

下部大気圏中のエアロゾル粒径分布の推定法

Determination of Aerosol Size Distribution in Lower Atmosphere

岩坂泰信、長屋勝博、岡田菊夫、武田喬男、小野晃

Yasunobu IWASAKA, Katsuhiro NAGAYA, Kikuo OKADA
Takao TAKEDA and Akira ONO

名古屋大学 水圏科学研究所

Water Research Institute, Nagoya University

1. 序論 気象学、大気物理学、大気環境学等において、エアロゾルの動態を把握する必要性は年々高まっているが、近年では、エアロゾルが大気中で惹き起すであろう物理化学的な挙動について、さらに一歩突っ込んだ動態把握が必要となっている。レーザレーダによる大気探査法、とりわけエアロゾルのモニター法の現状を考えてみると、エコーの相対的強度変化のみを解析の対象とするものが圧倒的に多く、これから得られる情報は必ずしも上述の要請に充分応えるものではない。特に、エアロゾルの物理化学的作用を考察対象とする時、この点がクローズアップされてくる^{1),2),3)}。従来から、エコー強度の相対的変化を解析対象として成功を収めてきたのは、“エアロゾルを大気運動のトレーサーとして扱う”ことが大きな意味を持つ分野が多かったことは、この間の事情をよく物語っている^{4),5),6)}。しかし、エアロゾルの輸送の側面は多様なものがあり、エアロゾルの輸送に関する問題に加えて、エアロゾルと気体(SO_x , NO_x 等)の関係、大気光学的な問題、雲物理学にかなる物理化学的問題等が多く関心を呼んでいる。これらの問題を解明するためには

①エアロゾルの粒径分布

②エアロゾルの化学組成や構造

を知ることが必須条件となる。

ここでは、2波長方式レーザレーダ(Mie散

乱方式)によって、エアロゾルの粒径分布を推定する方法について検討した結果を報告する。ここでは、航空機による直接測定とレーザレーダによるリモートセンシングから推定したものを比較して、手法の妥当性を吟味したが、結果は必ずしも充分な一致を見てはいない。しかし考え得る実験的誤差を考慮するならば、大むね良好なものと結論し得る⁷⁾。あわせて、関連する問題点についてもふれる。

2. 方法及び解析結果 Mie散乱の波長依存性を利用して、エアロゾルの粒径分布を推定する試みは、成層圏高度では多波長方式レーザレーダを用いてすでに行われている^{8),9),10)}。しかし、透過関数が距離によってほとんど変化しない成層圏と違い、下部大気圏では途中の散乱体によって透過関数が有意に変化し、エコーを解析する時には、この効果を考慮しなければならない。このため、成層圏の方法が下部大気圏にそのままでは適用できず、この高度のエアロゾルの粒径分布を推定する際には、何らかの異なる方法が必要とされる。

今回、下部大気圏に適したエアロゾル粒径分布の推定法として、次の2種の方法を紹介し、検討する。1つは、下層での後方散乱光の減衰量に注目し、これを後方散乱係数に代わる有意な量として扱う方法(以下、方法Iと呼ぶ)で

あり、もう1つは、成層圏で用いた方法に減衰補正を考慮する方法(以下、方法Ⅱと呼ぶ)である。レーザレーダ観測データからこれらを通り、方法で推定した粒径分布と、同時に行なった航空機観測によって得られた結果とを比較し、これらの方法の妥当性、適用条件等を検討する。

〈方法Ⅰ〉 レーザレーダ観測に関する諸量は次のように表わされる。

$$P_r(z) = C P_0 \beta(z) T^2(z) / z^2 \quad (1)$$

また、大気透過関数 $T(z)$ は

$$T(z) = \exp \left[- \int_0^z \left\{ \int_{r_1}^{r_2} \sigma_{\text{ext}, \text{Mie}}(\lambda, r) \cdot n(r, z) dr + \sigma_{\text{ext}, \text{Ray}}(\lambda) \cdot N(z) \right\} dz \right] \\ = \exp \left[- \int_0^z \{ k_{\text{Mie}}(z) + k_{\text{Ray}}(z) \} dz \right] \quad (2)$$

