

エアロゾルと大気分子の光散乱計測

久世 宏明

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

Light Scattering Measurement of Atmospheric Aerosols and Molecules

Hiroaki KUZE

Cneter for Environmental Remote Sensing, Chiba University, 1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 263-8522

(Received January 14, 2020)

Lidar observation has widely been used for detecting atmospheric aerosols and molecules through the monitoring of backscattering signals. In this review, we describe the fundamental mechanism of the interaction of these atmospheric particles with laser beams propagating through the atmosphere. The basic equations of both Rayleigh scattering of air molecules and Mie scattering of aerosol particles are considered, with attention to the lidar applications.

キーワード：エアロゾル，大気分子，ライダー，レイリー散乱，ミー散乱

Key Words: Aerosol, Atmospheric Molecules, Lidar, Rayleigh Scattering, Mie Scattering

1. はじめに

地球大気の約 90% は高度約 10 km までの対流圏に存在しており，雲の生成・消滅や前線，台風などの気象現象の大部分はこの高度範囲において生じている．地球大気を構成する気体分子を総称して大気分子と呼ぶ．大気分子のうち，窒素分子 N_2 と酸素分子 O_2 の体積比は高度約 80 km までほぼ一定であることが知られており，その値は N_2 が 78%， O_2 が 21% である¹⁾．気候変動の主要因の一つは二酸化炭素 CO_2 で，その体積比は約 400 ppm，すなわち 0.04% である． CO_2 は地球の地表面や大気が宇宙空間に放出している波長 15 μm 程度の赤外線吸収によって，放射を通じた地球のエネルギー収支（放射収支）に影響を与えている²⁾．

二酸化炭素以上に赤外線の吸収に多大な影響を与えているのが大気中の水蒸気 H_2O である．水蒸気量は地球上の場所により，また同じ場所でも高度により大きく変化し，対流圏における体積比はおおよそ 0.1~3% の範囲にある．水蒸気は地表面や海面から蒸発することによって熱を奪い，一方，上空で凝結して雲となることで大気にその熱を放出している．水蒸気，雲，そして雲からの降水は，地球規模の大

規模な大気循環を通じて赤道域から極域へと太陽放射に由来する熱を輸送する働きを担っている¹⁻³⁾．

気体である水蒸気が凝結して液体・固体の雲粒を作る過程においては，その凝結核として働くエアロゾルの存在が欠かせない¹⁾．エアロゾルは大気中に浮遊する液体または固体の粒子であって，その大きさは数 nm から数 μm という広い範囲に及んでいる．エアロゾルの成因は複雑であるが，大別すると大気汚染気体からの粒子形成に由来する微小粒子と，海塩や土壌など自然起源の粒子を主成分とする粗大粒子に区分できる^{4,5)}．微小粒子の元になる気体としては燃焼等に由来する二酸化窒素 NO_2 や二酸化イオウ SO_2 があり，これらが大気中のアンモニア分子と化合して生じた硝酸アンモニウムや硫酸アンモニウムが微小粒子の主要な成分となっている．これらアンモニウム化合物と，海塩由来の塩化ナトリウムはいずれも潮解性を示す化合物であり，これらが大気中の水蒸気を取り込む形で微小な水滴が形成されて雲粒の元になる．粗大粒子の大きさは直径がおおよそ 2 μm から 10 μm の範囲にあり，これよりも大きな粒子は比較的早く沈降するため大気中の滞留時間が短くなる．なお，典型的な雲粒の大きさはおおよそ 10 μm である．また，春先に多く浮遊

する花粉粒子は、たとえばスギ花粉でその粒径が約 30 μm であり、通常の粗大粒子よりはかなり大きな粒径である。それでも春先の強い風によって数 10 km の範囲にわたって飛散する。

