

# マルチチャンネル・ライダー分光計によるエアロゾルの 蛍光スペクトルと鉛直分布の測定

## Observation of Fluorescence Spectrum and Vertical Distribution of Fluorescent Aerosols Using Multi-Channel Lidar Spectrometer

杉本伸夫<sup>1</sup>, 黄 忠偉<sup>2</sup>, 西澤智明<sup>1</sup>, 松井一郎<sup>1</sup>, Boyan Tatarov<sup>3</sup>

Nobuo Sugimoto<sup>1</sup>, Zhongwei Huang<sup>2</sup>, Tomoaki Nishizawa<sup>1</sup>, Ichiro Matsui<sup>1</sup> and Boyan Tatarov<sup>3</sup>

1 国立環境研究所, 2 蘭州大学, 3 光州科学技術院

1 National Institute for Environmental Studies, 2 Lanzhou University, China,

Gwangju Institute of Science and Technology, Korea

### Abstract

Fluorescence spectrum and distribution of fluorescent aerosols were observed using a multi-channel lidar spectrometer with excitation at 355nm. The lidar spectrometer employs a high-power third-harmonic Nd:YAG laser, a 1-m telescope, and a 125-mm focal length spectrograph with a 32-channel multi-anode photomultiplier and a multi-channel photon counting system. Broad fluorescence was observed from Asian dust and air-pollution aerosols transported from urban or industrial areas. Fluorescence efficiency was roughly estimated for these aerosols. The results suggest fluorescence measurements combined with multiple-wavelength Raman lidar or HSRL measurements will provide useful information for characterizing chemical properties of aerosols.

### はじめに

バイオエアロゾルの検出を目的とした蛍光ライダーの研究が、いくつかの研究グループで行われている。バイオエアロゾルと呼ばれるものには、花粉や孢子や細菌、ウイルス、生物起源の有機物質等が含まれる。大陸から輸送される黄砂の表面に高い確率で細菌が付着していることが報告されており、本研究の動機のひとつはこのような長距離輸送されるバイオエアロゾルの検出に蛍光ライダーが利用できないかということであった。最近、Pöhlker ら<sup>1)</sup>によって、バイオエアロゾルおよび蛍光測定に干渉する可能性のある物質についての励起-蛍光マトリックスの詳細な研究が報告されている。また、2波長の励起光を使ったバイオエアロゾルの分類手法の可能性が示されている。

本研究では、バイオエアロゾルであるかどうかはともかく、実際の大气中のエアロゾルがどのくらい蛍光を出すか？どのようなエアロゾルが蛍光を出すのか？それらの蛍光スペクトルはどうか？という観点、すなわち、蛍光性エアロゾルの気候学を目指す観測実験を開始した。

### 実 験

高出力の第三高調波 YAG レーザー(355nm)、口径 1m の望遠鏡、焦点距離 125mm の分光器と 32 チャンネルのマルチアノード光電子増倍管を用いたマルチチャンネルフォトンカウンターから構成されるライダー分光計を構築した。分光器には 1200 l/mm の回折格子を用い、345-525 nm のスペクトル域を 32 チャンネルでカバーし、各チャンネルのライダー信号を高度分解能 15 m で高度 15 km まで記録した。Fig. 1 にライダー分光計の構成を示す。分光計の入射の前に 360nm より短波長をカットするエッジフィルターを用いて 355nm のミ-散乱光を遮断した。355nm の散乱信号は 2つの光電子増倍管を用いて偏光成分毎に測定

した。観測はつくばの国立環境研(NIES)において行なった。蛍光測定では背景光の影響を強く受けるので測定は夜間に限られた。窒素分子の振動ラマン散乱強度を基準にして蛍光の絶対値を求め、蛍光性エアロゾルの高度分布を導出した。エアロゾルの解析では、連続観測を行っている NIES 小型ライダー（1064nm, 532nm のミー散乱と 532nm の偏光解消度を測定）のデータも利用した。

