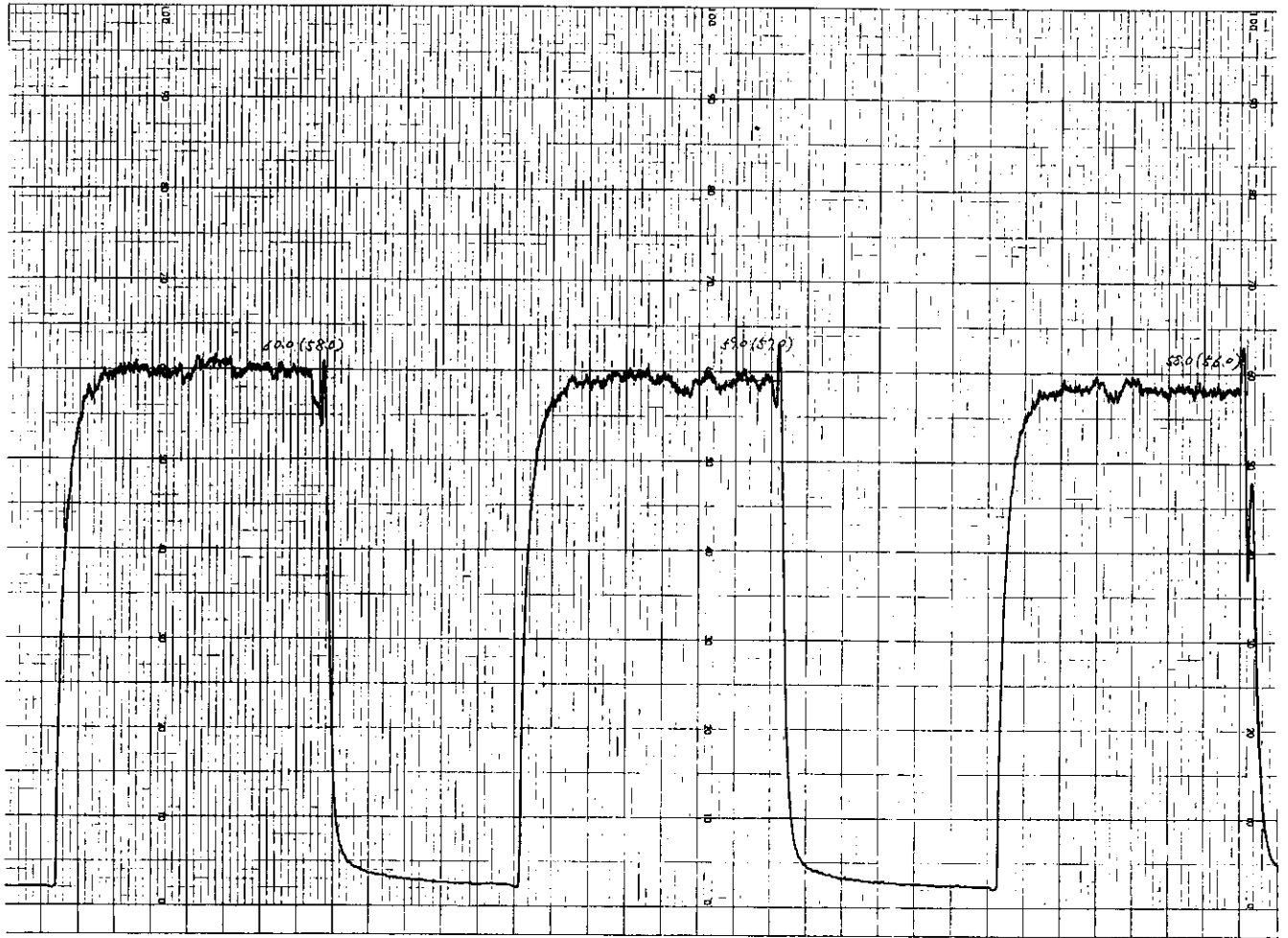


図3 検出器の繰り返し精度と安定性

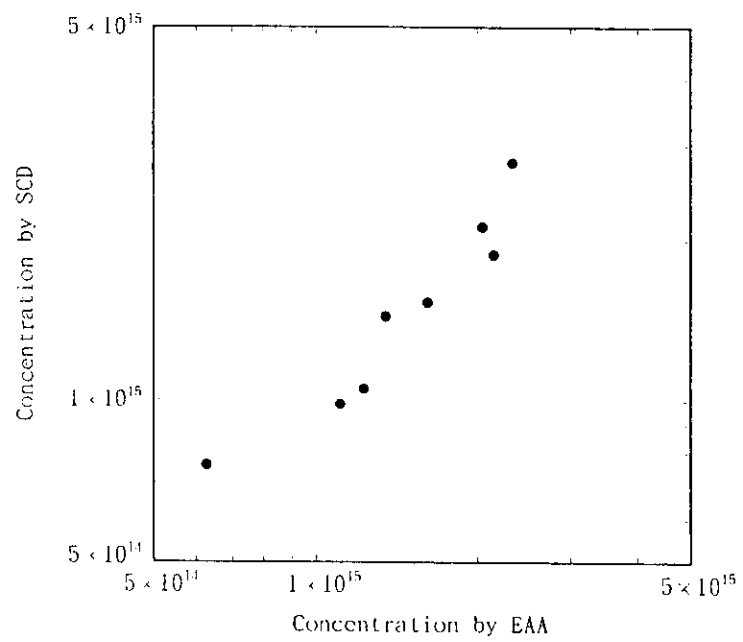


図4 硫酸アンモニウムエアロゾルの比較測定

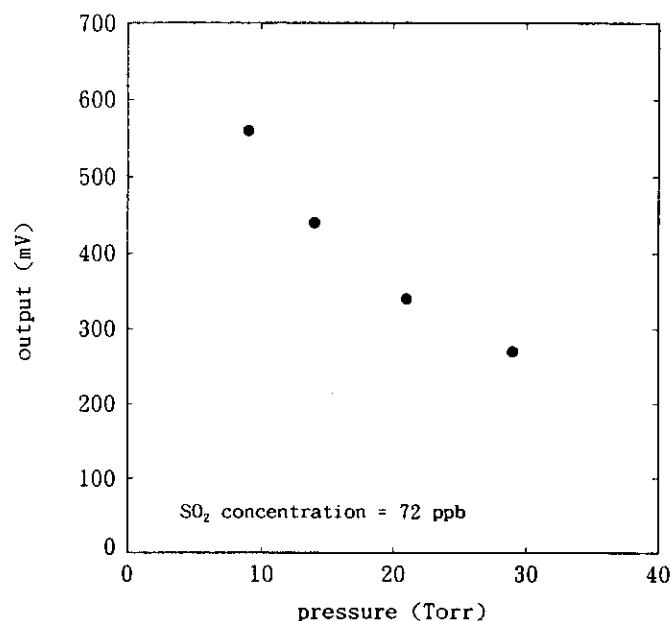


図5 発光セル内の圧力による感度

⑤妨害物質

大気中に浮遊する微粒子中の硫黄分を測定する際に、妨害物質としての SO_2 ガスはフィルターを装着した検出器としない検出器を比較することにより微粒子中の硫黄分が測定される。しかし、その他のガスによる妨害物質と考えられる一酸化窒素については20.8ppb、アンモニアについては2.02ppmの濃度で試験した結果、妨害を受けなかった。