大気中でのエアロゾル濃度が高くなると太陽光の散乱が増え、視程が低下する。近年、アジアの大都市で問題となった PM2.5 による大気汚染は、人為起源の微小粒子が環境基準 (およそ $60 \mu\text{g m}^{-3}$) を大きく超えて存在することによって生じたものである。PM2.5 の例から理解できるように、エアロゾルは多くの場合、太陽放射を散乱するので、雲と同様に地表への太陽光入射を妨げる作用がある。ただし、微小粒子に多く含まれるすす(soot)の粒子は例外で、太陽放射を吸収するため、正の放射強制力をもっている^{4,5)}。

以上のように、地上付近の大気的主要な成分である大気分子、エアロゾルには多様性がある。サンプリングや光学測定を使った「その場計測」やリモートセンシング計測の手法が開発されてきた。本稿では、こうした計測手法のうち、とくにレーザー光の散乱を用いたライダー計測の立場から、その理解に必要な大気分子、エアロゾルの光散乱のメカニズムについて解説する。その散乱として、分子の場合には Rayleigh 散乱、エアロゾルの場合には Mie 散乱について取り扱う。なお、吸収を利用して特定の分子、たとえば水蒸気の分布を計測する差分吸収ライダーや、分子種によって散乱波長が異なることを利用した Raman 散乱ライダーについては本シリーズの別の論文に譲り、本稿では扱わない。また、大気分子やエアロゾルの散乱、吸収が太陽放射の直達光、散乱光強度にどのように影響するかについては、成書¹⁻⁵⁾を参照されたい。

2. 光散乱強度の理論

2.1 大気分子の Rayleigh 散乱

入射する電磁波の波長 λ に比べ、散乱体の粒子の半径 a が非常に小さい場合に生じる散乱を Rayleigh 散乱という。散乱理論では、一般に

$$x = ka = \frac{2\pi a}{\lambda} \quad (1)$$

で定義される x をサイズパラメータという。ここで $k=2\pi/\lambda$ は波数である。Rayleigh 散乱は $x \ll 1$ の場合に相当するので、大気分子 ($a < 1 \text{ nm}$) による可視光 ($\lambda \sim 500 \text{ nm}$) の散乱は Rayleigh 散乱とみてよい。Lord Rayleigh が 1899 年の論文⁶⁾で示しているように、単一の粒子からの Rayleigh 散乱では、散乱波の強度がその電磁波の波長の 4 乗に反比例する。よ

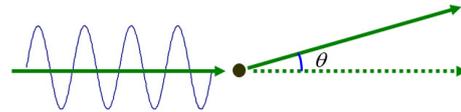


Fig. 1 Definition of scattering angle, θ .

く知られているように、太陽光の散乱においては大気分子によって短波長の光が強く散乱されるため、晴天時の青空が生じることになる。Rayleigh 散乱の角度分布については、後述するように散乱光は入射光の方向とその逆側の方向で最も強く、直角の方向で半分になる。

強度 I_0 の光が微小な粒子 (大気分子) に入射すると、光の振動電場によって粒子中に振動双極子が誘起され、この双極子による放射が散乱光として観測される。散乱角 θ は、Fig. 1 に示すように散乱体がない場合の入射光の直線と散乱光を表す半直線のなす角として定義され、前方散乱で $\theta=0$ 、後方散乱で $\theta=\pi$ となる。入射光と散乱光が存在する平面を散乱面といい、電場ベクトルがこの面に平行な直線偏光を p 偏光、垂直な直線偏光を s 偏光という。太陽光のように、ランダムな偏光をもった連続光が単一粒子に入射するとき、散乱粒子から距離 R の点 P における散乱光強度 I は、次式のように与えられる。

$$\begin{aligned} I(\theta) &= \frac{I_0}{R^2} \left(\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \right)_{\theta} \\ &= \frac{I_0}{R^2} \left(\frac{\tilde{\alpha}k^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{\cos^2\theta + 1}{2} \end{aligned} \quad (2)$$

