

差分吸収法ライダーを用いて佐賀で観測された高度 2 km 以下のオゾンイベントについて

内野修¹ 神慶孝¹ 森野勇¹ 宇賀神惇¹ 西澤智明¹ 清水厚¹ 松永恒雄¹

永井智広² 酒井哲² 奥村浩³ 新井康平³

¹ 国立環境研究所 (〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16-2)

² 気象研究所 (〒305-0052 茨城県つくば市長峰 1-1)

³ 佐賀大学 (〒840-8502 佐賀県佐賀市本庄 1)

Ozone events below 2 km observed at Saga by Differential Absorption Lidar

Osamu UCHINO¹, Yoshitaka JIN¹, Isamu MORINO¹, Atsushi UGAJIN¹, Tomoaki NISHIZAWA¹,

Atsushi SHIMIZU¹, Tsuneo MATSUNAGA¹, Tomohiro NAGAI², Tetsu SAKAI², Hiroshi OKUMURA³, Kohei ARAI³

¹ National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506, Japan

² Meteorological Research Institute, 1-1 Nagamine, Tsukuba, Ibaraki 305-0052, Japan

³ Saga University, 1 Honjō, Saga, Saga 840-8502, Japan

Key words: ozone DIAL, air pollution

Abstract

We have been operating ozone differential absorption lidar (ozone DIAL) at Saga, Japan since 2011 for the validation of GOSAT series (GOSAT and GOSAT-2) products and so on. A new laser was installed for ozone DIAL system in March 2021. We report three ozone events below 2 km observed by ozone DIAL. These samples are expected to be used in chemistry-climate model case studies.

1. はじめに

対流圏オゾンは、人の健康や農作物の成長に影響を及ぼす大気汚染物質である。2000年の主要作物の被害は全体の3~6%に達し、金額にして140~260億米ドルの損失となっている¹⁾。また、対流圏オゾンはメタンに次ぐ放射強制力を持つ温室効果ガスであることから、その動態を把握することは重要である。地球大気化学国際共同研究計画(IGAC)による2019年の対流圏オゾンアセスメントレポート(Tropospheric Ozone Assessment Report, TOAR)²⁾によれば地上オゾンは1990~2014年には1896~1975年に比べ温帯・寒帯地方で30~70%増加している。海洋境界層内に位置する沿岸の地上オゾン観測データの解析では1950年以来、北半球では2.1倍増加しているが、南半球では4%程度しか増加していない³⁾。

一方、日本の環境省は光化学オキシダント(Ox)濃度の環境基準を1時間平均値で60 ppb以下と定めているが、この基準の達成は現在でもなかなか難しく、そらまめ君(大気汚染物質広域監視システム <https://soramame.env.go.jp/>)によると2021年6月9日神奈川県湘南地域などでOx濃度が120 ppbを超える光化学オキシダント注意報が発令されている。環境省によれば全国的には毎年約50件以上の注意報が発令されていることから、その原因を明らかにすることとともに、今後、対流圏オゾンや地上オゾンがどのように変化していくのか監視が重要である。

対流圏オゾン差分吸収法ライダー(以下オゾンDIALと記す)はオゾンの紫外線吸収を利用したライダーでオゾン濃度を校正装置なしに測定できること、また、オゾン高度分布を連続的に測定できることから大変有用である^{4,5)}。TOARによれば現在世界の12か所にオゾンDIALが設置されているが、アジアは日本の佐賀の1か所のみが記載されている。米国には6か所に設置された対流圏オゾンライダーネットワーク(Tropospheric Ozone Lidar Network, <https://www-air.larc.nasa.gov/missions/TOLNet/>)があり、衛星データの検証、化学気候モデル計算の評価や科学研究に活用されている。