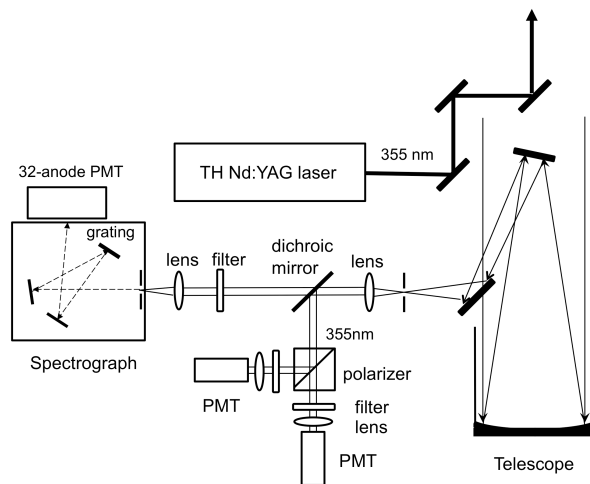


Fig. 1 Configuration of lidar spectrometer system.<sup>2)</sup>

## 結果と考察

マルチチャンネル・ライダー分光計で測定された信号の一例を Fig. 2 に示す。横軸はチャンネル番号で左側が長波長側である。縦軸は高度である。この図では背景光の補正のみを行っている。

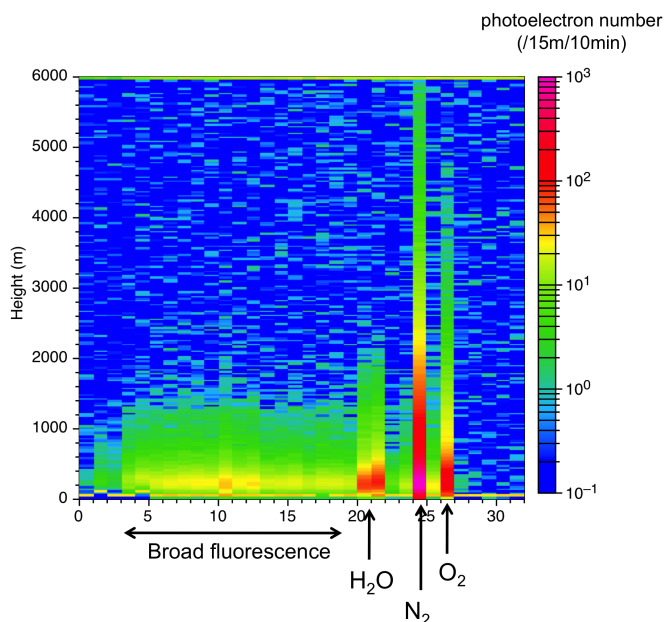


Fig. 2 Example of signals measured with the lidar spectrometer system.

Fig. 2 において、 $O_2$ 、 $N_2$ 、 $H_2O$  のラマン散乱およびブロードな蛍光が見られる。蛍光の信号のうち、チャンネル 18 から 3（波長では 420nm から 510nm）の信号の和をここでは全蛍光と定義して、その時間高度分布を調べた。Fig. 3 に例を示す。この表示では各高度の蛍光強度（光

電子数) を  $N_2$  ラマンの強度で正規化したものをプロットしている。この正規化によって、距離補正、視野重なり関数の補正、送信光の減衰補正が自動的に行われる。受信光の減衰については、 $N_2$  ラマン散乱と蛍光の波長差による違いがあるが低高度では無視できる。

