

都市域下部対流圏オゾン観測のためのラマン DIAL の提案

広井 輝, 阿保 真

首都大学東京システムデザイン研究科 (〒191-0065 東京都日野市旭が丘 6-6)

Proposal on the Raman DIAL for lower tropospheric ozone observations in urban areas

Hikaru HIROI, Makoto ABO

Tokyo Metropolitan Univ., 6-6 Asahigaoka, Hino, Tokyo 191-0065

Abstract: High oxidant concentration is harmful to the human body. In urban areas, many damages to health have been reported. Monitoring of ozone concentration is important for the elucidation of generation mechanism and occurrence prediction of high concentration oxidant. The Rayleigh-Mie DIAL are not suitable for monitoring of lower tropospheric ozone concentration in urban areas because of difficulty in aerosol parameter estimation. Since the Raman DIAL using Raman scattering by nitrogen molecules can estimate atmospheric parameters, the measurement error decreases. We propose the Raman DIAL as an instrument for monitoring of ozone concentration in urban areas and show the feasibility of measurement by error simulations.

Key Words: DIAL, Tropospheric Ozone, Raman DIAL

1. はじめに

対流圏オゾンは、大気汚染物質である光化学オキシダントの主成分であり、人体に悪影響を及ぼす。特に夏季の都市域では、光化学オキシダント濃度が上昇しやすく、目まいや咳などの健康被害が多数報告されている¹⁾。現在、都市域における光化学オキシダント濃度観測は地上設置の自動計測器により行われているが、高濃度光化学オキシダントの発生機構の解明や発生予測のためには、鉛直分布を含めたきめ細かいオゾンの動態把握が必要である。

本研究では、都市域下部対流圏オゾンの連続観測を目指し、窒素ラマン散乱を利用したラマン DIAL を提案し、送信に Nd:YAG レーザを使用した際の測定誤差シミュレーションを行った。

2. レイリーミー-DIAL の原理と問題点

DIAL によるオゾン観測では一般的に、大気分子によるレイリー散乱及びエアロゾルによるミー散乱を利用したレイリーミー-DIAL (RM-DIAL) が使用されている。オゾンによる吸収が強い on 波長 (λ_{on}) と弱い off 波長 (λ_{off}) の各パルスレーザー光を大気中に放射する。レーザー光は、大気分子及びエアロゾルによる消散及び吸収を受け、後方散乱光が望遠鏡によって受信される。RM-DIAL では、以下の式により高度 r におけるオゾン濃度 $n(r)$ を求めることができる²⁾。

$$n(r) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dr} \ln \frac{\gamma_{\lambda_{on}}(r)}{\gamma_{\lambda_{off}}(r)} + \frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dr} \ln \frac{\beta_{on}(r)}{\beta_{off}(r)} - \frac{\alpha_{\lambda_{on}}(r) - \alpha_{\lambda_{off}}(r)}{\Delta\sigma} \quad (1)$$

ここで、 $\Delta\sigma$ は λ_{on} と λ_{off} におけるオゾンの吸収断面積の差、 γ は受信光子数、 β は後方散乱係数、 α は消散係数である。第 2 項、第 3 項は、それぞれ後方散乱係数に起因する補正項、消散係数に起因する補正項である。

λ_{on} と λ_{off} が近接している場合、これらの補正項が

十分小さくなり無視できる。しかし、オゾン観測に用いる Hartley 吸収帯には鋭い吸収線がなく、波長差を大きくとる必要があるため、補正項が無視できない場合がある。特に東京のような都市域の下部対流圏では、都市型エアロゾルや海塩粒子など様々なエアロゾルが混合しており、大気境界層でエアロゾルの性質が急激に変化する可能性もあるため、補正項が大きくなる可能性がある。そのため、大気パラメータの推定は不可欠であるが、RM-DIAL ではその推定が困難であり、正確な補正項の計算ができないため、都市域下部対流圏でのオゾン濃度測定に適していない。