B. 粒子の光学特性の推定

①はじめに

大気中に浮遊する微粒子を研究対象とし、地球規模での温暖化や気象変動を推定する場合、粒子の成分も要因であるが、光学的な立場から、粒径と屈折率は最も重要な要素となる。

微粒子の粒径と屈折率を推定することを目的として、フォトダイオードアレイを用いて、一個一個の微粒子の散乱光の角度分布を測定する装置を開発した。この装置は直線偏光のレーザー光を微粒子に照射し、散乱光の角度53~127度の範囲に渡って、レーザー光の偏光面に垂直及び平行な平面における散乱強度を測定する。試料としてPSL標準粒子及び蚊取り線香の煙粒子を測定し、このデータと計算値とを比較することにより粒径と屈折率の実数項を推定する。

②散乱光の角度分布測定装置

試作した装置の検出部の概略を【図6】に示す。光源はアルゴンレーザーで、平面鏡により垂直上方に進行するようにした。検出部に入るレーザー光は検出領域において焦点を結ぶように焦点距離30mmの凸レンズにより絞り込まれる。エアロゾルは吸引ポンプによりサブチェンバ内に導入する。吸引を一時停止した後、さらにサブ吸引ポンプによりエアロゾルを上方のサブチェンバから検出領域に導く。エアロゾル中の粒子は絞り込まれたレーザー光の中を下方の吸引ノズルへと

移動する。光束を下方に向かって通過する単一粒子はレーザ光を散乱させる。この散乱光強度の角度分布をレーザ光と平行に配置したリニアイメージセンサを用いて測定する。このセンサのフォトダイオードピッチは $25\mu\text{m}$ 、高さは 2.5mm 、フォトダイオード数は512であり、粒子との間隔から測定散乱角度の範囲は $53\sim 127$ 度である。本装置には吸引ポンプ以外に駆動部がないなど構造が簡単な測定装置であることも特徴である。

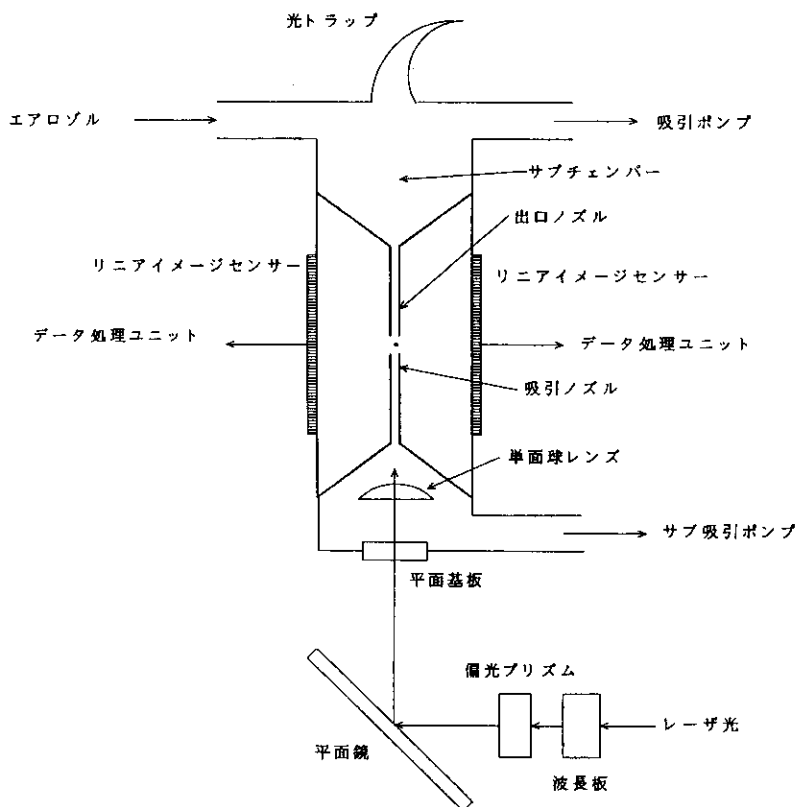


図6 散乱角度分布測定器の概略図

a. P S L 標準粒子の測定例

公称値 $1.696\mu\text{m}$ の P S L 標準粒子を用いて散乱光を検出し、Micの理論値と比較して、粒径を推定した。標準粒子としての P S L 粒子は噴霧法により発生させた。

ア、垂直モード

3種類のPSL粒子について直線偏光レーザ光による散乱で、偏光面に垂直な面での測定結果を【図7】に示す。検出素子の数が512と非常に多いことから、滑らかな散乱曲線が得られており、かつ、3つの測定データの極値を示す角度が非常に良く一致していることが分かる。この滑らかさについて、1回の測定粒子数を増加させるため、検出素子の数を512から256と半分にしても、十分な分解能の散乱光を測定できるものと考えられる。