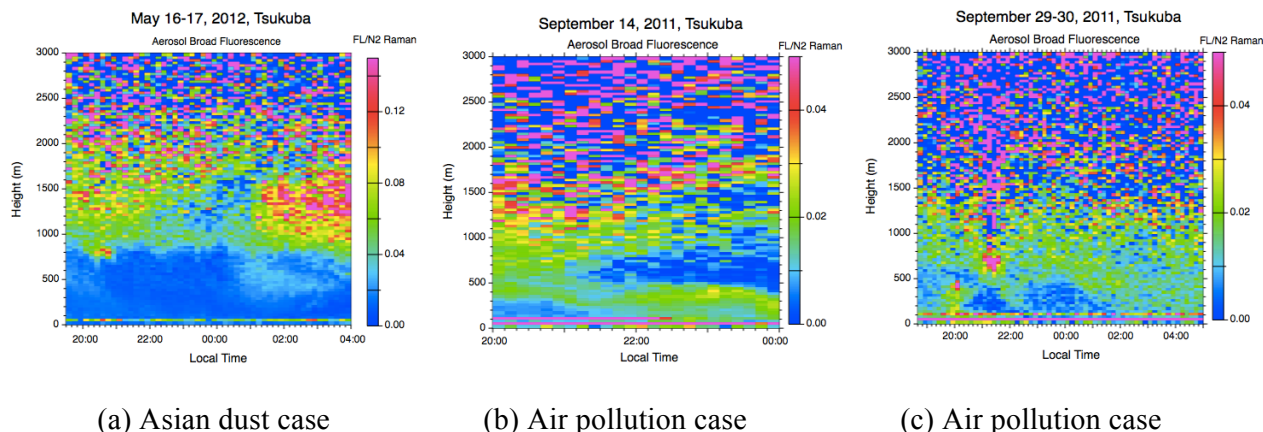


Fig. 3 Example of time-height indications of the total fluorescence from aerosols.

全蛍光の THI を NIES 小型ライダーで得られた黄砂と大気汚染性エアロゾルの分布と比較し、例えば、Fig. 3(a)の高度 800m より上空のエアロゾルは主に黄砂であること、(b)および(c)の蛍光性エアロゾルは大気汚染エアロゾルであることが同定された。さらに、NOAA HYSPLIT を用いて後方跡線解析を行った結果、蛍光性の大気汚染エアロゾルの多くは千葉、東京、横浜の都市域あるいは工業地帯を通過して飛来したものであることも分かった。

Fig. 4 に、同定されたエアロゾル (および雲) の代表的なものについて蛍光スペクトルを示す。

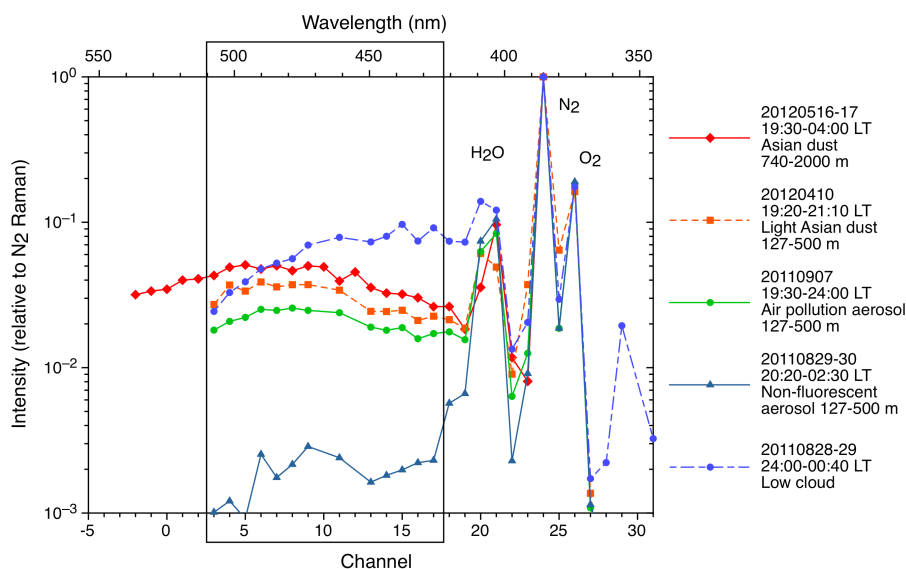


Fig. 4 Fluorescence spectrum of Asian dust, air pollution aerosol, and low cloud.<sup>2)</sup>

黄砂と大気汚染エアロゾルを比べると、いずれもブロードであるが黄砂の方が長波長の蛍光強度がやや高い。雲については蛍光が強い場合とそうでない場合があった。

蛍光の強度はエアロゾルの濃度と吸収率と蛍光効率に依存すると考えられる。蛍光測定から得られるエアロゾルの特性として重要なのは蛍光効率である。多波長ラマン散乱ライダーあるいは多波長高スペクトル分解ライダーの解析によりエアロゾルの単散乱アルベドが推定でき

