

福岡での蛍光ライダーによる大気エアロゾルの蛍光観測 地上サンプリング計測との比較

白石浩一¹, 林政彦¹, 水谷耕平², 石井昌憲², 及川栄治², 安井元昭²

齊藤保典³, 富田孝幸³, 原圭一郎¹

¹福岡大学 (〒814-0180 福岡県福岡市城南区七隈 8-19-1)

²情報通信研究機構 (〒184-0015 東京都小金井市貫井北町 4-2-1)

³信州大学 (〒380-8553 長野県長野市)

Fluorescence properties of atmospheric aerosol observed by lidar Comparison with ground-level aerosol measurement

Koichi Shiraishi¹, Masahiko Hayashi¹, Kohei Mizutani², Shoken Ishii², Eiji Oikawa², Motoaki Yasui²
Yasunori Saito³, Takayuki Tomita³, Keiichiro Hara¹

¹Fukuoka Univ., 8-19-11 Nanakuma Jyonan-ku, Fukuoka 814-0180

²NICT, 4-2-1, Nukui-Kitamachi, Koganei, Tokyo 184-8795

³Shinshu University, Nagano, 380-8553

Lidar observations of fluorescence properties of atmospheric aerosol have been performed at Fukuoka since May 2014. In spring of 2015 and 2016, dust and polluted aerosol layers were frequently detected. Most of detected dust layers showed the broad fluorescence spectrum in the wavelength range of 420 - 510nm. Some liquid aerosol layers (pollution aerosol) showed the extreme strong broad fluorescence spectra with the peak of 450-470 nm. The liquid aerosol layers with small fluorescence were also detected. In our presentation, we will show their fluorescence properties for some types of aerosol (dust, pollution, background aerosol) observed in the spring of 2015 and 2016. We carried out the aerosol filter samplings on the ground and the fluorescence spectral analysis by spectrophotometer in spring of 2017. We will report the comparison of their results and those observed by lidar.

Key Words: Lidar, fluorescence, organic aerosol

1. はじめに

バイオエアロゾルや人為汚染大気に含まれる芳香族の炭化水素などの VOC 起源の有機エアロゾルは、蛍光を発することが室内実験により報告されている(Pohlker et al., 2012). そのため、ライダーによる大気エアロゾルの蛍光計測は、大気中を浮遊する有機エアロゾルの検出・時空間分布の情報を得られる可能性がある。我々は、福岡に飛来する黄砂、汚染大気や都市大気エアロゾル、有機エアロゾルの時空間分布を計測するため、蛍光ラマンライダーを開発し、2014年5月から夜間晴天時の観測を実施している。本発表では、2015-2016年春季に観測された黄砂、汚染大気、都市大気エアロゾルの蛍光特性について報告する。さらに、2017年春季に地上でエアロゾルサンプリングを行い、分光光度計による蛍光スペクトル分析も行った。それらの結果と蛍光ライダーで得られた蛍光特性を比較した結果についても報告する。

2. 測定装置と解析

ライダー装置は、光源として、Nd:YAG レーザーの 1064nm, 532nm, 355nm を利用した。受信は、口径 28cm と 35cm の 2 台の望遠鏡を利用した。蛍光計測は、Acton Research SP-2758 のグレーティング式分光器を用いて分光し、Licel PMT32 検出

器を用いて、32ch に分けて検出し、フォトンカウンティングにより計測を行った。355nm の励起波長に対して、380-510nm の波長域(波長分解能 4.7nm, 32ch)での蛍光・ラマン散乱光の計測を行った。さらに、532nm と 355nm では射出したレーザー光の偏光面に対して平行成分と垂直成分、1064nm の後方散乱光の成分の計測も、オシロスコープを使ったアナログ計測で行った。

地上でのエアロゾルのフィルターサンプリングは、2017年5月16~29日に理学部校舎屋上(標高 35m)で実施した。大気をポンプで吸引し、メンブレンフィルターに粒子を付着させた。1日1回のフィルター交換を行った。サンプリング試料の蛍光分析には、信州大学に設置している分光光度計(日立, F-7000)を使用した。

3. 観測結果

3.1 大気エアロゾルの蛍光特性

532nm での散乱比、偏光解消度から観測されたエアロゾル層を黄砂(偏光解消度 > 0.07)、汚染大気(偏光解消度 < 0.05)、バックグランドエアロゾル(都市大気、散乱比 < 2, 偏光解消度 < 0.05)に分類し蛍光特性について調べた。

観測されたエアロゾルの蛍光スペクトルは窒素分子のラマン散乱信号(386nm)で標準化して導

出された。蛍光強度として、420-510nmの波長域で相対蛍光強度を積算することにより全相対蛍光強度(TRFI)を導出した。

エアロゾルのタイプにより蛍光強度・蛍光スペクトルに違いが見られた。バックグラウンドエアロゾルの場合には、蛍光強度は非常に小さく($TRFI < 0.1$)、明確なピークは観測されていない。黄砂では、幾分強い蛍光を示し($TRFI: 0.2-0.3$)、蛍光スペクトルは明確なピークは観測されなかった。一方、液滴エアロゾルの場合には、非常に蛍光強度の強いエアロゾルから弱い蛍光を示すエアロゾルまで観測された($TRFI: 0.1-0.75$)。中国から飛来した汚染大気やシベリアの森林火災起源エアロゾルと推測されたエアロゾルは、特に強い蛍光を示し、特徴的な蛍光スペクトルが観測された。