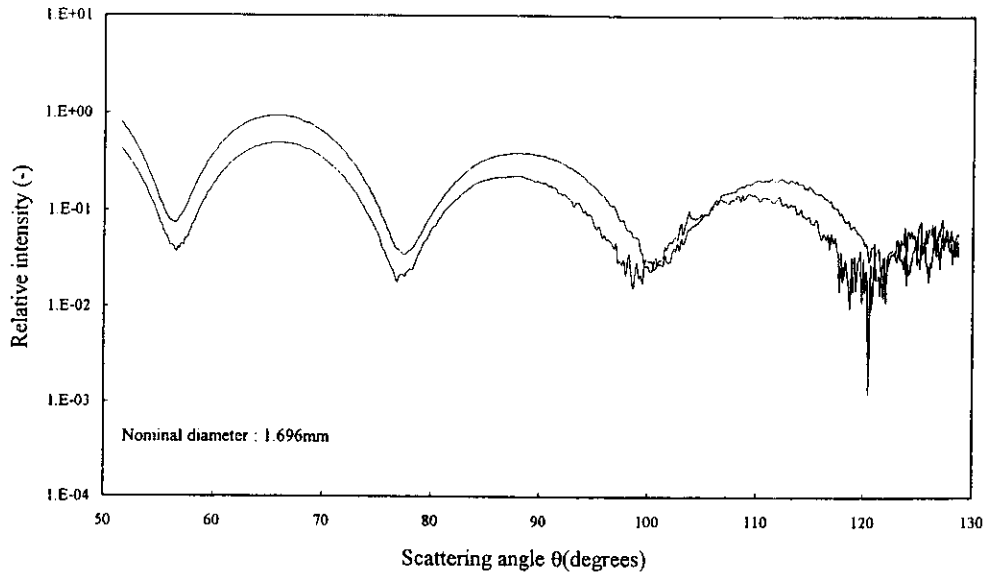


図7 偏光面に垂直な面での散乱角度分布測定結果

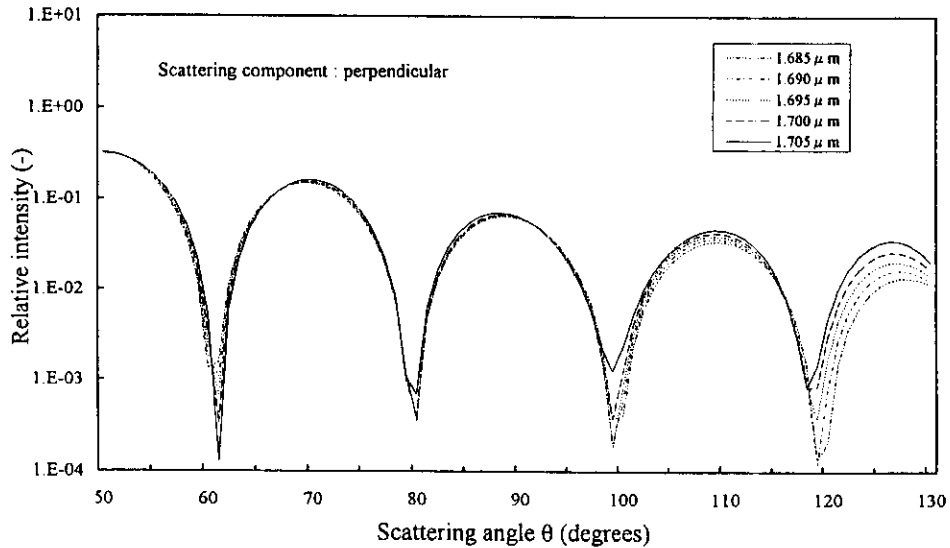


図8 偏光面に垂直な面での散乱角度分布理論値

光源の偏光面に垂直な面で散乱角度分布の計算結果の中で、表示値 $1.696\mu\text{m}$ の粒子について、屈折率を $(1.5954, 0.0)$ ²⁾とし、粒径の表示値の前後 1.685 から $1.705\mu\text{m}$ までの結果を【図8】に示す。この図から、散乱角度 115 度より前方の範囲においては、相対的分布が全く同じ形をしており、特定の角度における散乱強度を測定することにより粒径が推定できる。しかし、粒径が変化しても極値を示す散乱角度は変化しないため、角度から粒径を推定することは困難であることが分かる。

イ、平行モード

直線偏光光源による散乱光で、偏光面に垂直な偏光の角度分布から単一粒子の粒径を推定することはできないことが分かったので、平行な偏光からの推定について検討した。

表示値が $1.696\mu\text{m}$ のPSL粒子の測定例を実線で、計算結果を点線で表して【図9】に示す。

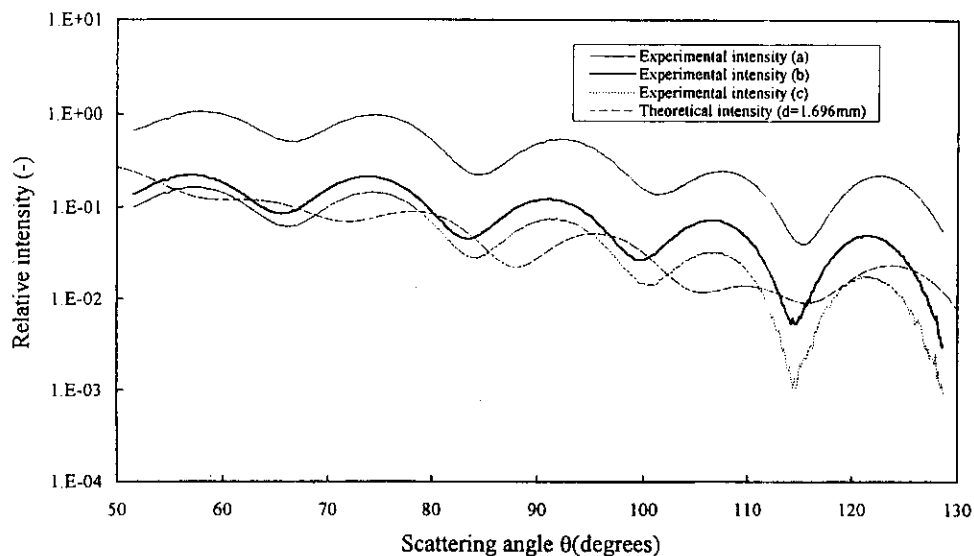


図9 偏光面に平行な面での散乱角度分布測定結果と理論値

測定結果は3つとも極値を示す角度は非常に良く一致している。この図で表示値の $1.696 \mu\text{m}$ の計算値を示す点線と比較すると、極値の数は共に9つで良く一致しているものの、計算値の極大値と極小値の差は測定値より少なく、なだらかな分布である。特に115度の極小値は測定値と比較して著しく少ないなど、いくつかの特徴において異なることが明白であるなど、この計算値と明らかに異なる散乱角度分布を示していることが分かる。これは粒径が表示値の $1.696 \mu\text{m}$ ではない結果と考えられる。

そこで、粒径 $1.645 \sim 1.665 \mu\text{m}$ まで計算し、散乱光の角度分布の極値を示す角度を理論値と回帰分析した結果、 $1.655 \mu\text{m}$ が測定値と最も一致する粒径であることが分かった。この $1.655 \mu\text{m}$ の散乱角度分布と測定値の1つ、さらに $1.696 \mu\text{m}$ を【図10】に併せて示す。

