

## 3 波長差分吸収ライダーによるオゾン及び二酸化硫黄の導出

## Derivation of ozone and sulfur dioxide density by three-wavelength differential absorption lidar

中里真久<sup>1</sup>、永井智広<sup>1</sup>、酒井哲<sup>1</sup>、内野修<sup>1,2</sup>、真野裕三<sup>1</sup>Masahisa Nakazato<sup>1</sup>, Tomohiro Nagai<sup>1</sup>, Tetsu Sakai<sup>1</sup>, Osamu Uchino<sup>1,2</sup>, and Yuzo Mano<sup>1</sup>

1. 気象研究所、2. 国立環境研究所

1. Meteorological Research Institute, 2. National Institute of Environmental Studies

**Abstract:** Vertical profiles of tropospheric ozone and sulfur dioxide are derived from three-wavelength UV ozone DIAL data. The wavelengths of 276nm, 287nm, and 299nm are used. Systematic error of sulfur dioxide observation is estimated to be  $7 \times 10^{20} \text{m}^{-2}$  in spectrum factor, which is approximately twice of that for ozone ( $3 \times 10^{20} \text{m}^{-2}$ ). Some derivations of sulfur dioxide emitted from Miyake Island are demonstrated.

## 1. はじめに

大気質に関する情報提供の分野では、火山噴火時の二酸化硫黄の移流・拡散に関する観測情報が要望されている。例えば、2000年の三宅島の噴火時は、関東の広い範囲に二酸化硫黄が移流したと考えられているが、どの高度にどの程度の濃度の二酸化硫黄が存在したのかについては、確たる情報が存在しない。現在の日本では、二酸化硫黄の濃度は通常高くないため、二酸化硫黄観測専用のライダーを新たに開発し、定常観測に使用することは実際的ではない。このため、二酸化硫黄と吸収帯が重なっているオゾンを観測するためのライダーを利用して、測定が可能であれば大変便利である。火山噴火時の二酸化硫黄の濃度は十分高濃度であるため、観測はそれほど難しくないと考えられる。

また、対流圏オゾンの定常観測においては、使用する波長でのオゾンと二酸化硫黄の吸収断面積が同程度であるため、二酸化硫黄濃度の上昇時には、観測誤差が大きくなる。このため、二酸化硫黄濃度が高い場合には、オゾンと二酸化硫黄の同時解析によって、オゾンの測定精度の向上も期待される。

本研究では、対流圏オゾン観測用差分吸収ライダーの観測データを用いて、オゾンと二酸化硫黄を同時に導出できるかを検討し、観測データを用いて、実際に導出を試みた。

## 2. ライダーシステムの概要

観測に使用した装置は、気象研究所で開発した対流圏オゾン観測用差分吸収ライダーであ

る。この装置では、Nd:YAG レーザー第4高調波（波長：266nm）を二酸化炭素による誘導ラマン散乱で波長変換し、第1 Stokes 線から第3 Stokes 線までの3波長（276nm、287nm、299nm）を得る。高度3km程度以下を276nmと287nmの2波長で、また、高度1km程度から対流圏界面付近までを287nmと299nmの2波長で観測する。現在は、積算時間5分、レンジゲート7.5mのデータをファイルに保存している。3波長で観測できる領域は、現状では高度1-2km付近で、高度幅1-2km程度の領域のみである。観測可能な高度の上限は、主に雲やオゾンの濃度、日中観測の場合は紫外線量によって変化するが、オゾンのみであれば、通常、高度10km程度までの観測が可能である。オゾンのみを解析する場合は、両波長組によって別々にオゾンの高度分布を解析し、高度2km付近から3km程度までの高度範囲で両プロファイルを接続する。

## 3. オゾン及び二酸化硫黄の導出原理

オゾンと二酸化硫黄の濃度は、次の連立一次方程式を解くことによって導出することができる。

$$\begin{pmatrix} \Delta\sigma_a^1 & \Delta\sigma_b^1 \\ \Delta\sigma_a^2 & \Delta\sigma_b^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_a(r) \\ n_b(r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial R} \left[ \ln \left( \frac{P_1}{P_3} \right) \right] + \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial R} \left[ \ln \left( \frac{\beta_1}{\beta_3} \right) \right] - \Delta\alpha_{ext}^1(r) \\ -\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial R} \left[ \ln \left( \frac{P_2}{P_3} \right) \right] + \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial R} \left[ \ln \left( \frac{\beta_2}{\beta_3} \right) \right] - \Delta\alpha_{ext}^2(r) \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで $\Delta\sigma$ は差分吸収断面積、 $n$ は測定する気体の数密度、 $r$ は距離、 $P$ は受信信号強度、 $\beta$ は後方散乱係数、 $\alpha_{ext}$ は消散係数、添字1-3は波長、添字a,bはそれぞれオゾンと二酸化硫黄を表す。