ただし、 $\sigma_{\text{ext}, \text{Mie}}(\lambda, r)$ 、 $\sigma_{\text{ext}, \text{Ray}}(\lambda)$ は波長 λ に対する半径 r のエアロゾルならびに大気分子の消散断面積、 $N(z)$ は高度 z での大気分子密度、 $k_{\text{Mie}}(z)$ 、 $k_{\text{Ray}}(z)$ はそれぞれ高度 z でのエアロゾルならびに大気の消散係数、 $n(r, z)$ は高度 z でのエアロゾル粒径分布関数で、光学的に有効な粒径領域 ($0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$) では、次のような形で表わされるものとする。

$$n(r, z) = \frac{dN}{dr} = A r^{-r} \quad (3)$$

観測した空間を Fig. 1 のように適当な間隔 Δz で区切った時、各層内ではほぼ一様なエアロゾル濃度になっていると考える。大気による散乱は Δz 内ではほとんど高度変化しないので、 $\beta(z)$

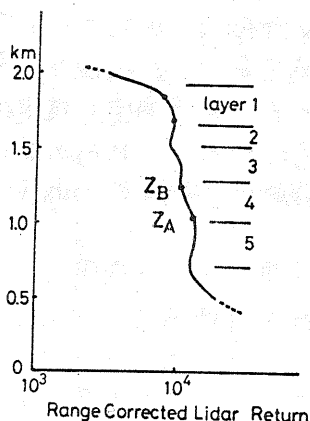


Fig. 1 方法Ⅰの概念図

は一定とみなせる。したがって、第 i 層内の任意の高度 z_{iA} 、 z_{iB} からの距離補正した受信電力の比を用いて、消散係数 k_{Mie} を表わすと

$$k_{\text{Mie}}(z_i) = \frac{1}{z(z_{iA} - z_{iB})} \ln \frac{z_{iA}^2 \cdot P(z_{iA})}{z_{iB}^2 \cdot P(z_{iB})} - k_{\text{Ray}}(z_i) \quad (4)$$

また、任意の粒径分布に対して k_{Mie} は計算により求めることができる。そこで、波長 λ_1 、 λ_2 について、それぞれ $k_{\text{Mie}1}$ 、 $k_{\text{Mie}2}$ を求めて、これらの比をとれば、 A に依存しない量になるので

$$\left(\frac{k_{\text{Mie}1}}{k_{\text{Mie}2}} - \frac{\int \sigma_{\text{ext}, \text{Mie}}(\lambda_1, r) \cdot r^{-r} dr}{\int \sigma_{\text{ext}, \text{Mie}}(\lambda_2, r) \cdot r^{-r} dr} \right)^2 = \min. \quad (5)$$

となるように、try and error で λ を決めることができる。また、この λ を用いて

$$(k_{\text{Mie}1} - A \int \sigma_{\text{ext}, \text{Mie}}(\lambda_1, r) \cdot r^{-r} dr)^2 + (k_{\text{Mie}2} - A \int \sigma_{\text{ext}, \text{Mie}}(\lambda_2, r) \cdot r^{-r} dr)^2 = \min. \quad (6)$$

となるように A を決めれば、各層の粒径分布が求められる。これらの計算で、粒径についての積分の範囲は、 $r_1 = 0.01 \mu\text{m}$ 、 $r_2 = 10.0 \mu\text{m}$ とした。

この方法で問題となるのは、適当な層厚 Δz の大きさである。消散係数 k_{Mie} を計算する場合の誤差を小さくするためには、減衰の効果が大きくあらわれるように、層厚をできるだけ大きくとることが望ましいが、実際の大气中ではそれほど広い範囲で一様なエアロゾルが分布しているとは考えられない。今回の解析では層厚の上限として 300 m を選んだ。この程度の層厚で減衰する量を種々の大気状態で見比べてみたのが、Fig. 2 である。

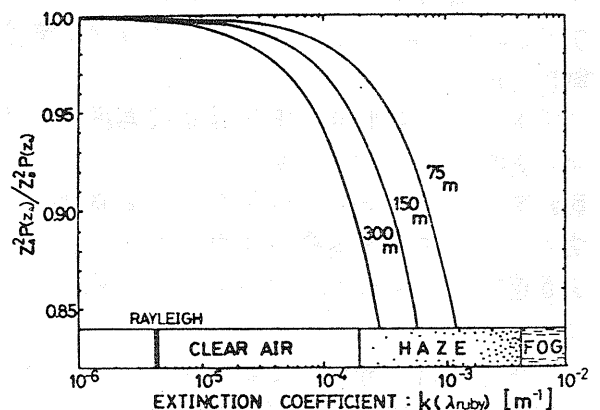


Fig. 2 種々の大気状態と減衰量

層内で数%の減衰しか生じない時には、この減衰から求めた k_{mie} は受信電力の誤差によって左右されてしまうが、少なくとも10%前後の減衰があるような時には精度よく k_{mie} が決定できる。このような減衰量は都市大気ややhazyな状態に相当する。したがって、地表付近の大気に対して、この方法は充分通用できる、と考えられる。