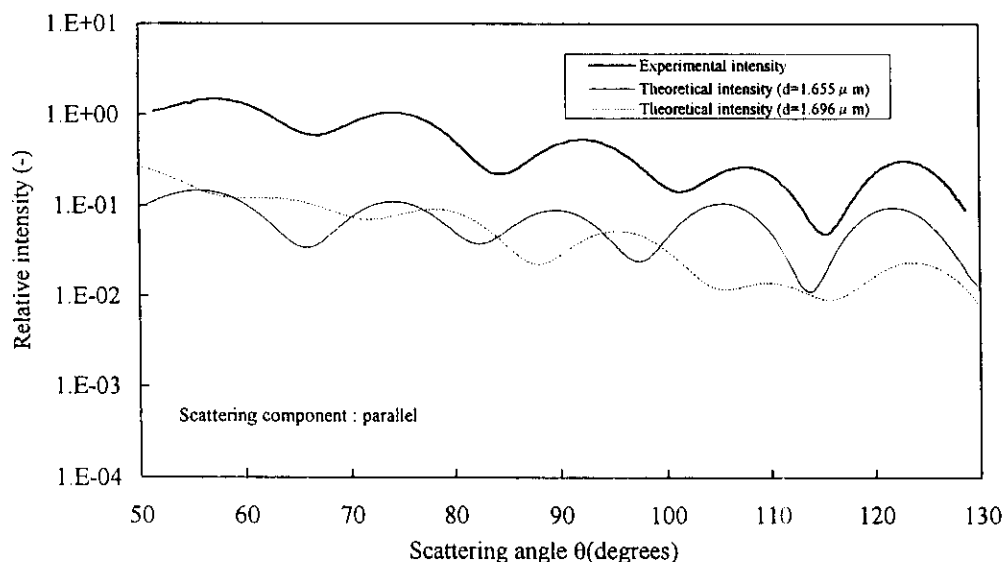


図10 PSLの $1.696 \mu\text{m}$ の測定結果と $1.655 \mu\text{m}$ の理論値

b. 蚊取り線香の微粒子測定

ア、測定例 1

直線偏光レーザー光による散乱で、偏光面に垂直な面での測定結果を【図 1 1】に示す。粒径を推定するため、初期値としての屈折率の実数項を1.51~1.57と変化させ、また、虚数項は0.017として、かつサイズパラメータ（粒径とレーザー光の波長の比率 = $2\pi r/\lambda$ ）の範囲を5.1~5.4と変化させて散乱光の角度分布を計算した。この内、サイズパラメータ = 5.2の場合について【図 1 2】に示す。この図から2つの極大値と2つの極小値が存在しているが、極大値については計算値の変化に非常に接近している。しかし、極小値は計算値は鋭い落ち込みがあるが、測定値は比較的なだらかである。また、屈折率の実数項を変化させても極値を示す角度には差ほど違いはないが、粒径の変化によりわずかに角度が異なっている。そこで、2つの極大値と2つの極小値を示す角度について、実測値と良く一致する大きさを回帰分析により求めた結果、サイズパラメータが5.2の場合が測定値と良く一致した。この5.2と言う値は粒径が0.852ミクロンに相当する。

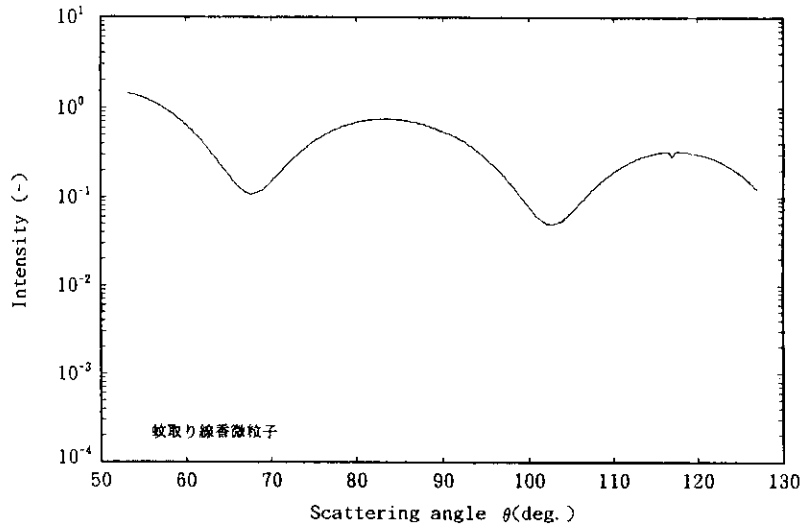


図 1 1 蚊取り線香微粒子の偏光面に垂直な面での散乱角度分布測定結果

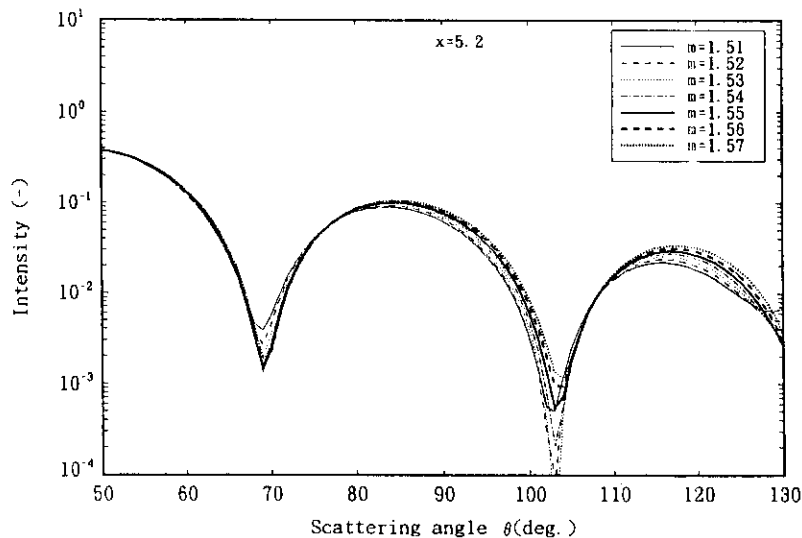


図 1 2 屈折率の変化による偏光面に垂直な面での散乱角度分布理論値

次に初期値として用いた、屈折率の実数項を推定するため、2つの極小値の比率と屈折率をプロットした結果を【図13】に示す。この図において、実測値の2.14に対応する屈折率は1.55～1.56である。このあたりは岡田の報告³⁾と比較すると、0.005大きいものであるが、ほとんど一致していると言えよう。