ここで $d\sigma_{scat}/d\Omega$ は微分断面積と呼ばれ、散乱光強度の角度依存性を表している。 $\tilde{\alpha}$ は大気分子の分極率、 ϵ_0 は電気定数 (真空の誘電率) である。分極率はテンソルであるが、誘導体が等方性物質である場合スカラー量として扱える。式(1)を立体角 $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$ について積分することにより、Rayleigh 散乱の散乱断面積 σ_R が求められる：

$$\begin{aligned} \sigma_R &= \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \sin\theta d\theta d\varphi \\ &= \frac{8\pi}{3} \left(\frac{\tilde{\alpha}k^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \end{aligned} \quad (3)$$

$k=2\pi/\lambda$ であることから、 σ_R は波長の 4 乗に反比例することになる。なお、後述するように分子分極率は波長によってわずかであるが変化する。このため、厳密には波長の 4 乗則からのずれが生じることになる。

大気分子による消散係数 α_{mol} は、分子数密度を n_{mol} と表すと

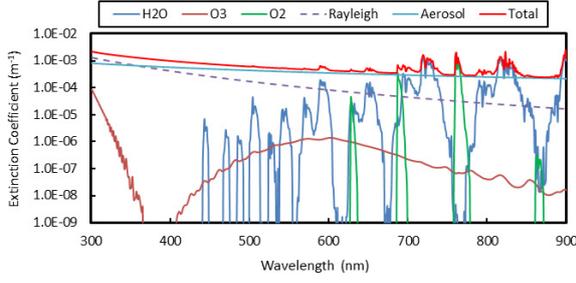


Fig. 2 Wavelength dependence of the extinction coefficient of various atmospheric components simulated at the surface level.

$$\alpha_{mol} = n_{mol}(\sigma_R + \sigma_{abs}^m) \quad (4)$$

となる。ここで、 σ_{abs}^m は、考えている波長での大気分子の吸収断面積である。以下に説明するように、太陽光のピーク波長である波長 550 nm における大気分子の Rayleigh 散乱断面積 σ_R はおよそ $4.3 \times 10^{-31} \text{ m}^2$ である。0°C, 1 atm では分子数密度は $n_{mol} = 2.69 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ であるから、分子吸収が無視できる場合の消散係数 α_{mol} は $1.16 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ と計算される。Fig. 2 に、可視・近赤外波長における消散係数の波長依存性の計算例を示す。

Rayleigh 散乱について、いくつか注記しておく。式(2)は、太陽光のようにランダムに偏光した入射光に対する散乱光強度である。散乱光を p 偏光成分と s 偏光成分に分けて観測する場合には、次の表式が必要になる：

$$I_p = \frac{3\sigma_R I_0}{16\pi R^2} \cos^2 \theta \quad (5)$$

$$I_s = \frac{3\sigma_R I_0}{16\pi R^2}$$

I_p は前方散乱と後方散乱で強度が最大となり、 $\theta = \pi/2$ では強度が 0 となる。一方、 I_s はすべての θ に対して同じ散乱光強度を与える。前方および後方散乱においては I_p と I_s の区別はなく、同じ散乱強度となる。

乾燥空気 (15°C, 1 atm, 0.045% の CO_2 を含む) の複素屈折率 \tilde{n} は、次式で近似される^{7,8)}：

$$(\tilde{n} - 1) \times 10^8 = \frac{5792105}{238.0185 - (\lambda_{vac}/\mu\text{m})^{-2}} + \frac{167917}{57.362 - (\lambda_{vac}/\mu\text{m})^{-2}} \quad (6)$$

この式中で λ_{vac} は真空中の波長であって、その範囲は 0.23~1.69 μm で有効である。

誘電体に関する Clausius-Mossotti の理論によれば、気体の誘電率 ϵ と気体分子の分極率 $\tilde{\alpha}$ との間には

Table 1 Wavelength dependence of molecular polarizability and Rayleigh cross-section.