るので吸収がわかる<sup>3)</sup>。吸収された光がどれくらいの割合で蛍光として放出されるかが測定できれば、エアロゾルの化学的性質を推定する手がかりになる。そこで、蛍光効率を次式のように定義した。

$$\beta_{fl} = \eta_{fl} \cdot \frac{(1 - SSA)}{SSA} \cdot f \cdot \beta_{Mie} = C_{fl} \cdot \beta_{Mie} \quad (1)$$

ここに、 $\beta_{fl}$ はライダーで測定した後方蛍光係数( $m^{-1}sr^{-1}$ )で、 $N_2$ ラマンを基準にして絶対値が測定できる。 $\beta_{Mie}$ はミー散乱の後方散乱係数。 $SSA$ は単散乱アルベド、 $f$ はミー散乱の位相関数と蛍光の角度依存性の違いを表す因子、 $\eta_{fl}$ が蛍光の効率、すなわち吸収された光に対する蛍光の割合である。 $C_{fl}$ は“ライダー蛍光比”で、測定から求められる。

これまでの観測のうちのいくつかの例について $C_{fl}$ の値を示すと、黄砂では~0.015、大気汚染エアロゾルでは~0.001、非蛍光性のエアロゾルでは~0.00007、蛍光が観測された下層の雲で~0.00024などである。 $SSA$ はこれらの例について測定値がないので、ここでは、DubovikらのAeronetの $SSA$ の解析結果<sup>4)</sup>を355nmに外挿して、黄砂の $SSA$ を0.9、大気汚染で0.9-0.99と仮定する。また雲の $SSA$ を仮に0.99とする。 $f=1$ とすると、 $\eta_{fl}$ は、黄砂で~0.15、大気汚染エアロゾルで0.01-0.1、非蛍光性エアロゾルで0.0007-0.007、雲で~0.024などとなる。以上は非常に荒い見積もりであるが、黄砂は蛍光効率が高いこと、雲の蛍光効率は低いことなどが分かる。黄砂は蛍光効率が高いが、おそらく黄砂に付着した物質ではなく、鉱物そのものの蛍光であろうと考えている。

## おわりに

以上に示したように、ライダーによる蛍光測定はエアロゾルの化学的性質を推定する有効な手がかりになると考えられる。Fig.4からも分かるように420nmから520nmの全蛍光の強度は $N_2$ の振動ラマン散乱の強度にほぼ匹敵する。従って、全蛍光の測定は小型のライダーでも可能である。2つあるいは3つのブロードバンドの受信チャンネルで蛍光を測定することによって、黄砂と大気汚染エアロゾルなどを分離することも考えられる。現在までのところ、観測は19例で、発生直後のバイオマス燃焼の煙や、純粋な黄砂などの観測例はまだない。今後、さらに観測を継続する計画である。

## 参考文献

- 1) C. Pöhlker, J. A. Huffman, and U. Poschl, “Autofluorescence of atmospheric bioaerosols - fluorescent biomolecules and potential interferences,” *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 37-71 (2012).
- 2) N. Sugimoto, Z. Huang, T. Nishizawa, I. Matsui, and B. Tatarov, “Fluorescence from atmospheric aerosols observed with a multi-channel lidar spectrometer,” submitted to *Optics Express*.
- 3) D. Müller, F. Wagner, U. Wandinger, A. Ansmann, M. Wendisch, D. Althausen, and W. von Hoyningen-Huene, “Microphysical Particle Parameters from Extinction and Backscatter Lidar Data by Inversion with Regularization: Experiment,” *Applied Optics*, 39, 1879–1892 (2000).
- 4) O. Dubovik, B. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y. J. Kaufman, M. D. King, D. Tanre, and I. Slutsker, “Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations,” *J. Atmos. Sci.*, 59, 590-608 (2002).