〈方法Ⅱ〉 下層大気のアエロゾルは多くの場合、混合層を形成し、それ以上の高度では、急激な濃度の減少を示す。このことから、観測されたプロファイル上でアエロゾルの寄与が充分小さくなっていると思われる高度を決め、その高度での大気分子による後方散乱係数のプロファイルとmatchingすることで、各高度のアエロゾル後方散乱係数が求められる。

この量について、方法Ⅰと同様にして粒径分布を推定することができる。また、近似的に

$$\beta_{mie}(z) \propto k_{mie}(z) \quad (7)$$

が成立しているとして、各高度の消散係数をmatchingによって求め、プロファイルに減衰補正を入れることができる。

〈観測〉 1977年9月8日早朝、名古屋大学内において、Ruby(0.6943 μ m)、YAG(1.06 μ m)の2波長で、10秒ごと α Aスコープ観測を行ない約3~5分ごとにトランジェントレコーダを通して、受信電力を出力した。

比較のための観測として、名古屋大学上空を通るコースを1000m、1500m、2000mの3高度で水平飛行する航空機に搭載したアエロゾルカウンタ(Rion社製、FC-250型)を用いて、半径0.25 μ m、0.5 μ m、1.0 μ m以上のアエロゾル濃度を測定した。

〈結果〉 観測時の相対湿度は高度3kmまで90%前後であったことから、アエロゾルの複素屈折率として、 $m=1.33+0.0i$ を採用し、方法Ⅰ、Ⅱにより粒径分布を推定した。この結果を直接測定によるものとあわせて、Fig. 3に示す。

方法Ⅰでは、分布を表わす α が1800m層で、かなり小さい値となっているが、この原因としては、1) この高度では濃度の減少が顕著にな

り、選んだ層内では一様であると近似できなかったため、2) 高くなるほど受信電力のS/N比が小さくなり、記録上では大きな誤差を含んでいるため、などが考えられる。Aについては、直接測定より1~2オーダー高いものになっている。これは、層の設定の仕方によっては減衰の効果を過大評価し、 k_{mie} の値に著しい誤差を生ずる場合もあるため、この誤差の影響が出たため、と考えられる。

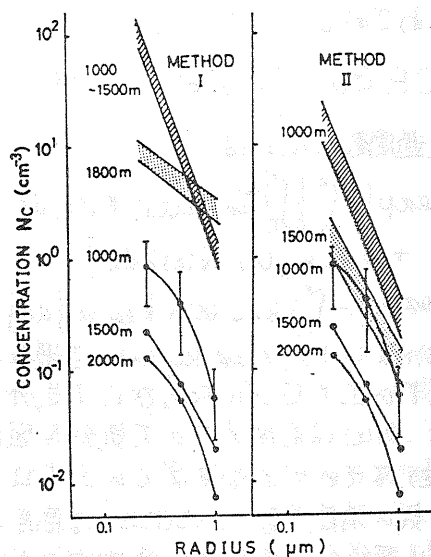


Fig. 3
推定した
粒径分布と
直接測定
の結果との比較

Fig. 3に示すように、方法ⅡではA、ととも方法Ⅰよりも直接測定の結果に近づいている。また、上層へ行くほど濃度が減少するという傾向もあらわれている。誤差の要因としては他にも考えられるが、実際の大気中のアエロゾルに対して、(3)式のような粒径分布の形を仮定することの妥当性もその1つである。大気中のアエロゾルの生成、除去等の過程を考えれば、この形は理論的に説明できるが、sourceが近くにある時など α 分布はこの形から大きくずれる。観測点が都市域であり、sourceから充分離れていなかったことも、直接測定と推定値の差を生じた一因と考えられる。これらの点については今後の多くの観測例で確かめられよう。

3. 粒径分布の測定とその応用 エアロゾルの粒径分布に関する情報は、次のような分野の研究で本質的な役割を果たすと思われる。

1) エアロゾルを含む大気中の放射伝達現象が関与する分野；特に可視域、近

赤外領域の波長帯でのエアロゾルによる太陽光の散乱現象は、下層大気の熱収支に大きな影響を与え、今後人間の産業活動に伴って大気中に放出・生成されるエアロゾルが大気温度にどのような影響を与えるか、を見極めることは主要な問題となろう。

