

# 水平ライダー観測とミー散乱理論による地表付近 エアロゾルの特性解析

シャフケティ アリフ<sup>1</sup>, ラゴロサス ノフェル<sup>1</sup>, 椎名 達雄<sup>1</sup>, 久世 宏明<sup>2</sup>

<sup>1</sup>千葉大学大学院工学研究院 (〒263-8522 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33)

<sup>2</sup>千葉大学環境リモートセンシング研究センター (〒263-8522 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33)

## Characterization of near surface aerosols from lidar observation and Mie scattering theory

Alifu XIAFUKAITI<sup>1</sup>, Nofel LAGROSAS<sup>1</sup>, Tatsuo SHIINA<sup>2</sup>, and Hiroaki KUZE<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Chiba Univ., 1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 263-8522

<sup>2</sup>Center for Environmental Remote Sensing (CEReS), Chiba University, 1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 263-8522

**Abstract:** Aerosol optical properties are measured near the surface level using a near-horizontal lidar and optical sampling instruments. We compare the ambient values of the aerosol extinction coefficient from the lidar observation with the values inside the instruments (an integrating nephelometer and an aethalometer). In addition, optical particle counters provide information on aerosol size distribution, which is used to simulate extinction coefficients using the Mie scattering theory with corrections on the humidity growth of hygroscopic particles. By applying this method to the continuous data obtained from November to December 2018 at Chiba, we elucidate the temporal variations of near-surface aerosol properties, including the complex refractive index and single scattering albedo. The results indicate how aerosol particles change their properties between the dry, instrumental conditions and relatively humid settings in the ambient atmosphere.

**Key Words:** Lidar, Mie scattering, Aerosol, Extinction coefficient, Complex refractive index

## 1. はじめに

千葉を含む多くの臨海都市地域においては、自動車の排気、工場の煤煙など多くの人為的排出源に起因するエアロゾルに加え、土壌・海塩粒子などの自然起源エアロゾルが大気中に浮遊している<sup>1)</sup>。人の生活圏に近く、エアロゾル発生源に近い地表付近において大気エアロゾルを継続的に観測し、その光学特性や時空間変動を定量化することは、地域環境や地球環境科学の立場から必要性が極めて高い。本研究では、地上設置の水平観測ライダーと各種光学測器を同時に利用し、地表付近エアロゾルの時空間特性を解析した<sup>2)</sup>。特に、実大気の高湿度環境と測器中の低湿度環境におけるエアロゾルの消散係数、複屈折率の時間変化を調べ、相互比較を行った。

## 2. 計測装置と場所

エアロゾルの特性解析を行うため、紫外ミー散乱ライダー、積分型ネフェロメータや光学式粒子計数器などのサンプリング測器、および気象モニターを用いて長期連続計測を実施した。各種光学測器は、千葉大学の環境リモートセンシング研究センター(CEReS)の9階屋上に設置し、2018年11月26日から12月25日まで連続的に同時計測を行った。計測場所は、交通量の多い高速道路まで約2 km、工場や船舶の多い東京湾まで約3 kmの市街地に位置し(Fig. 1)、季節や風向に応じた各種のエアロゾルが観測される<sup>1)</sup>。

### 2.1 ミー散乱ライダー

紫外ミー散乱ライダー(Fig. 2)により、実大気環境下でのエアロゾルを測定した。光源は波長351 nmのNd:YLFレーザー(130 mW, 1 kHz)である。観測室屋上に45°大型平面鏡を設置し、水平に近い仰角4°で南西(225°)の東京湾方向にレーザー光を射出した(Fig. 1)。射出位置の海面高度は約65 mで、伝搬距離10 kmでの高度は700 mであり、観測範囲は概ね大気境界層内である。ライダー波形を信号記録装置(Licel, TR20-160)により積算し、7.5 mの距離分解能をもつライダー信号を5分ごとに取得した。

### 2.2 地上サンプリング測器

実大気中でのライダー観測結果と比較するため、地上サンプリング測器との同時計測を実施した。これら

の測器は結露を防ぐため、大気から吸引したエアロゾルを比較的高温(35°C程度)に保った観測部分に導いて測定を行っており、結果として低湿度環境下におけるエアロゾルの散乱・吸収係数と粒径分布が取得できる。散乱係数は3波長(450, 550, 700 nm)で測定可能な積分型ネフェロメータ(TSI 3563)、吸収係数はエサロメータ(Magee Scientific, Model AE-31)、粒径分布は2台の光学式粒子計数器(OPC, Rion KC-22B, KC-01E)で測定した。これらは、ライダー観測室と同じ屋上の約2 m<sup>2</sup>の観測装置室で連続運転した。エサロメータは、7波長(370, 470, 520, 590, 660, 880, 950 nm)で吸収係数を測定した。2台のOPCにより、微小粒子(0.08, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5 μm)および粗大粒子(0.3, 0.5, 1.0, 2.0, 5.0 μm)に分けて粒径区分ごとの粒子数濃度を測定した。また、降雨量・風向・風速・気温・相対湿度を測定するため気象モニター装置(Davis Vantage Pro2)も同時に使用した。