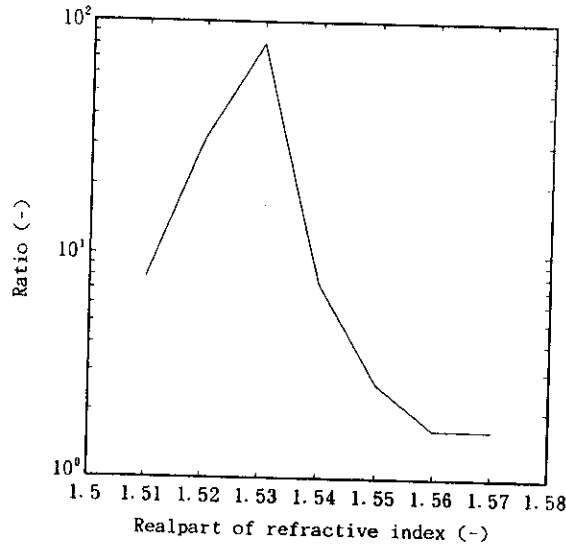


図13 屈折率の実数項の回帰結果

そこで、粒径を0.852ミクロン、屈折率の実数項を1.55と1.56、虚数項を0.017として、レーザー光の偏光面に平行な平面での散乱強度の角度分布を計算した結果と測定値を【図14】に併せて示す。測定した分布と計算した分布は良く一致していることから、推定した粒径と屈折率は妥当な値と考えられる。

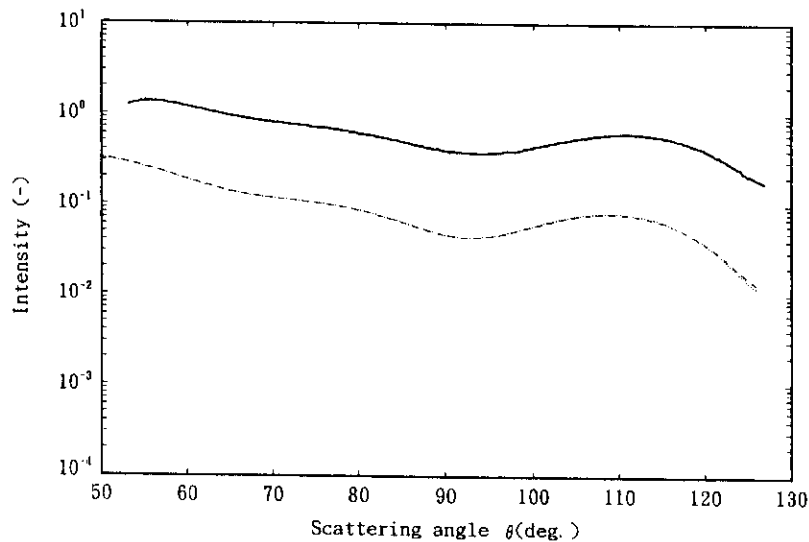


図14 偏光面に平行な面での散乱角度分布測定結果(実線)と理論値(点線)

イ、測定例2

散乱光の測定例2を【図15】に示す。この図から、極小値と極大値を示す角度が

7ヶ所あることから、先の粒子より大きいものと考えられる。この散乱パターンに非常に近いサイズパラメータと屈折率から、極値を示す角度と測定値を回帰分析し、最も良く接近している粒径と屈折率を一機に求めた結果、サイズパラメータは7.7、屈折率は1.55が最適であることが分かった。この値は先の値と一致しており、推定方法が正しいことを証明したものと考えられる。

そこで、この粒子について同時に測定したレーザ光の偏光面に平行な平面における散乱パターンと求められたファクターを用いて計算した散乱パターンを【図16】に併せて示す。この図からも推定した粒径と屈折率が正しいことが更に判明した。

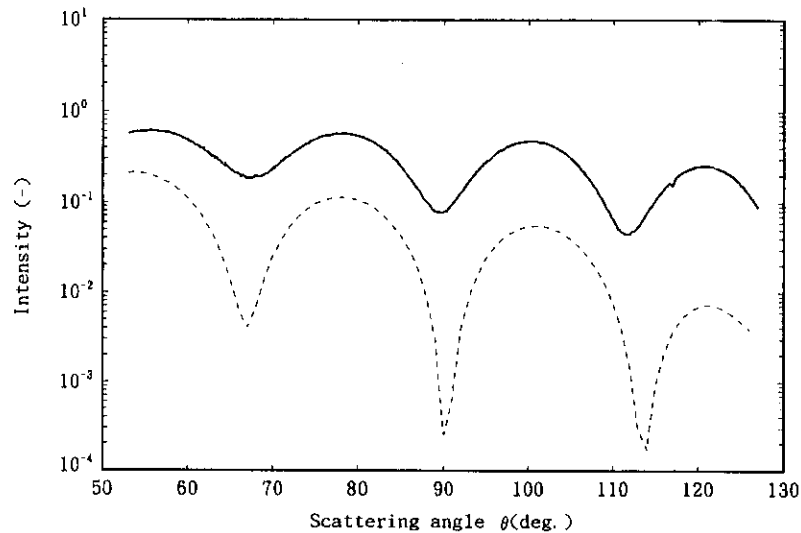


図15 偏光面に垂直な面での散乱角度分布測定結果（実線）と理論値（点線）

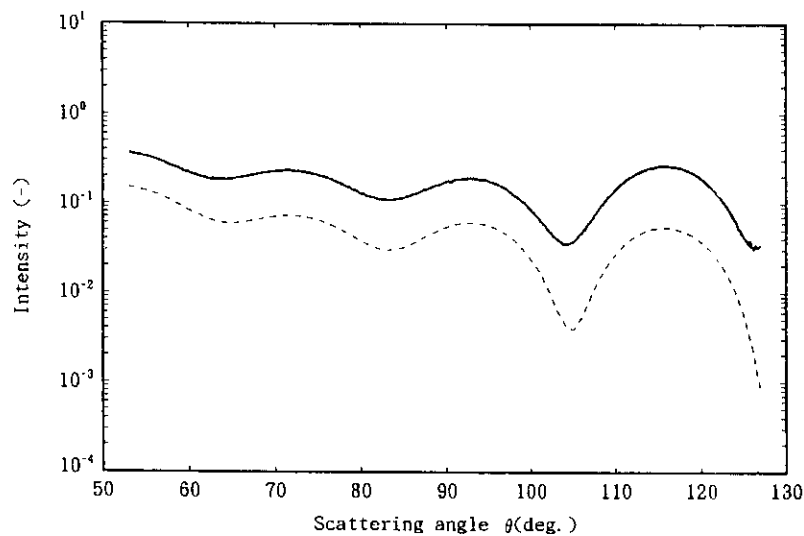


図16 偏光面に平行な面での散乱角度分布測定結果（実線）と理論値（点線）

C. 対流圏エアロゾルの量的変動に起因する地球規模気温変動シミュレーション

①はじめに

大気エアロゾルの発生源は、宇宙塵のような地球圏外のものや高層大気中の二次元的生成

粒子を除くと、ほとんどは、地表と海面、およびその近傍の大気中であるので、粒子の多くは高度10km以下の対流圏に存在している。これらの対流圏エアロゾルの発生源・生成機構は、土壌粒子、海塩粒子、気体から転化した二次粒子（主に硫酸粒子）・燃焼によって生成される粒子（カーボン粒子）に大別できる。対流圏エアロゾルの全量は、成層圏エアロゾルに比べればはるかに多いが、重力沈降や降水による浄化作用のため、寿命は数週間と短い。そのため、全地球的に分布する成層圏エアロゾルとは異なり、時間的にも空間的にも限定される。このような理由から、気温は局所的に変動すると予想できる。しかしながら、対流圏エアロゾルの発生が、継続的かつ地球規模である場合、またその発生量に長期的な傾向があれば、地球規模での放射平衡について考える時には大きな問題となってくる。