Fig. 1 に、 $\lambda_{on}=280\text{nm}$, $\lambda_{off}=290\text{nm}$ の RM-DIAL の、補正項を計算しないことによる誤差 (補正項誤差) のシミュレーション結果を示す。オゾン濃度は地上から高度 2km まで注意報発令基準である 120ppb とし、東京付近での実測データ³⁾ をもとに作成した大気パラメータモデルを使用した。高度 850m 付近で大きな補正項誤差が生じている。

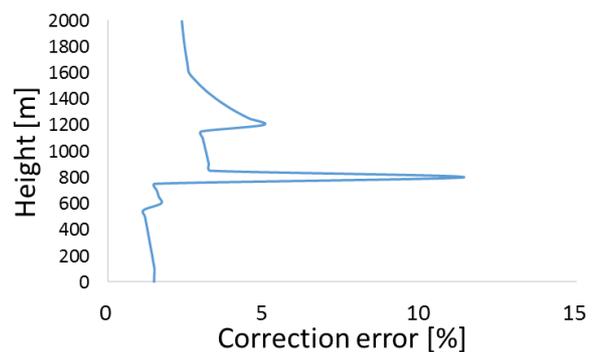


Fig. 1 Correction error of the Rayleigh-Mie DIAL for realistic urban atmosphere model.

3. ラマン DIAL の原理と提案

Fig. 2 にラマン DIAL の原理図を示す。ラマン DIAL では、大気中の窒素分子によるラマン散乱を利用し、各送信波長がそれぞれラマンシフトした波長 ($\lambda_{on,shift}$, $\lambda_{off,shift}$) の光を受信する。

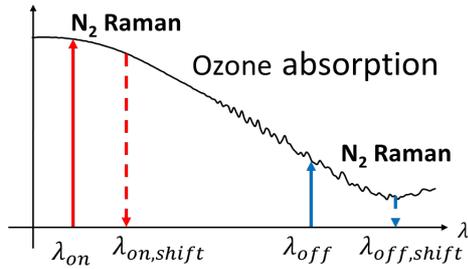


Fig. 2 Principle diagram of the Raman DIAL.

ラマン DIAL では、以下の式により、オゾン濃度 $n(r)$ を求めることができる⁴⁾。

$$n(r) = -\frac{1}{\Delta\sigma'} \frac{d}{dr} \ln \frac{\gamma_{\lambda_{on,shift}}(r)}{\gamma_{\lambda_{off,shift}}(r)} + \frac{1}{\Delta\sigma'} \frac{d}{dr} \ln \frac{\beta_{R_{on}}(r)}{\beta_{R_{off}}(r)}$$

$$\frac{(\alpha_{\lambda_{on}}(r) + \alpha_{\lambda_{on,shift}}(r)) - (\alpha_{\lambda_{off}}(r) + \alpha_{\lambda_{off,shift}}(r))}{\Delta\sigma'} \quad (2)$$

$$\Delta\sigma' = (\sigma_{\lambda_{on}} + \sigma_{\lambda_{on,shift}}) - (\sigma_{\lambda_{off}} + \sigma_{\lambda_{off,shift}}) \quad (3)$$

窒素ラマン散乱を利用する利点は、ラマン散乱断面積が既知であり、大気密度を仮定すると後方散乱係数 $\beta_{R_{on}}$ 及び $\beta_{R_{off}}$ を求めることができるため、式(2)の第2項をほぼ正確に計算できる点である。加えて、オゾンによる吸収を無視できる λ_{off} を選択した場合、 $\alpha_{\lambda_{off}}$ と $\alpha_{\lambda_{off,shift}}$ の和を $\lambda_{off,shift}$ の受信信号から導出することができ、第3項をある程度補正することができる。