例として、2015年3月9日に観測された汚染大気エアロゾルの結果を示す。Fig.1に2015年3月9日22時37分から22時57分にかけて観測された散乱比、偏光解消度、オングストローム係数、全相対蛍光強度(TRFI)の鉛直分布を示す。高度1~3kmにかけて、偏光解消度が低く(< 0.05)、散乱比の非常に高い液滴エアロゾル(汚染大気)を観測した。波長指数が1.9と比較的高い値を示していることから、サブミクロンサイズの粒子からなる液滴であると推測される。Fig.2に、液滴層が観測された高度域(1.9-2.4km)での蛍光スペクトルと、同じ高度域で液滴層が観測されていない時間帯での蛍光スペクトルを示す。液滴を観測したときの蛍光スペクトルは、420-510nmで非常に強い蛍光を示し、450-470nm付近で蛍光強度の増加(ピーク)が観測されていた。HYSPLITモデルによるバックトラジェクトリー解析は、液滴エアロゾルを含む空気塊が観測の1日前に北京上空を通過し、その時に境界層内部(500m)まで高度が下がっていたことを示した。人間活動により放出されるピレンなどの芳香族の炭化水素は450-460nm付近に強い蛍光のピークを示すことが分かっており、人為起源等のそのような有機エアロゾル成分を検知していた可能性が考えられた。

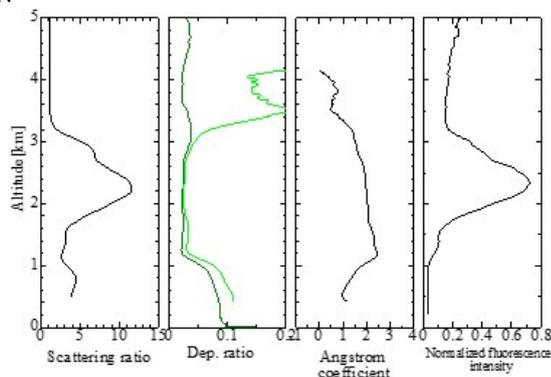


Fig.1 The vertical distribution of 532nm scattering ratio, 532nm depolarization ratio, angstrom coefficient, total relative fluorescence intensity observed at 22:37-22:57 on March 9, 2015.

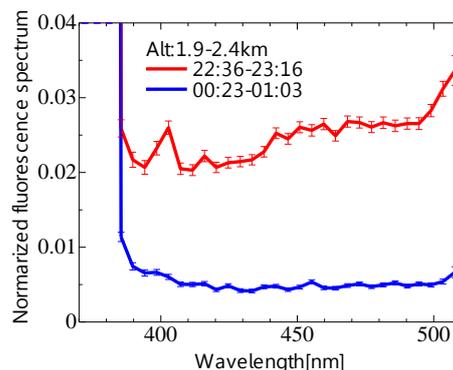


Fig.2 Fluorescence spectrums for concentrated polluted aerosol and background aerosol observed in the height range of 1.9-2.4km at 22:36-23:16 and 0:23-1:03 on March 9, 2015.

3.2 地上サンプリングとの比較

地上でのエアロゾルサンプリングは、全部で11サンプル得ることができた。その内の5サンプルの解析を信州大学で実施した。3つの励起波長266nm, 355nm, 532nmに対して、300-800nmの波長域での蛍光スペクトルを計測した。

サンプリング期間中は、黄砂や汚染大気などのエアロゾル濃度増大を伴ったイベントは観測されておらず、比較的低いエアロゾル濃度の低い大気状況下で実施された。

蛍光計測の結果として3つの励起波長に対して、計測した5サンプルの蛍光スペクトルを示す。いずれもサンプル試料と未使用フィルターでの蛍光計測を行い、その差から、サンプルの蛍光強度を導出した。

いずれの日でも、励起波長266nmと355nmで、特に355nmで、強い蛍光が観測された。532nmでは蛍光はほとんど観測されなかった。さらに、266nmと355nmの蛍光スペクトルでは、観測日より蛍光強度に違いがみられることが示された。また、355nmの蛍光スペクトルとライダーとの比較では、両者が良く対応している事が示された。

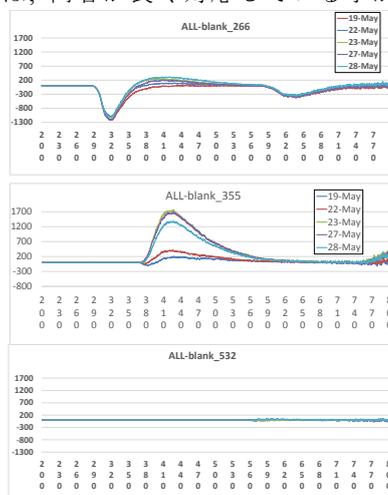


Fig.3 Fluorescence spectrums of aerosols sampled at ground level on March 19-28, 2017.