これらの視点から、本研究は対流圏エアロゾル粒子の増大とそれに伴う全地球的な地表面放射照度変動から生じる地球規模気温変動の大きさを定量的に評価し、対流圏エアロゾル粒子の量的・質的変動が地球規模気温変化に及ぼす影響を数値解析的に探求することを主な目的とする。さらに研究全体の信頼性を確認するために放射平衡計算コードである、LOWTRAN、MODTRAN3.7計算コードの雲モデル、エアロゾルモデルの信憑性を、特にエアロゾル・雲の量的変動という視点から実験的・理論的に考察した。

②放射平衡計算コード

本研究には主にアメリカのAir Force Geophysics Laboratory (AFGL)で開発されたLOWTRAN7⁴⁾計算コードを用いた。放射伝達計算コードにはLOWTRAN7の他にも、MODTRAN、FASCODE2などがあるが、計算に要する時間、エアロゾルモデルの妥当性などから本計算ではLOWTRAN7を選択した。（1997年の初頭にModtranがModtran3に改訂されたのに伴い、Lowtran7はModtran3に吸収されることになった。現在のModtran3の最新バージョンはModtran3.7_Nov (97/12)であってオゾン、エアロゾルモデルに大幅な改良が加えられ、本研究でも最終年度に一部これを適用した。）このコードは、大まかな機能としては波数 $0\sim 50000\text{cm}^{-1}$ （波長 $0.2\mu\text{m}\sim$ 無限大）の領域を、計算ステップ幅 20cm^{-1} の低分解スペクトルで大気透過率や放射輝度を計算する。計算モードとして大気透過率・熱放射輝度・散乱光放射輝度・直達太陽光放射照度の4つがある。LOWTRAN7では光の屈折や地球の屈曲も考慮されている。また、多重散乱放射輝度の計算には、2方向近似を用いている。放射伝達量は、与えられた波数ごとに計算するが、その内容は計算モードによって異なっている。今回の放射照度計算で使用した散乱光放射輝度モードでは、散乱太陽光放射輝度 L_s 、熱放射輝度（ $L_{air} + L_g$ ）、地表面反射放射輝度ならびにこれらの和である全放射輝度が求められる。散乱太陽光放射輝度 L_s は、大気中の気体分子やエアロゾルによって散乱された太陽放射に関連する。また直達太陽光放射照度モードを用いれば、直達太陽光放射照度 E_d とともに大気圏外における太陽光放射照度をも計算しうる。

大気モデルとしては、つぎの6つのモデル—熱帯・夏季中緯度・冬季中緯度・夏季高緯度・冬季高緯度・1976 U.S. 標準大気—がある。各モデルには、気温、気圧、密度と13種の気体成分比(H_2O , O_3 , N_2O , CH_4 , CO , O_2 , CO_2 , NO , NO_2 , NH_3 , SO_2 , HNO_3 , N_2)が、 $0\sim 100\text{km}$ の高度の関数として与えられている。LOWTRAN7内のエアロゾルモデルは、高度 $0\sim 2\text{km}$ の大気境界層、 $2\sim 10\text{km}$ の対流圏、 $10\sim 30\text{km}$ の成層圏、 $30\sim 100\text{km}$ の上層大気の4つの高度領域に対して定義されている。さらに、それぞれの領域に対してエアロゾルの高度分布モデルと光消衰モデルが定義されている。

高度分布のモデルは、エアロゾルによる光の消衰効率 S_{ext} の高度分布を示したものである。一方、光の消衰に関するモデルは、消衰効率 S_{ext} ・吸収効率 S_{abs} ・非対称因子 g など⁵⁾の波長に対する変化を示したものであり、波長範囲 $0.2 \sim 300 \mu m$ のうち代表的な 68 波長に対して与えられている。消衰効率・吸収効率の値は波長によって異なるが、このコードでは基準値として波長 $0.55 \mu m$ を用いて、その消衰効率が 1.0 になるように正規化されている。非対称因子は、散乱方向の角度特性を示すファクターで、完全な前方散乱において 1、等方性散乱において 0 である。

③ LOWTRAN7 によるエアロゾルの量的・質的変動計算とパラメータ

対流圏エアロゾルについて放射平衡を考える場合、地球放射（赤外放射）についても考慮する必要がある。この赤外放射を考慮することで、対流圏エアロゾルの増加が、成層圏エアロゾルの増加の場合と同様に、地球規模での気温低下につながることは一概にはいえない。なぜなら対流圏エアロゾル増加により太陽光が散乱・吸収され減少し、地表面気温を下げる効果と、逆にエアロゾルは赤外放射に対して吸収性を持っているため、温室効果ガス同様の作用をもたらす地表面気温を上げる効果の相反する二つの効果を考えなければならないからである。よって地表面気温が上昇するか低下するかは二つの効果のどちらが支配的であるかによる。これらの視点から、エアロゾルの発生が継続的かつ地球規模であり、その発生量が長期的であると仮定し、エアロゾル粒子が、対流圏（地表面高度 $3 \sim 10 km$ ）に均一にバックグラウンド濃度の 2 倍存在するとした場合の計算を行った。この計算におけるエアロゾルの構成物質・濃度差については、標準状態（Standard-1）および Case 1 ~ Case 3 までを設定し、それらについてまとめたものを Table 1 及び Table 2 に示した。比較対称となる標準状態（Standard）での全球・年平均地表面照度 E を計算する際のエアロゾルモデルには、清澄モデル（水平視程 $23 km$ ）を用いた。エアロゾル粒子の複素屈折率モデルは、Volz の測定に基づくものを使用した。この場合、光の波長が $0.6 \mu m$ より小さい時は吸収がなく（複素屈折

Table 1 1976 U.S. Atmospheric Standard Models used as a basis of the computation of Atmospheric Optical Properties (Standard-1)