λ (μm)	$\tilde{\alpha}/4\pi\epsilon_0$ (10^{-30} m^3)	σ_R (10^{-30} m^2)
0.355	1.7854	2.6205
0.532	1.7385	0.4926
0.550	1.7362	0.4301
0.756	1.7206	0.1183
1.064	1.7121	0.02986

$$\frac{\epsilon - \epsilon_0}{\epsilon + 2\epsilon_0} = \frac{n_{mol}\tilde{\alpha}}{3\epsilon_0} \quad (7)$$

が成り立つ⁹⁾。誘電率 ϵ と屈折率 \tilde{n} の間には

$$\frac{\epsilon}{\epsilon_0} = \tilde{n}^2 \quad (8)$$

の関係がある。さらに、 $|\tilde{n} - 1| \ll 1$ であることと合わせると

$$\frac{\tilde{\alpha}}{4\pi\epsilon_0} = \frac{\tilde{n} - 1}{2\pi n_{mol}} \quad (9)$$

が得られる。この式の左辺は、空気分子に可視光の電場が入射して生じる誘起双極子の大きさを与える電磁気学的な数値であり、右辺は光学測定からの数値である。この式の右辺は屈折率の 1 との差 ($\tilde{n} - 1$) が分子数密度 n_{mol} に比例することを表しており、結果として得られる分極率の値は気温や圧力によらず用いることができる⁸⁾。式(6)と式(9)を用いると、断面積 σ_R を波長 λ の関数として求めることが可能になる。

Table 1 に、主な波長に対する $\tilde{\alpha}/4\pi\epsilon_0$ と σ_R の値を示す。近似的には、次式によって断面積 σ_R を計算できる：

$$\sigma_R(\lambda) = \sigma_R(\lambda_0) \left(\frac{\lambda_0}{\lambda}\right)^4 g(\xi) \quad (10)$$

$$\xi = \frac{\lambda_0}{\lambda} - 1$$

$$g(\xi) = A + B\xi + C\xi^2 + D\xi^3$$

ここで、 λ_0 は 550 nm である。 $A \sim D$ は経験的に求められる定数であり、下記の値が最適値である：

$$A = 0.999942, B = 0.077131, C = 0.045941, D = 0.008492 \quad (11)$$

次に、レーザー光の場合のように直線偏光が単一の空気分子に入射するときについて考える。z 軸に沿って光が入射するものとし、その電場を $E_{0p} = E_0 \cos \varphi$, $E_{0s} = E_0 \sin \varphi$ と表す。空気分子の非球形性を考慮した場合、式(5)に相当する I_p, I_s は次式で与

エアロゾルと大気分子の光散乱計測 (久世 宏明)

えられる¹⁰⁾ :

$$I_p = \frac{A}{R^2} \frac{I_0}{1+2\gamma} [(\cos^2 \theta + \gamma \sin^2 \theta) \cos^2 \varphi + \gamma \sin^2 \varphi]$$

$$I_s = \frac{A}{R^2} \frac{I_0}{1+2\gamma} [\gamma \cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi] \quad (12)$$

ただし, $3\sigma_R/8\pi$ を A とおいた. γ は, 粒子 (分子) の非球形性を示すパラメータである偏光解消因子 Δ を用いて次式で表される¹¹⁾ :

$$\gamma = \frac{\Delta}{2-\Delta} \quad (13)$$

I_p, I_s を同時に観測する場合の微分断面積は

$$\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} = \frac{R^2}{I_0} (I_p + I_s) \quad (14)$$

で与えられるから,

$$\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} = \frac{1}{1+2\gamma} \left(\frac{\tilde{\alpha}k^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \times \{[\cos^2 \theta + \gamma(1+\sin^2 \theta)] \cos^2 \varphi + (1+\gamma) \sin^2 \varphi\} \quad (15)$$

となる. 散乱断面積は球形分子の場合と同じ式(3)になることが示される. 後方散乱係数 β は, $\theta = \pi$ における微分散乱断面積

$$\left(\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \right)_{\theta=\pi} = \frac{1+\gamma}{1+2\gamma} \left(\frac{\tilde{\alpha}k^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \quad (16)$$

を用いて

$$\beta = n_{mol} \left(\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \right)_{\theta=\pi} \quad (17)$$

によって計算される. したがって, ライダー方程式の解法で用いられる空気分子の消散係数と後方散乱係数の比 (大気分子のライダー比) S_2 は次式で表される:

$$S_2 = \frac{\alpha_{ext}}{\beta} = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{1+2\gamma}{1+\gamma} \right) \quad (18)$$

空気分子では $\Delta = 0.035$ であることから, S_2 の値は $(8\pi/3)(1+\Delta/2) = 8.52$ sr となる. この値は, 大気分子の非球形性を考慮しない値 ($8\pi/3 = 8.38$) に比べ, 約 1.7% 大きくなっている.