国立環境研究所では温室効果ガス観測技術衛星(GOSAT)搭載のTANSO-FTSの赤外バンドから導出される対流圏下層のオゾンカラム量などの検証のためにオゾンDIALを開発し、2011年3月から佐賀大学で対流圏下層のオゾン観測を行ってきた⁶⁾。2020年3月CO₂ラマンセル励起用レーザーとして用いてきたNd:YAGレーザー(Quantel YG981C)用のチラーの再故障等によりオゾン観測を一旦中止することにした。2021年3月からは新しいNd:YAGレーザー(Lumibird Q-smart 850)を用いた観測を開始した。ここでは新しいレーザーの性能とそれを用いたオゾンDIALおよびそれを用いたオゾン観測例について述べる。

2. 新しいレーザーを用いたオゾンDIALシステム

2.1 新しいNd:YAGレーザーを用いたオゾンDIAL送信部

新しいNd:YAGレーザー(Q-smart 850, 以下QS-850, 10 Hz)の出力は波長1064 nmで909 mJ, 532 nmで470 mJ, 266 nmで140 mJ(パルス半値幅4 ns)である。ビームパターンは中心が弱く外側が強く(特にその一部が強い)非一様である。266 nmのレーザーを、窓材に使用している合成石英レンズ(焦点距離 $f_1=110$ cmで無反射コーティング)を通して、8気圧のCO₂ガスラマンセルに導入したところレンズに円形状の損傷が見られたが、CO₂の誘導ラマン散乱SRS(276 nm, 287 nm, 299 nm)のレーザーが発生していることがオゾンDIALテスト観測で確認できたので、 $f_2=4500$ mmの合成石英レンズを用いて約4倍にSRSを広げ、 f_1 と f_2 のレンズ間の距離を調整しながら送信ビーム広がりを0.2 mradにした。

266 nmの出力が140 mJではレンズ面の損傷を拡大する恐れがあることから、266 nmの出力が100~110 mJになるようにQス

イッチのタイミングを調整した。具体的にはフラッシュランプの発光後、177 μs で Q スイッチトリガーをかけると 266 nm で 140 mJ が得られるが、200 μs でかけると 100~110 mJ の出力となった。また、室内の温度変化によって 266 nm の出力が影響を受けないようにアルミシートでカバーしたアクリル製の断熱用の箱でレーザーヘッドを覆い、温度が安定した状態で自動位相整合 (ARM) を行った。その結果、2021 年 3 月 16 日以降 266 nm の出力は約 3 か月間安定していたが、外気温が上がるとともにエアコン 2 台の設定温度を 20°C に設定していてもコンテナ内の温度が 24°C 以上になると 266 nm の出力は SRS を発生するための必要な 70 mJ 以下となった。その対策として 2022 年 2 月 28 日に 2 台のエアコンを 1.5 倍の冷房能力のものに交換した。

2021 年 12 月には QS-850 の第 4 高調波発生 (FHG) の結晶が壊れるトラブルが発生した。そのために 2022 年 3 月 1 日に予備の QS-850 に変えて観測を行っている。この予備のレーザーはビームが半分欠けていたためルミバード社本社に送り返しビームが出来るだけ一様になるように共振器のミラーを交換するなどして調整したものである。

2.2 オゾン DIAL 受信部等

受信部はこれまでと同じく口径 10 cm と 50 cm の受信望遠鏡を用い、前者は波長 276&287 nm で高度約 0.5~2 km のオゾン濃度を後者は 287&299 nm で 1.1~6 km のオゾン濃度を観測する。受信視野はいずれも 1 mrad である。検出部には光電子増倍管 (R3235-01) 5 本を、信号処理部にはトランジエントレコーダー (TR 20) 5 台、データ処理には Labview ソフトウェアを利用している⁴⁾。