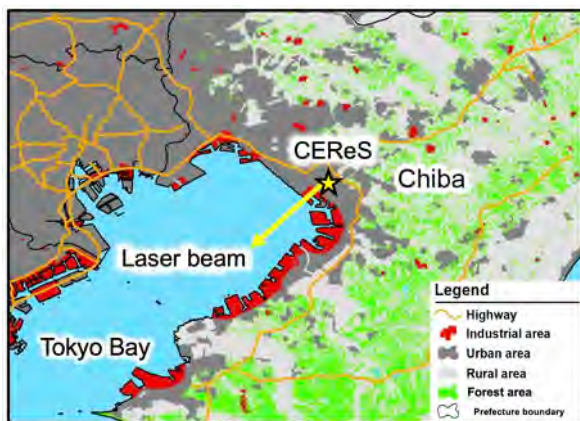


Fig. 1 Location of CEReS where the sampling and lidar observations were made. The observation direction of the near-horizontal lidar was fixed toward southwest, with an elevation angle of 4°.

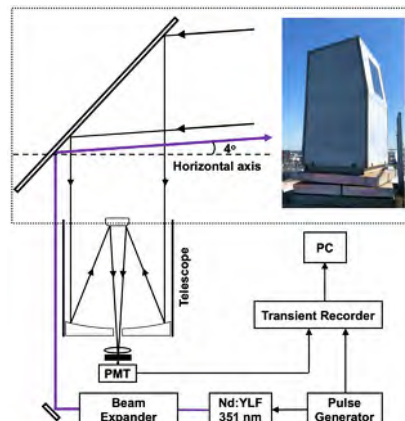


Fig. 2 Schematic of Mie scattering lidar system used to derive the aerosol extinction coefficient under the ambient condition.

### 3. 解析方法

水平観測によるライダー後方散乱信号の解析に当たっては、まずバックグラウンドと距離2乗の補正、および移動平均を行い、有効な信号成分を抽出した。近傍での重なり関数と遠方でのノイズの影響を除いて大気境界層内のエアロゾル消散係数を解析するため、Slope法を用いて参照距離(エアロゾル量により3~10 kmで変化)での消散係数の値を算出した。ついで、参照距離 $R_c$ より短距離側の信号にKlett法を適用し、レイリー散乱の寄与を差し引いてエアロゾル消散係数 $\alpha_{ext}$ の距離依存性を求めた<sup>3)</sup>。ミー散乱理論によるエアロゾルの複素屈折率の導出については、散乱計算に必要なパラメータである粒径分布はOPCデータを利用し、複素屈折率の実部を1.35~1.70(0.01刻み)、虚部を0~0.1(0.001刻み)の範囲で変化させて消散・散乱・吸収係数の参照テーブル(Look-up table, LUT)をそれぞれ作成した。OPCから得られた粒径分布データについては、分岐管から後のチューブ内輸送過程での粒子損失の補正を行った。各粒径分布データについてミー散乱計算を行い、消散・散乱・吸収係数のLUTを算出した。サンプリング測定から求めた散乱・吸収係数、およびその和である消散係数をLUTの結果と比較し、差が最小値となる実部と虚部がそのときの低湿度環境下大気における複素屈折率であるとした。実大気環境下においては、高湿度による吸湿性エアロゾル粒径の増大<sup>4,5)</sup>を考慮するため、まず、粒径の湿度依存性を用いて粒径分布を補正した。補正後の粒径分布を用い、上述と同じ範囲で複素屈折率の実部・虚部を変化させてLUTを作成し、ライダー観測から得られたエアロゾル消散係数との差が最小となる条件から複素屈折率の実部・虚部の値を決定した。なお、地上測器との比較に当たっては、距離2乗補正したライダー信号の対数が最大となる距離(約1 km、海面高度約130 m)の消散係数の値を用いた。