2.2 エアロゾル粒子の Mie 散乱

入射する電磁波の波長 λ と散乱体の粒子の半径 a がほぼ同程度の場合, あるいは波長 λ に比べて散乱体の粒子半径が大きい場合の散乱を Mie 散乱という¹²⁾. 大気エアロゾルの典型的な粒径はおおよそ 1

μm であり, 雲粒は $10 \mu\text{m}$ である. これらは, 可視光の典型的な波長 $0.5 \mu\text{m}$ に比べて同程度か大きく, したがって散乱は Mie 散乱とみてよい. Mie 散乱は, 散乱光の強度が波長にあまり依存しない特徴があり, そのため雲粒によって散乱した可視光線は白色光に近い色となる. 同様に, 高濃度大気汚染時のように大気エアロゾルが多く含まれる大気によって散乱された可視光も白色光に近い色となる.

Mie 散乱は, 単一の誘電体球や金属球による電磁波の散乱を電磁波の境界条件に基づいて計算するもので, 波動光学における回折や幾何光学における反射・屈折など, 複雑な過程がすべて考慮されている¹³⁾. また, Rayleigh 散乱の表式も, 粒子半径が小さい極限として Mie 散乱の表式から導出することができる. 散乱光の強度は, サイズパラメータ $x = 2\pi a/\lambda$ と複素屈折率 $\tilde{n} = n - in'$ によって決定される. 強度 I_0 の自然光が入射するとき, 散乱角 θ の方向で粒子から距離 R の点における光の強度 I は

$$I = \frac{I_0}{R^2} \left(\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \right)_{\theta} = \frac{I_0}{R^2} \frac{i_1 + i_2}{2k^2} \quad (19)$$

で与えられる. ここで, $i_1 = |S_1(\theta)|^2$ および $i_2 = |S_2(\theta)|^2$ はそれぞれ, 散乱面に対して電場ベクトルの偏光方向が垂直, 平行な光の強さを表す. $S_1(\theta)$ と $S_2(\theta)$ は散乱振幅と呼ばれる量で,

$$S_1(\theta) = \sum_{l=1}^{\infty} \frac{2l+1}{l(l+1)} \{a_l \pi_l(\cos \theta) + b_l \tau_l(\cos \theta)\} \quad (20)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{l=1}^{\infty} \frac{2l+1}{l(l+1)} \{b_l \pi_l(\cos \theta) + a_l \tau_l(\cos \theta)\} \quad (21)$$

のように表される (次数 l の部分波による展開式). $\pi_l(\cos \theta)$ と $\tau_l(\cos \theta)$ は, Legendre の陪関数 $P_l^{(1)}(\cos \theta)$ を用いて

$$\pi_l(\cos \theta) = \frac{1}{\sin \theta} P_l^{(1)}(\cos \theta) \quad (22)$$

$$\tau_l(\cos \theta) = \frac{d}{d\theta} P_l^{(1)}(\cos \theta) \quad (23)$$

と書ける. これらの表式は, 平面電磁波が誘電体球に照射されたとき, 球の内外での電磁波がつながる条件から導かれる. サイズパラメータ $x = ka$ と複素屈折率は, 式(20)と式(21)の展開係数である a_l と b_l の中に次の形で現れる:

$$a_l = \frac{\psi_l'(\tilde{n}x) \psi_l(x) - \tilde{n} \psi_l(\tilde{n}x) \psi_l'(x)}{\psi_l'(\tilde{n}x) \zeta_l(x) - \tilde{n} \psi_l(\tilde{n}x) \zeta_l'(x)} \quad (24)$$

$$b_l = \frac{\tilde{n}\psi'_l(\tilde{n}x)\psi_l(x) - \psi_l(\tilde{n}x)\psi'_l(x)}{\tilde{n}\psi'_l(\tilde{n}x)\zeta_l(x) - \psi_l(\tilde{n}x)\zeta'_l(x)} \quad (25)$$