測定精度を高くするためには、3波長が観測に適したものでなければならない。このためには、1) 3波長のうちいずれかの2波長がオゾン観測に適しており、2) 別の2波長が二酸化硫黄の観測に適しており、3) オゾンと二酸化硫黄による吸収の違いが明らかな波長が存在すること、が必要である。

Fig.1 にオゾンと二酸化硫黄の吸収断面積の波長依存性を示している。この図中には、前記差分吸収ライダーで生成している波長も▼印で示されている。波長 287nm が二酸化硫黄の吸収線の1つにかかっているため on 波長の役割を果たし、276nm と 299nm が off 波長として機能する。276nm はオゾンと二酸化硫黄で吸収の強さが顕著に異なるため、276nm と 287nm でオゾンを測定し、287nm と 299nm で二酸化硫黄の濃度情報を取り出すことになる。

測定精度の見積もりには、スペクトル因子が使われている。Fig.2 は、二酸化硫黄観測におけるスペクトル因子の計算結果である。スペクトル因子  $B_\lambda$  は、差分吸収法において、後方散乱及び消散による補正項の係数として現れ、次の式で定義される。

$$B_\lambda = \frac{1}{\lambda_{off} \left[ \frac{\Delta\sigma}{\Delta\lambda} \right]} \quad (2)$$

ここで  $\lambda_{off}$  は off 波長、 $\Delta\sigma$  及び  $\Delta\lambda$  はそれぞれ on-off 波長間の吸収断面積差、及び波長差を表す。Fig.2 から、波長 287nm 及び波長 299nm の組み合わせでは、二酸化硫黄のスペクトル因子は  $7 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$  となる。オゾンのスペクトル因子は  $3 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$  であるため、系統誤差はオゾンの場合の 2.3 倍程度になる。

#### 4. 解析と結果

解析には 2005-2006 年の観測データを使用した。この時の噴煙高度及び二酸化硫黄放出量はそれぞれ 1km、2000t/日程度と見積られている。このデータから、三宅島の北北東約 210km にあるつくばでの濃度は、およそ  $1-6 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$  程度になる。オゾンの吸収係数の 10 分の 1 に相当する二酸化硫黄濃度は、 $2 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$  であるため、二酸化硫黄の濃度を測定できる可能性がある。Fig.3 は、2006 年 3 月 5 日の観測データを用い

て、オゾンと二酸化硫黄を導出した結果である。この日は、二酸化硫黄放出量 2000-3100t/日、南南東-南西の風、風速  $5-25 \text{ ms}^{-1}$  (高度 1km 付近) であった。高度 1km 付近に二酸化硫黄の高濃度域が見られる。風向きが異なる日の観測データでは、濃度が低くなる傾向が見られた。例えば、2005 年 4 月 5 日は  $4 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$  程度であった。

#### 5. まとめ

3波長の対流圏オゾン観測用差分吸収ライダーのデータから、オゾンと二酸化硫黄の導出を試みた。例として、三宅島から放出された二酸化硫黄の濃度推定を行った。現在の所、火山噴火時の観測データを得ていない。火山噴火時の観測データを使った検証が今後の課題である。

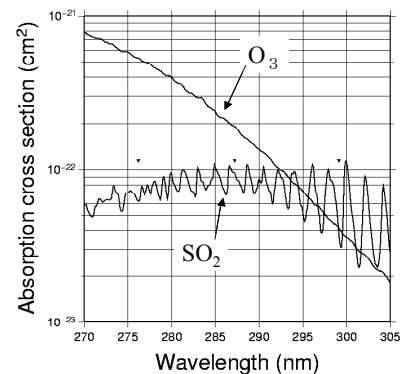


Fig.1 Absorption cross section of ozone and sulfur dioxide.

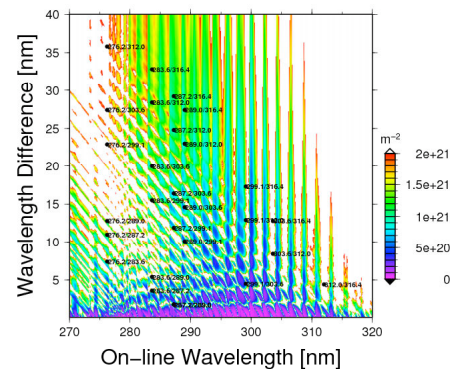


Fig.2 Spectrum factor for sulfur dioxide observation.

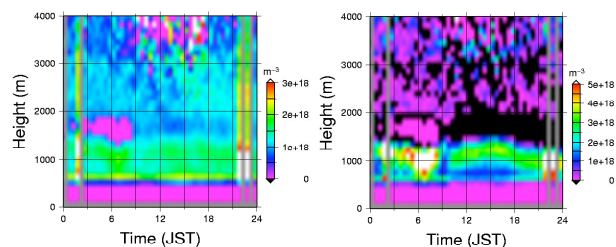


Fig.3 Time-height cross-section of tropospheric ozone (left) and sulfur dioxide (right) over Tsukuba on 5 March 2006 observed by a three-wavelength UV ozone DIAL.