### 4. 結果と考察

30日間の昼夜連続観測におけるエアロゾル消散係数の時空間変動の計測結果をFig. 3(a)に、また、この間の相対湿度(RH)と降雨量の変化をFig. 3(b)に示す。測器内のRHは概ね15~60%の範囲で変動しているのに対し、実大気中でのRHは概ね30~96%の範囲での変化となっている。RHの増大に伴い、エアロゾル消散係数も増加している。高いエアロゾル消散係数は、雨天日(12月6日, 12日など)のほか、降雨がない日(11月28日~29日, 12月3日, 16日~17日など)において観測されている。エアロゾル消散係数が低い(視程が長い)とライダー信号が解析できる最大距離(参照距離 $R_c$ )が増加しており、その最大値は昼間で約6 km、夜間で約10 kmとなった。

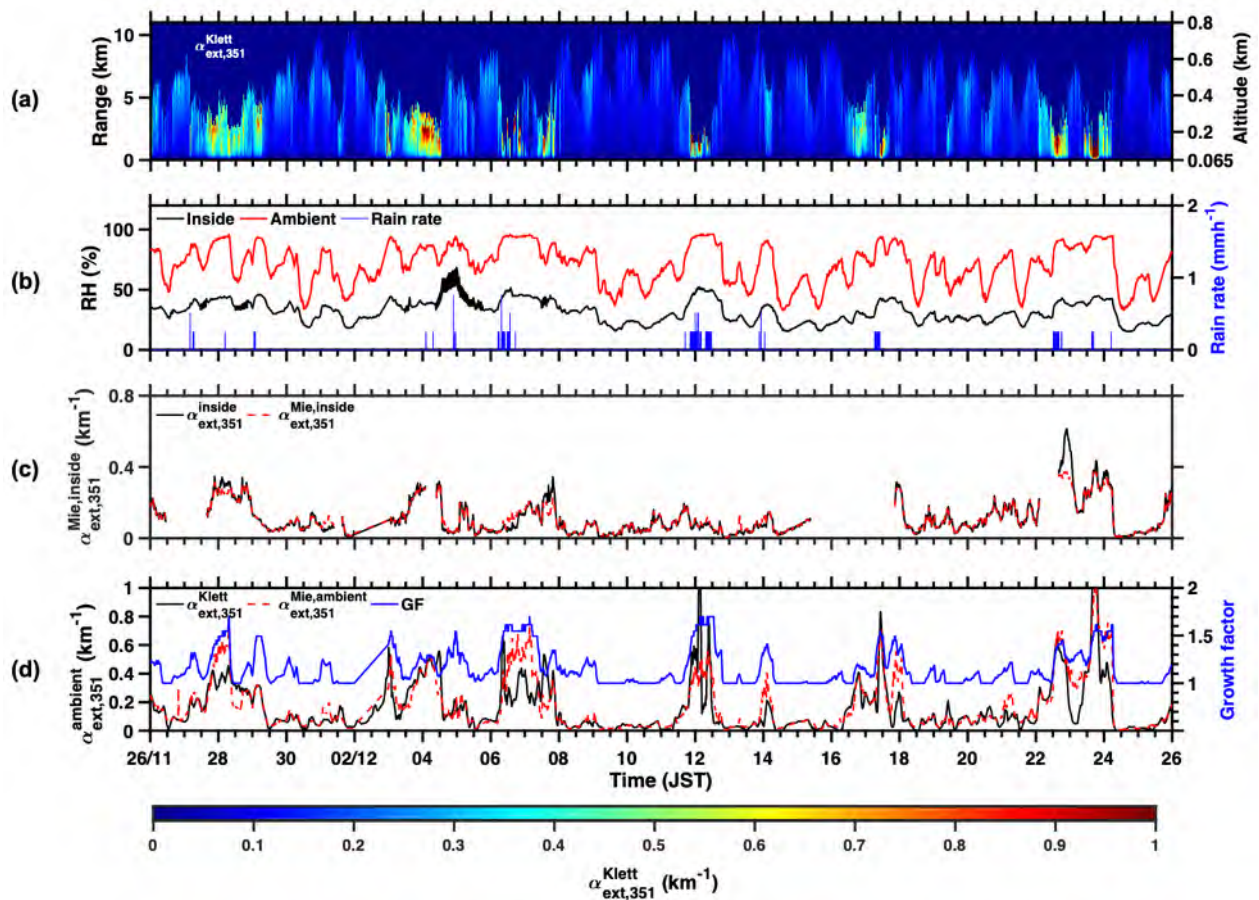


Fig. 3 Temporal variations of aerosol sampling, lidar, and meteorological parameters observed for the whole campaign period from 26 November to 25 December 2018: (a) the space-time indication of aerosol extinction coefficient from the Klett analysis of the lidar data; (b) instrumental and ambient values of relative humidity (RH) plotted with the rain rate; (c) The temporal change of aerosol extinction coefficient (black) at 351 nm inside instrument estimated from nephelometer and aethalometer, plotted with the aerosol extinction coefficient simulated from the LUT method (red); (d) The comparison of the aerosol extinction coefficient between the lidar retrieval and the Mie simulation, plotted with the aerosol growth factor (blue curve).