ここで、複素関数 $\psi_l(\xi)$ は、

$$\psi_l(\xi) = (-1)^l \xi^{l+1} \left(\frac{1}{\xi} \frac{d}{d\xi} \right)^l \left(\frac{\sin \xi}{\xi} \right) \quad (26)$$

によって定義される関数であり、 $\psi'_l(\xi)$ はその導関数を表す。また、関数 $\zeta_l(\xi)$ は

$$\chi_l(\xi) = (-1)^l \xi^{l+1} \left(\frac{1}{\xi} \frac{d}{d\xi} \right)^l \left(\frac{\cos \xi}{\xi} \right) \quad (27)$$

$$\zeta_l(\xi) = \psi_l(\xi) + i\chi_l(\xi) \quad (28)$$

として定義される。

Mie 散乱の散乱断面積は、式(19)の微分断面積を全立体角について積分することにより、

$$\begin{aligned} \sigma_{scat} &= \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \sin\theta d\theta d\varphi \\ &= \frac{\pi}{k^2} \int_0^\pi (|S_1(\theta)|^2 + |S_2(\theta)|^2) \sin\theta d\theta \\ &= \frac{2\pi}{k^2} \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1)(|a_l|^2 + |b_l|^2) \end{aligned} \quad (29)$$

と求められる。吸収断面積は、

$$\begin{aligned} \sigma_{abs} &= \frac{4\pi}{k^2} \text{Re}(S(0)) \\ &= \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=1}^{\infty} \left(l + \frac{1}{2} \right) \text{Re}(a_l + b_l) \end{aligned} \quad (30)$$

となる。ここで、記号 Re は複素数の実部を表す。また、前方散乱に対しては $S_1(0)$ と $S_2(0)$ の値は等しいので、 $S(0)$ と表記した。このように、Mie 散乱では、通常、散乱断面積と吸収断面積が同時に計算される。

散乱と吸収の和を消散という。エアロゾル粒子の消散断面積 σ_{Mie} は $\sigma_{scat} + \sigma_{abs}$ に等しく、単位体積あたりの粒子数を n_{aer} とすれば、エアロゾル消散係数は

$$\alpha_{aer} = n_{aer} \sigma_{Mie} = n_{aer} (\sigma_{scat} + \sigma_{abs}) \quad (31)$$

で与えられる。

ライダー計測で重要な後方散乱係数 β_{aer} は、

$$\begin{aligned} \beta_{aer} &= n_{aer} \left(\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \right)_{\theta=\pi} \\ &= \frac{n_{aer}}{4k^2} \left| \sum_{l=1}^{\infty} (-1)^l (2l+1) (b_l - a_l) \right|^2 \end{aligned} \quad (32)$$

で与えられる。また、ライダー方程式の解法で用いられるエアロゾルの消散係数と後方散乱係数の比(ライダー比) S_1 は

$$S_1 = (n_{aer} \sigma_{scat}) / \beta_{aer} \quad (33)$$

と表される。後述するように S_1 の値はおおよそ 10~90 sr という広い範囲で変化し、これが Mie 散乱ライダーの定量的な解析を難しくする一因になっている。以上のほか、エアロゾルの光学特性の記述には、次のようなパラメータがよく用いられる。まず、散乱位相関数 $f(\cos\theta)$ は

$$f(\cos\theta) = \frac{1}{\sigma_{scat}} \left(\frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \right)_\theta \quad (34)$$