1976 U.S. Standard Model			
Ht. (km)	Pressure (hPa)	Temp. (K)	Density (gm^{-3})
0	1.013×10^3	288.2	1.225×10^3
1	8.988×10^2	281.7	1.112×10^3
2	7.950×10^2	275.2	1.007×10^3
3	7.012×10^2	268.7	9.093×10^2
4	6.166×10^2	262.2	8.194×10^2
5	5.405×10^2	255.7	7.364×10^2
6	4.722×10^2	249.2	6.601×10^2
7	4.111×10^2	242.7	5.900×10^2
8	3.565×10^2	236.2	5.258×10^2
9	3.080×10^2	229.7	4.671×10^2
10	2.650×10^2	223.3	4.135×10^2
11	2.270×10^2	216.8	3.648×10^2
12	1.940×10^2	216.7	3.119×10^2
13	1.658×10^2	216.7	2.666×10^2
14	1.417×10^2	216.7	2.279×10^2
15	1.211×10^2	216.7	1.948×10^2
16	1.035×10^2	216.7	1.665×10^2
17	8.850×10^1	216.7	1.423×10^2
18	7.565×10^1	216.7	1.217×10^2
19	6.467×10^1	216.7	1.040×10^2
20	5.529×10^1	216.7	8.891×10^1
21	4.729×10^1	217.6	7.572×10^1
22	4.047×10^1	218.6	6.451×10^1
23	3.467×10^1	219.6	5.501×10^1
24	2.972×10^1	220.6	4.694×10^1
25	2.549×10^1	221.6	4.008×10^1
30	1.197×10^1	226.5	1.841×10^1
35	5.746×10^0	236.5	8.463×10^0
40	2.871×10^0	250.4	3.996×10^0
45	1.491×10^0	264.2	1.966×10^0
50	7.978×10^{-1}	270.7	1.027×10^0
70	5.221×10^{-2}	219.6	8.283×10^{-2}
100	3.201×10^{-4}	195.1	5.604×10^{-4}

率の虚数部は0), 0.6 μm より大きい時, 虚数部は直線的に増加し, また, 2 μm より大きい時は0.1の値を取る。

Table 2 Aerosol data in Case1 ~ Case 3

	Case 1	Case 2	Case3
Stayed Position	Troposphere (Altitude 3 ~ 10km)	Troposphere (Altitude 3 ~ 10km)	Troposphere (Altitude 3 ~ 10km)
Stayed condition	Uniform in all the world	Uniform in all the world	Uniform in all the world
Chemical composition	Carbon aerosol	aerosol for Standard-1 MODEL	Carbon aerosol
Particle Density	Standard-1 MODEL \times 2	Standard-1 MODEL \times 2	Standard-1 MODEL
Stayed term	12 months	12 months	12 months

LOWTRAN7による計算は, 全地球面を経度・緯度ともに15度ごと288個の小区分に分割し, 各季節の代表日を選択するため, 288 \times 4個の小区分についてそれぞれ行った。春・夏・秋・冬それぞれの季節について代表日の288小区分について直達太陽光放射照度 E_d ・散乱太陽光放射照度 L_d を日出から日入まで1時間ごとに計算する。 E_d および L_d を足し合わせ小区分ごとの地表面照度量を, またそれらを全地球的に総和を取り平均化することで各季節ごとの全球平均地表面照度量を求め。そして, これらを平均化することで全球年平均地表面放射照度 E を求めた。

大気モデルにおける緯度・経度の気候区分を, エアロゾルモデルにおける季節・地形を計算パラメーターとして使用した。各区分における地表面アルベドはHummelらに報告された値を使用した。計算スペクトル範囲は, 直達太陽光放射照度計算では, 太陽放射のみを考慮して3300~4000 cm^{-1} (0.25~3.03 μm)を, 散乱太陽光放射照度計算では, 太陽放射および地球放射の両者を考慮して100~40000 cm^{-1} (0.25~100 μm)とし, 刻み幅も200 cm^{-1} と設定した。また, 輻射を考慮するために地表面温度についても季節・地形を考えて設定した。また, エアロゾルの影響を直接考慮するために雲量の変動は行わなかった。このような手法で計算した標準状態での地表面平均放射量をStandard-1とした。

④計算結果と考察

Standard-1の計算結果とCase 1の計算結果をまとめたものをTable 3に示した。

Table 3 Irradiance and the change of surface temperature of Earth by Case 1

Season	Irradiance [Wm^{-2}]	
	Standard-1	Case 1
Spring	542	507
Summer	523	490
Autumn	515	497
Winter	543	507
E	531	500
ΔT [K]	-11.5	

太陽放射量の減少は約31 Wm^{-2} であった。これによる地表面の気温低下は約11.5Kであった。Case 3では全地球規模でかなりの気温低下をもたらす結果になるが, この差は現実の対流圏エアロゾルを構成する硫酸粒子とCase 1を構成する黒煙粒子の物性の違い(複素屈折率による吸収量の増加)によるものが大きいと考えられる。

次に、Standard-1とCase 2およびCase 1とCase 3を比較したものをTable 4に示した。これらは構成物質が同じであるが、エアロゾル濃度差が2倍ある時の比較である。この比較から、

Table 4 Irradiance and the change of surface temperature of Earth by Standard-1 and Case 2, Case 1 and Case 3

Season	Irradiance [Wm^{-2}]			
	Standard-1	Case 2	Case 1	Case 3
Spring	542	534	507	529
Summer	523	518	490	513
Autumn	515	511	497	505
Winter	543	536	507	530
E	531	525	500	519
ΔT [K]	-2.2		-7.0	

Standardモデルの場合は $6Wm^{-2}$ 、黒煙粒子の場合は $19Wm^{-2}$ 、それぞれエアロゾル濃度が増加した場合、太陽放射量は減少するという結果を得た。これはエアロゾル増加により、散乱光は増加するが、それ以上に直達光が遮られることを示している。また、Standardモデルより黒煙粒子の濃度変動の場合、太陽放射量が約3倍減少していることから、黒煙粒子の方が放射照度に大きな影響を与えるということがわかった。これは、黒煙粒子が太陽放射を大きく吸収するためである。これを明確にするために、Standard-1とCase 3およびCase 1とCase 2を比較したものをTable 5に示した。

Table 5 Irradiance and the change of surface temperature of Earth by Standard-1 and Case 2, Case 1 and Case 3

Season	Irradiance [Wm^{-2}]			
	Standard-1	Case 3	Case 1	Case 2
Spring	542	529	507	534
Summer	523	513	490	518
Autumn	515	505	497	511
Winter	543	530	507	536
E	531	519	500	525
ΔT [K]	-4.4		-9.3	

これらは、濃度差は同じで構成物質がStandardモデルと黒煙粒子で異なっている時、つまり、複素屈折率の虚数項が変化した時の比較である。前者は $12Wm^{-2}$ 、後者は $25Wm^{-2}$ 、Standardモデルより黒煙粒子で構成されたものの方が太陽放射量は減少するという結果が得られた。