- 2) エアロゾルの存在がまわりの大気の組成にどのような影響を与えるか、という問題は最近ようやく研究者の関心がよせられてきた。大気化学分野では興味あるいくつかの化学成分(例えば、 NO_x 、 O_3 等)のエアロゾルによるdecompositionが注目されてきたが、広い意味での化学吸着の問題であり、エアロゾルの化学組成とともに、吸着面積はこのプロセスを理解するための必要な情報である。吸着面積は、エアロゾルの粒径分布を基に求められる量である。

上記の二つの分野—大気光学と大気化学—にまたがるテーマも数多くある。この小論で展開された手法は、今後、これらの分野で活用されると思うが、さしあたり我々が争かけようとしている仕事と、その中で粒径分布の測定結果を如何に利用するかという点について述べてみたい。Fig. 4に示すように、大気光学的な面では、散乱現象の著しい可視域が多くある問題を提示し、特に人間活動に結びついた下層大気の問題が中心となろう。さらに、モニタリング技術上の問題としては、人工衛星を用いた広域探査法との比較ということがある。通常、太陽光を光源として、その反射光を観測する方法がとられており、この量の解釈には、エアロゾルの粒径分布に関する情報が必須であろう。大気物理化学面では、雲物理に関するものを除けば、中層大気(成層圏・中間圏)に多くの興味ある問題が出され、その一つに“freeze out”と成層圏水蒸気の収支”というテーマがあり、レーザレーダをはじめとする各測器による同時多項目観測が考えられている。

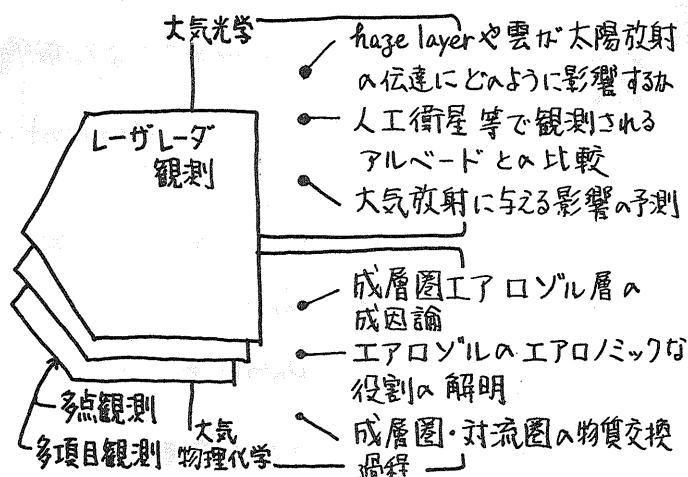


Fig. 4 粒径分布の応用分野

は物質構成、濃度とならんでエアロゾルを特徴づける量であり、これについての情報は幅広い研究分野で必要とされる。今回紹介した二つの方法はそれぞれに応じた対象に適用すれば、十分な精度で粒径分布を推定できる、という可能性を示した。今後、種々の大気状態に対して、これらの方法を試みる。また、レーザレーダ観測とともに、他の遠隔測定やサンプリングを同時に行なうことで、相補的な結果が得られ、さらに精度よく粒径分布が求められるであろう。

REFERENCE

- 1) Bridgman H.A. Atmos. Environ. 13 629-638 (1979)
- 2) King M.D. et al. J. Atmos. Sci. 35 2153-2167 (1978)
- 3) Gillette D.A. and I.H. Blixford, Jr. J. Atmos. Sci. 28 1199-1210 (1971)
- 4) Hoff R.M. and F.A. Froude Atmos. Environ. 13 35-43 (1979)
- 5) Endlich R.M., F.L. Ludwig and E.E. Uthe Atmos. Environ. 13 1051-1056 (1979)
- 6) Naito K.K. et al. Sixth International laser radar conf. (1974)
- 7) Krugers J. and A.H. Lenshener Atmos. Environ. 12 2011-2013 (1978)
- 8) Iwasaka Y. and K. Isono J. Atmos. Terr. Phys. 39 117-120 (1977)
- 9) Iwasaka Y. J. Met. Soc. Japan 55 457-462 (1977)
- 10) Zuyev V.Y. et al. Izvestiya Atmos. Ocean. Phys. 13 439-443 (1977)

4. まとめ 前章で述べたように、粒径分布