3. オゾン DIAL 観測

観測は 2021 年 3 月 16 日から、おもに GOSAT, GOSAT-2 の上空通過日を中心に行っている。最初の QS-850 レーザーによる観測日数は 2021 年 7 月 20 日まで延べ 81 日でレーザー総ショット数は 5425 万ショットであった。なお、メーカーによるフラッシュランプ (FL) の寿命は一億ショットとなっている。2021 年 11 月初めに FL と脱イオン化フィルターを交換し、11 月から 12 月までこのレーザーを用いて延べ 18 日間観測を行った。なお、2022 年 3 月に交換した予備の QS-850 によるこれまでの観測日数は 3 月 1 日~5 月 19 日間で 42 日となっている。ここでは、口径 20 cm の望遠鏡で観測された高度約 2 km 以下の観測事例について述べる。オゾン濃度は 1 時間観測積算で得られた 15 m 毎の受信信号 21 個 (=上下±10 個+中心 1 個) に対して 3 次関数をフィッティングし、その鉛直勾配から 15 m 毎に算出している。

3.1 観測事例 1 エントレインメントによる境界層内の高濃度オゾン

Fig.1 に 2021 年 5 月 30 日から 6 月 2 日かけて観測されたオゾン混合比の高度時間断面図を示す。高度 1.5 km より上ではオゾンの強い吸収により受信信号が弱くなりデータのばらつきが大きくなっているのもそれより以下のデータについて述べる。

Fig.1 の左上の図が示すように 5 月 30 日 9 時頃から高度 1.5 km 付近に 100 ppb 程度のオゾンが観測され始め、時間とともに高度が下がり 15 時頃から高度 1.2 km 付近で 110 ppb 程度のオゾンが観測されている。右上の図の 5 月 31 日も 1 km 付近で 100 ppb 程度オゾンが観測され 15 時頃は 110 ppb 程度となっている。さらに左下の図の 6 月 1 日 17 時ころには高度 0.5~1.5 km で 110 ppb に達している。右下の図の 6 月 2 日 2 時から 11 時頃までは 0.5 km 以下で 70 ppb 程度にオゾンは減少している。