ミー散乱計算による低湿度下でのエアロゾル消散係数のLUTにおいては、複素屈折率の実部の増加が散乱係数の増加に、虚部の増加が吸収係数の増加に結びつく傾向が認められる。Fig. 3(c)に、ネフェロメータ・エサロメータから算出した消散係数（波長351 nmでの値）と、OPCによる粒径分布に基づくミー散乱計算による消散係数の時間変化の比較を示す。両者の相関は良く、雨天日のデータを含めた決定係数( $R^2$ )の値は0.95、雨天日を除いた場合は0.98となった。

実大気環境のミー散乱計算では、OPCからの粒径分布を粒子損失と粒子成長率の二つの効果について補正した。粒子損失の補正は低湿度環境下のミー散乱計算で用いた方法と同じである。粒子成長率による補正は、相対湿度依存性による値を使用した。Fig. 3(d)に、30日間の連続観測で得られた水平ライダーからのエアロゾル消散係数を、粒径分布に基づいたミー散乱の計算結果と比較して示す。同図にはまた、湿度によるエアロゾル粒径の増大因子の時間変化も示してある（最大値は1.7程度）。得られた二つの消散係数の値の相関は良く、ライダー信号のSNが低下する雨天日も含めた決定係数の値で0.71、雨天日を除いて0.90となった。

以上のようにして、低湿度環境と実大気環境下での大気エアロゾルの複素屈折率が導出できた。Fig. 4(a)、4(b)に、複素屈折率の実部と虚部の相対湿度依存性を示す。黒丸はサンプリング測定の消散係数により、白丸はライダー観測の消散係数により導出した値である。上述のように、サンプリング測器内のRH (15~60%) は低湿度環境に相当しており、複素屈折率とRHの間に顕著な関係は認められない。すなわち、周囲の大気環境より測器内をやや高温に保つことによるRHの影響除去は有効に機能している。一方、ライダー観測を含む実大気環境ではRHが大幅に変動し、~70%以上の高湿度条件下では吸湿性エアロゾルの粒径の増大が起こる。低湿度では複素屈折率の実部は1.53~1.63の範囲にあり、Fig. 4(a)に示すように、RHが増加すると実部の値は

水の屈折率(1.33)に近づく<sup>6)</sup>。雨天日のライダー観測ではSNが低下するため、湿度が90%を超えると実部の増加が見られた。一方、Fig. 4(b)に示すように、複素屈折率の虚部は低湿度で0.03~0.07と比較的大きな変動を示すが、RHの増加に伴い、値はやはり減少する<sup>7)</sup>。また、虚部はRHが35~45%の範囲において、実大気環境での値が低湿度環境での値よりやや低い結果となっている。これは実大気での測定値が地上付近に浮遊する粉塵の影響をより大きく受けるためではないかと考えられる。一例として、この値が現れる11月30日12:00~16:00において、千葉大学で常時運用されている環境研(NIES)ライダーのデータでダスト粒子が検出されている。RHの増加にともない、虚部が0.05から0.01まで低下している。一つの理由として、黒色炭素由来エアロゾルが水の膜でコーティングされる非吸湿特性に由来する可能性がある。Fig. 5に、低湿度の測器内環境と実大気環境において、ミー散乱理論により計算した消散係数(波長351 nm)の相関を示す。記号□で示したRH < 40%の点では、測器内と実大気の実値はほぼ1:1の関係が成り立つ。Fig. 5ではまた、RH > 60%の実大気で粒径増大を補正する前の点を黄色の◇で、補正後の点を緑色の●で示してある。補正前は実大気環境の値が1.4倍程度大きい、補正後は1:1に近づいていることが分かる。