⑤計算コードの信憑性と感度解析

雲を考慮した地球規模放射平衡計算を行なう上で、必要になってくる雲モデルおよびエアロゾルモデルの妥当性を、長期間にわたる同志社大学田辺校地での放射照度計測実験をもとに計測値と計算値を比較検討した。これらをもとに放射平衡プログラムを用いた地球規模放射平衡計算の有効性を評価・検討した結果を以下に示す。

1)MODTRAN3.7による放射平衡計算の一日平均放射照度は実測値を十分再現できる。地球規模放

射平衡計算を用いた気温変動シミュレーションでは、一日平均した放射照度を使用することから、MODTRAN3.7は気温変動シミュレーションに用いる地球規模放射平衡計算に適している。

2) 快晴の日と一日中曇りおよび雨の日の各時間での実測値と計算値の比較により、雲が直達太陽光放射照度に影響を及ぼさない場合または雲によって一日中直達太陽光が遮られている場合において、MODTRAN3.7による放射照度計算は実測値を十分再現できる。よって、上述した条件においては、雲モデルおよびエアロゾルモデルを使ったMODTRAN3.7による放射平衡計算は妥当な値を算出できる。

3) 雲によって直達光はある程度遮られるが幾分かは入射している状態においても、雲モデルを詳細に検討することにより、実測値に近づくことが判明し、より正確に実測値を再現できることがわかった。

以上のことから、雲モデルおよびエアロゾルモデルを用いたMODTRAN3.7による放射平衡計算結果の妥当性を確かめることができた。さらに、地球規模放射平衡計算におけるMODTRAN3.7に内蔵された粒子モデルの有効性も明らかにすることができた。

また、雲因子についての感度解析結果から、太陽放射に関する放射平衡計算においては、雲の厚さおよび雲の種類が、また、赤外放射に関する放射平衡計算においては、雲底高度が非常に重要な因子であることが示唆された。

4. 本研究により得られた成果

硫黄分を含む微粒子のリアルタイム測定については、SO₂ガスをサンプルとした場合、最低濃度1.2ppbを検出できることを確かめた。また、妨害物質について、一酸化窒素は20.8ppb、アンモニアガスは2.02ppmにおいても検出できないことが分かった。硫酸アンモニウムエアロゾルを測定した結果、静電式エアロゾル分析器と良い相関を示し、性能が良いことを確認した。この成果は大気環境学会誌に投稿予定である。

微粒子の光学特性の推定には、散乱光の角度分布を迅速に測定する装置を開発し、分布の極大値と極小値を示す角度から、直ちに回帰分析を行い、標準粒子のPSL粒子の粒径が公称値と異なっていることを検討したので、米国Applied Optics誌に投稿し、査読を終えた。また、蚊取り線香の煙粒子の大きさを推定でき、また、屈折率について1.55~1.56の範囲に推定できたので、エアロゾル学会誌に投稿予定である。

対流圏における大気エアロゾルの増加および消衰効率の大きいエアロゾル粒子への変化は、太陽放射量を散乱・吸収により減少させ、結果として地表面の気温を低下させるということがわかった。この結果から地球温暖化問題を考えるとき、大気エアロゾル増加は温室効果ガスを減少させることと同じ作用を引き起こす、すなわちGWP(global warming potential)が負であることを意味し、大気エアロゾルの増減は地球環境に大きな影響を与えることが示唆された。

5. 参考文献

- 1) R. L. Benner and D. H. Stedman, American Chemical Society, 61, 1268-1271(1989)
- 2) Yoshiyama, H. and Samukawa, T.: Erozoru Kenkyu, 6, 353-358(1991)(in Japanese)
- 3) T. Okada: Tabacco Sci., X VI, 172-174(1973)
- 4) F. X. Kneizys, et al.: Users guide to Lowtran7, AFGL-TR-88-0177 (1988).

5) H.C. van de Hulst: Light Scattering by Small Particles, Dover (1981).

[研究成果の発表状況]

(1)口頭発表

- ① 吉山 他:第37回大気汚染学会 D110(1996)
- ② 伊藤 他:対流圏エアロゾル粒子の量的変動に起因する地球規模気温変動シミュレーション、化学工学会第29回秋季大会講演要旨集、R320 (1996)
- ③ 伊藤 他:地球規模放射照度計算に及ぼす対流圏エアロゾル粒子の影響について、化学工学会第62年会要旨集、0213 (1997)
- ④ 吉山 他:第14回エアロゾル科学・技術研究討論会 E01(1997)
- ⑤ 西村、伊藤、小林、高野: “放射平衡から見た地球温暖化シミュレーション (1) MODTRAN 3.7コードにおける雲因子の評価”、化学工学会秋季大会 D117 (1998).
- ⑥ 吉山:計測・分析・標準研究総合推進会議、1(1999)
- ⑦ 吉山:つくば講座、(1999)

(2)論文発表

- ① H. Yoshiyama et al :Applied Optics 30, 2642~2648, (1996)
"Derivation of the aerosol size distribution from a bistatic system of a multiwavelength laser with the singular value decomposition method"
- ② H. Yoshiyama et al :Nucleation and atmospheric aerosols, 481-484(1996)
"Derivation of aerosol size distribution with a bistatic system using a multi-wavelength laser"
- ③ M. Itoh, et al. : Ion Nucleation and Growth of Sulfuric Acid-Water Aerosol Particles: Application of General Dynamic Equation, in Nucleation and Atmospheric Aerosols 1996 (Eds. M. Kulmala and P. Wagner), Elsevier., pp. 38-41
- ④ 伊藤 : エアロゾル粒子による気候変動シナリオ: 微粒化, 7, 17, 288-292(1998)
- ⑤ H. Yoshiyama et al:J. aerosol science, 29, 397-398(1998)
"Measurement of particle size distribution of aerosol by bistatic system"
- ⑥ H. Yoshiyama et al :J. of aerosol research, Japan, 14, 2(1999)(in printing)
"Measurement of particle size distribution of ambient aerosol by bistatic system"
- ⑦ H. Yoshiyama et al :Applied Optics
"A light-scattering technique for rapid, single-particle sizing"submitting
- ⑧ M. Itoh, A. Kobayashi, T. Nishimura, H. Takano, and H. Yoshiyama: "Feasibility of the Cloud and Aerosol Models in the Modtran3.7 Code for the Estimation of Global Radiation Budget", J. Aerosol Sci., in Press (1999).

(3)出願特許

- ①吉山秀典;資源環境技術総合研究所;「気体中に含まれるガス状酸化物の分析方法及びその装置」、特願平10-319379、平成10年11月10日
- ②西村隆雄、吉山秀典、中村篤志、豊原和之;「硫黄化合物の定量方法」、特願平10-250809、平成10年9月4日