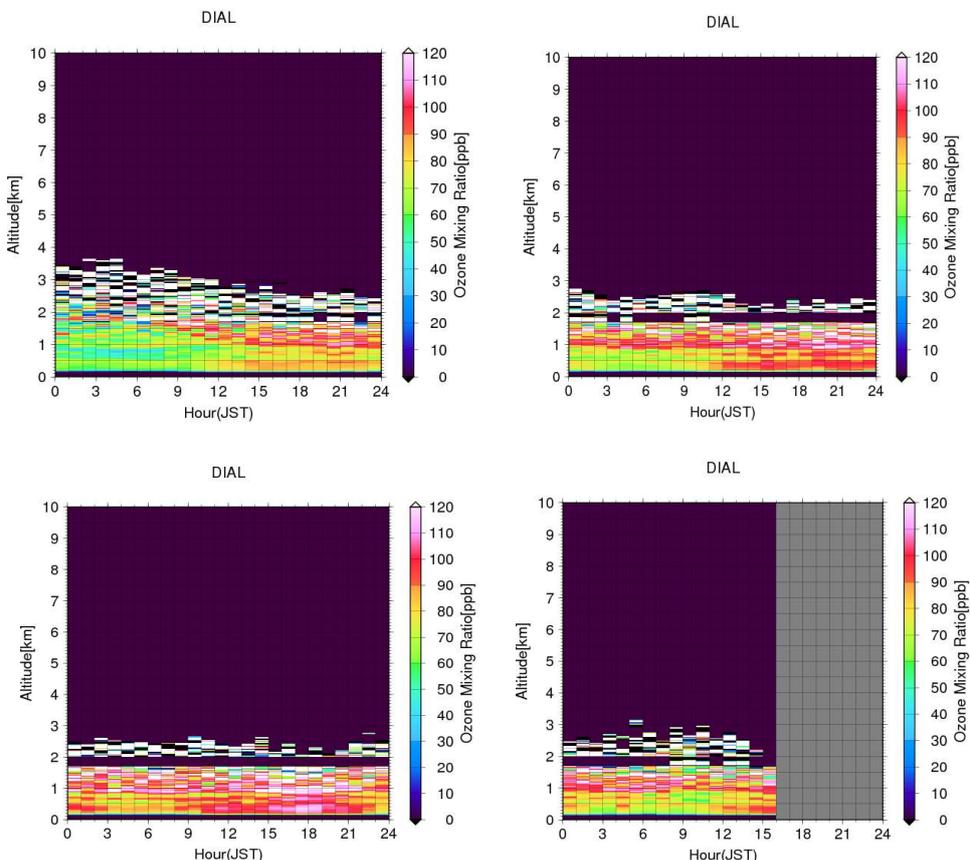


Fig.1 Time-altitude cross sections of ozone mixing ratios observed at Saga on 30 May (upper left),

31 May (upper right), 1 June (lower left) and 2 June (lower right) in 2021.

そらまめ君の速報値によれば、佐賀市高木町の光化学オキシダント濃度 O_x (オゾン濃度と考えてよい) は6月1日18時に103 ppbの最大値を記録し、環境基準である60 ppbを大きく超えている。この原因としては5月30日の午前中から高度1~1.5 km付近に観測された高濃度オゾンが6月1日午後発達した境界層内に取り込まれたためと思われる。また、高木町におけるPM2.5濃度は6月1日16~20時で25~29 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で比較的高い値を示している。

Fig.2に6月1日17時30分~18時30分にミーライダーで観測された波長532 nmの後方散乱比BSRと粒子偏光解消度PDRの高度分布を示す。地上から高度3 km付近までのBSRは1.2~3.3, PDRは8~21%程度であることから黄砂が観測されたと思われる。このような高濃度オゾンと黄砂の起原を推定するために、6月1日18時に高度1 kmに粒子を置いてNOAA HYSPLIT Trajectory Model (<https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/traitype.pl?runctype=archive>)による120時間の後方粒跡線解析を行うと、Fig.3に示すように粒子は主に中国の華北平原を通りモンゴル平原に至っていることから、ゴビ砂漠から黄砂が、北京など工業な盛んな華北地方から高濃度オゾンが佐賀上空に輸送され、昼間発達した境界層へのエントレインメント(取込み)により地表の O_x とPM2.5も上昇したものと推定される。同じような事例が2015年3月22日にも観測されている⁸⁾。オゾンDIALによって高度0.5~2 km付近の高濃度のオゾンを地上の測定より半日から1日程度前に測定できれば、昼間から夕方にかけて地上 O_x 濃度が増加するかどうかの予測に役立つものと考えられる。

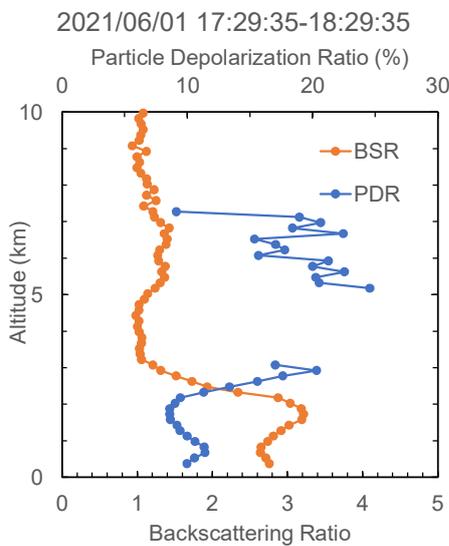


Fig.2 Vertical profiles of BSR and PDR observed at 1730~1830 (LT) on 1 June 2021 at Saga.