よって、大気パラメータの影響を受けやすい都市域下部対流圏でのオゾン観測に適した手法としてラマン DIAL を提案する。

4. 測定誤差シミュレーション

4.1 ラマン DIAL の測定誤差要因

4.1.1. 統計誤差

DIAL では光電子パルスの量子的な揺らぎ（統計誤差）が受信信号の主要な誤差要因となる。統計誤差を Table 1 に示すシステム仕様で見積もった。装置の簡易化・小型化を考慮し、送信波長は Nd:YAG レーザの第4高調波 266nm を λ_{on} 、第3高調波 355nm を λ_{off} とした。

4.1.2. エアロゾル消散係数に起因する補正誤差

ラマン DIAL では、導出した $\alpha_{\lambda_{off}}$ と $\alpha_{\lambda_{off,shift}}$ の和から $\alpha_{\lambda_{on}}$ と $\alpha_{\lambda_{on,shift}}$ の和を推定する。その際、エアロゾル消散係数の波長依存性のべき数（オングストローム指数）を知る必要がある。オングストローム指数は都市域ではおおよそ 0 から 2 の間の値であることは分かっているが、その不確定さから補正誤差が生じる。今回は、この補正誤差を小さくするため、 λ_{off} の窒素ラマン散乱光（387nm）に加え、酸素ラマン散乱光（375nm）も受信し、これらの受信信号から

オングストローム指数を推定する。

Table 1. Raman DIAL system parameters

Laser energy [mJ]	50
Pulse repetition rate [Hz]	100
Rnage resolution [m]	100
Telescope diameter [cm]	30
Optical efficiency [%]	20
PMT quantum efficiency [%]	20
Time resolution [min.]	10
$\lambda_{on}, \lambda_{on,shift}$ [nm]	266, 284
$\lambda_{off}, \lambda_{off,shift}$ [nm]	355, 387

4.2 シミュレーション結果

Fig. 3 に、オゾン濃度が 120ppb のときのラマン DIAL の測定誤差（補正誤差と統計誤差）シミュレーション結果を示す。大気パラメータモデルは、RM-DIAL のシミュレーション時と同様の値を使用した。

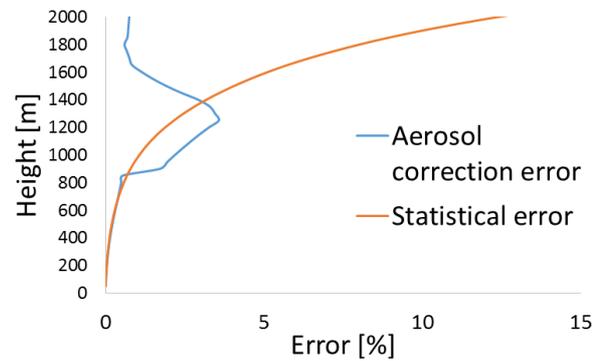


Fig. 3 Aerosol correction error and statistical error of the Raman DIAL.

5. おわりに

都市域下部対流圏オゾンの観測手法としてラマン DIAL を提案した。 $\lambda_{on}=266\text{nm}$, $\lambda_{off}=355\text{nm}$ とし、実測データをもとに作成した大気パラメータモデルを使用して、測定誤差シミュレーションを行ったところ、高度 1km 地点で 2.4% の誤差で測定できることがわかった。また、大気パラメータが急激に変化する 850m 付近の測定誤差は、RM-DIAL では 11% になるが、ラマン DIAL では 1.7% まで抑えられることがわかった。

参考文献

- 1) 東京都福祉保健局: 光化学スモッグ被害届出状況, http://www.fukushihoken.metro.tokyo.jp/kankyo/kankyo_eisei/taiki/smog/higai-jyoukyou.html
- 2) T. Murayama et al.: J. Geophys. Res., **108** (2003) ACE 1-19
- 3) 中里真久 他: 気象研究ノート No.299 (日本気象学会, 2014) p.133.
- 4) T. J. McGee, et al: Geophys. Res. Lett., **20** (1993) p.955.