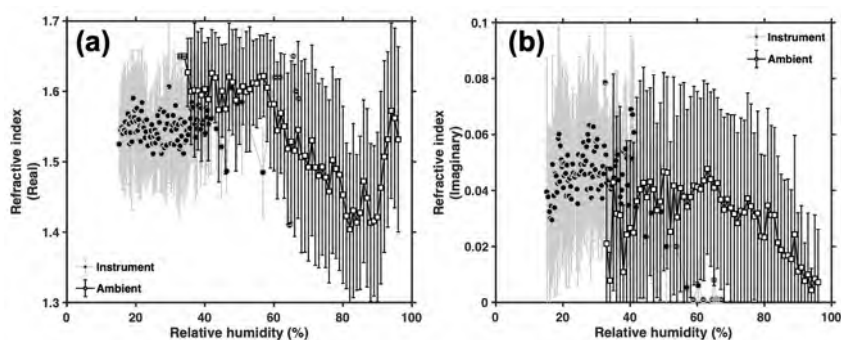


Fig. 4 Observed RH dependence of the (a) real and (b) imaginary parts of the aerosol complex refractive index.

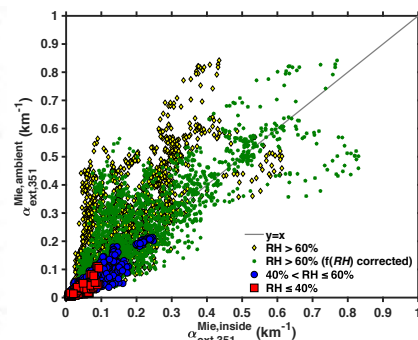


Fig. 5 Relationship between ambient and inside instrument extinction coefficients derived from Mie simulation.

## 5. まとめ

本研究では、30日間にわたるライダーと光学的サンプリング測器の同時計測に基づき、ミー散乱計算によるLUTを利用して地表付近エアロゾルの光学特性、とくに複素屈折率の変化について詳細に調べた。相対湿度の増加に伴う消散係数の増加、風速の増加に伴う消散係数の低下が見られた。実大気環境におけるミー散乱計算では、吸湿性エアロゾルの粒径増大効果を考慮し、エアロゾル捕集時の粒子損失による粒径分布と合わせて補正を行った。測器内の低湿度環境において、エアロゾル複素屈折率の実数部が1.53~1.63、虚数部が0.03~0.07の範囲で変動し、これらは都市域のエアロゾル複素屈折率の値に相当している<sup>9)</sup>。高湿度(RH > 60%)の実大気環境においては、RHの増大とともに実部が1.6から1.33に近い値まで低下し、吸湿性エアロゾルの変化を説明できた。本研究では水平観測ミー散乱ライダーと視程計を用いたエアロゾルの長期計測の研究<sup>3)</sup>を進展させ、同ライダーと各種サンプリング測器を用いた長期連続観測結果の解析を行った。最近、福岡における多波長ライダーと地上測器(エアロゾル化学成分連続自動分析装置、ACSA-12)の同時計測によるエアロゾル特性評価<sup>10)</sup>も報告されており、今後、ライダーと様々な地上測器を活用した研究の進展が期待される。

## 参考文献

- 1) S. Fukagawa, H. Kuze, G. Bagtasa, S. Naito, M. Yabuki, T. Takamura and N. Takeuchi: Atmos. Environ. **40** (2006) 2160.
- 2) A. Xiafukaiti, N. Lagrosas, P.M. Ong, N. Saitoh, T. Shiina, and H. Kuze: Appl. Opt. **59**(2020) 8014.
- 3) P. M. Ong, N. Lagrosas, T. Shiina and H. Kuze: Atmos. **11**(2020) 1.
- 4) I. N. Tang, W. Wong, and H. Munkelwitz: Atmos. Environ. **15**(1967) 2463.
- 5) N. Lagrosas, G. Bagtasa, N. Manago, and H. Kuze: Aerosol Air Quality Res. **19** (2019) 1856.
- 6) W. D. Dick, P. J. Ziemann, and P. H. McMurry: Aerosol Sci. Technol. **41**(2007) 549.
- 7) M. Cotterell, R. Willoughby, B. Bzdek, A. Orr-Ewing, and J. Reid: Atmos. Chem. Phys. **17**(2017) 9837.
- 8) D. A. Lack, M. S. Richardson, D. Law, J. M. Langridge, C. D. Cappa, R. J. McLaughlin and D. M. Murphy: Aerosol Sci. Technol. **46**(2012) 555.
- 9) J. -C. Raut and P. Chazette: Atmos. Chem. Phys. Discuss. **7**(2007) 10799.
- 10) Y. Hara, T. Nshizawa, N. Sugimoto, K. Osada, K. Yumimoto, I. Uno, R. Kudo, and H. Ishimoto: Rem. Sens. **10** (2018) 937.