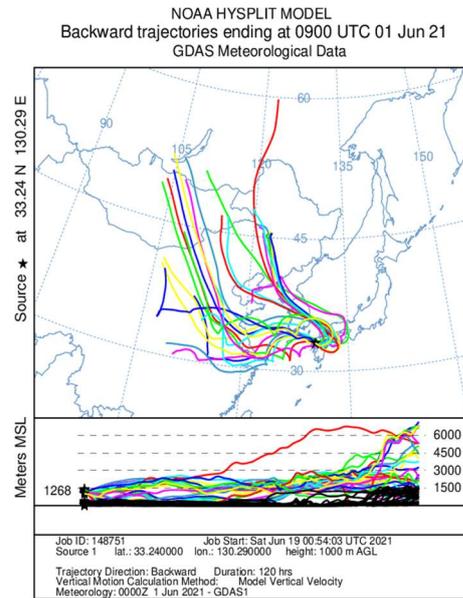


Fig.3 Backward trajectories of particles ending at 9 h UTC on 1 June 2021.

3.2 観測事例2 高度2 km 付近からの下降流によると思われる地上付近のオゾン濃度増加

Fig.4に2022年4月7日のオゾン混合比(左)と後方散乱比BSR(右)の高度・時間断面図を示す。

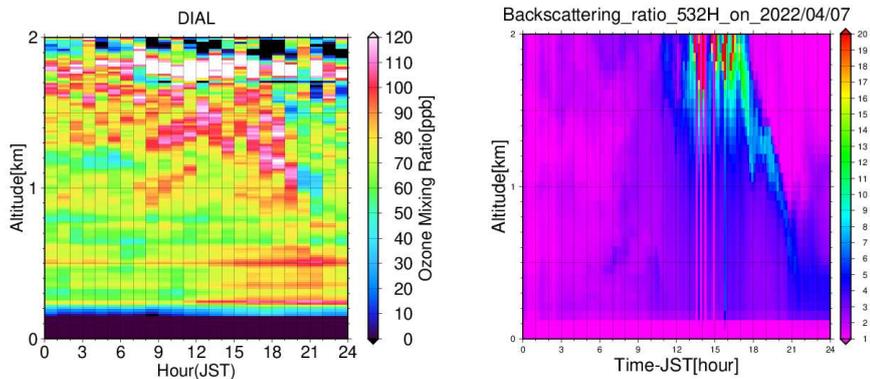


Fig.4 Time-altitude cross sections of ozone mixing ratio (left) and backscattering ratio (right) observed at Saga on 7 April 2022.

昼前から高度 1~2 km に観測された高濃度のオゾン・エアロゾルが 19 時頃には高度 1 km 付近に下がってきて 21 時ころにはエアロゾルは 0.5 km 付近まで下りてきていることが分かる。このイベントではエントレインメントによる増加というよりは直接下降流によって地上付近のオゾン・エアロゾルの増加に寄与したと推定される。高木町における 22 時の観測ではオゾン混合比と PM2.5 の濃度はそれぞれ 74 ppb 及び 22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

3.3 観測事例 3 光化学反応によるオゾン生成による境界層内のオゾン増加

Fig.5 に 2021 年 5 月 3 日に観測されたオゾン混合比 (左) と後方散乱比 (中央) の高度・時間断面図と現地時間 12 時におけるスカイカメラの画像 (右) を示す。この日の昼間は快晴で風速は 9 時及び 12 時で 1.1 m/s, 2.4 m/s と弱く、ライダー観測で得られた高度 0.5 km 付近以下のオゾン濃度は 9 時から 12 時にかけて増加していることが分かる。この増加の原因は光化学反応によるものと思われる。高木町での Ox は 9 時と 12 時でそれぞれ 26 ppb, 55 ppb であった。光化学反応で Ox は 4 時間で 29 ppb 増加していることから 1 時間当たり 7.3 ppb の増加となっている。このオゾン生成率は地上における光化学反応によるオゾン生成率と矛盾はしていない⁹⁾。

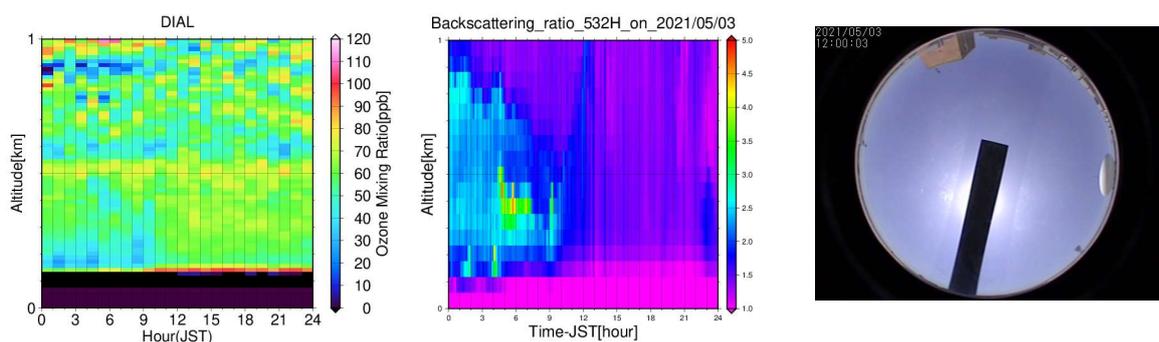


Fig.5 Time-altitude cross section of ozone mixing ratio (left), backscattering ratio (center) and sky-view image at 12 h LT (right) observed on 3 May 2021.

4. まとめ

オゾンライダー用のレーザーの交換とそれによるオゾン観測事例について述べてきた。レーザーのトラブルがない限り観測は安定して行うことができるが、市販品のフラッシュランプ励起 Nd:YAG レーザーでも第 4 高調波 266 nm のレーザーともなると現在でもトラブルが生じやすことは大きな問題である。

観測事例としては高度 2 km 以下のオゾンイベントについて 3 例示した。このような観測事例が地上の Ox 濃度を予測する化学輸送モデルの再現性を評価するサンプルとなれば幸いである。

参考文献

- 1) Emberson, L., Effects of ozone on agriculture, and forests and grasslands, Phil. Trans. R. Soc. A378:2019327. <http://dx.doi.org/10.1098/rsta.2019.0327>.
- 2) Tarasick et al., Tropospheric Ozone Assessment Report: Tropospheric ozone from 1877 to 2016, observed levels, trends and uncertainties. Elem Sci Anth, 7: 39. DOI: <https://doi.org/10.1525/elementa.376>, 2019.
- 3) Parrish et al., Investigations on the anthropogenic reversal of the natural ozone gradient between northern and southern midlatitudes, Atmos. Chem. Phys., 21, 9669–9679, 2021.
- 4) Uchino et al., DIAL measurement of lower tropospheric ozone over Saga (33.24 N, 130.29 E), Japan, and comparison with a chemistry–climate model: Atmos. Meas. Tech., 7, 1385–1394, 2014.
- 5) Trickl et al., Three decades of tropospheric ozone lidar development at Garmisch-Partenkirchen, Germany, Atmos. Meas. Tech., 13, 6357–6390, 2020.
- 6) Ohya et al., Seasonal variation of the O₃-CO correlation derived from remote sensing measurements over western Japan, Atmos. Environ. 147, 344–354, 2016.
- 7) Langford et al., Entrainment of stratospheric air and Asian pollution by the convective boundary layer in the southwestern U.S. J. Geophys. Res., Atmos., 122, 1312–1337, 2017.
- 8) Uchino et al., Lidar detection of high concentrations of ozone and aerosol transported from northeastern Asia over Saga, Japan, Atmos. Chem. Phys., 17, 1865–1879, 2017.
- 9) Archibald, A. T., et al. 2020. Tropospheric Ozone Assessment Report: A critical review of changes in the tropospheric ozone burden and budget from 1850 to 2100. Elem Sci Anth, 8: 1. DOI: <https://doi.org/10.1525/elementa.2020.034>, 2020.