により定義される。この式から理解できるように、 $f(\cos\theta)$ を全立体角について積分すると 1 になる。単散乱アルベドは、

$$\tilde{\omega} = \frac{\sigma_{scat}}{\sigma_{scat} + \sigma_{abs}} \quad (35)$$

と定義される。吸収が 0 であれば $\tilde{\omega} = 1$ となり、完全に吸収される場合には $\tilde{\omega} = 0$ となる。散乱の非対称性因子 g は

$$g = \int f(\cos\theta) \cos\theta d\Omega \quad (36)$$

と定義される。ここで、 $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$ であり、積分は全立体角について行う。非対称因子は -1 から 1 の値をとり、値が大きいほど前方に散乱される割合が大きい。大気分子の Rayleigh 散乱では、前方と後方に対称な散乱パターンであるため、 $g = 0$ となる。エアロゾルの非対称性因子の値は通常、0.6~0.8 程度であって、前方散乱が卓越している。大気分子のライダー比 ($S_2 = 8.52$ sr) に比べてエアロゾルのライダー比 S_1 の値が大きいのは、エアロゾルでは前方散乱が卓越しており、後方散乱係数 β_{aer} が小さくなるためである。

Mie 散乱の消散効率因子 Q_{ext} は

$$Q_{ext} = \frac{\sigma_{Mie}}{\pi a^2} \quad (37)$$

と定義される。Fig. 3 に、3つの典型的な大気エアロゾルについて、 Q_{ext} のサイズパラメータ x への依存性を示した。この図から分かるように、水滴や硫酸アンモニウム液滴のような非吸収性のエアロゾルの場合には Q_{ext} は x が小さいところ ($x < 10$) で最大値をとり、その後、 x の増大にともなって振動しながら 2 に漸近する(厳密には 2 よりやや大きい)。この漸近値が幾何学的断面積 πa^2 のおおよそ 2 倍になるのは、光学における Babine の原理によって説明

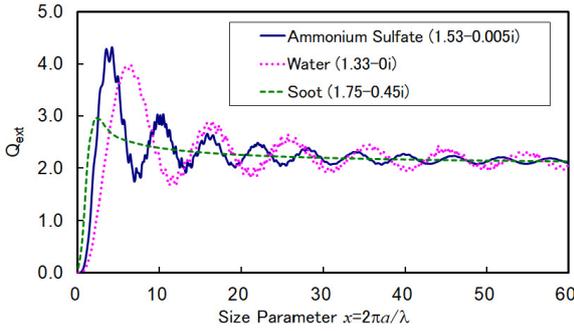


Fig. 3 Plot of Q_{ext} as a function of size parameter, x , for ammonium sulfate, water, and soot aerosols.

できる¹¹⁾。雲粒の典型的な大きさは $10\ \mu\text{m}$ なので、波長 $0.4\sim 0.7\ \mu\text{m}$ の可視光に対するサイズパラメータの大きさは $90\sim 160$ となる。したがって、雲粒に可視光が当たるときには、消散効率因子は波長によってほとんど変化しない。このことが、太陽光の下で雲が白く見える原因となっている。Fig. 3には、すすの粒子の消散効率因子も示してある。他の二つの場合と異なり、すす粒子では x の増加に伴う Q_{ext} の振動は現れていない。これは、複素屈折率の虚数部が大きく、したがって吸収が大きな粒子に見られる特性である。

なお、媒質が複素屈折率 $\tilde{n} = n - in'$ をもつとき、その虚数部 n' が媒質の吸収とどのように結びつくかは、次のようにして考察できる。実数部 n は通常の屈折率であり、媒質中の光速を v 、真空中の光速を c とすると

$$n = \frac{c}{v} = \left(\frac{\epsilon\mu}{\epsilon_0\mu_0} \right)^{1/2} \cong \left(\frac{\epsilon}{\epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (38)$$

が成り立つ。ここで μ_0 は磁気定数 (真空の透磁率)、 ϵ は媒質の誘電率、 μ は媒質の透磁率であり、通常物質では $\mu \cong \mu_0$ が成り立つことを用いた。複素屈折率に対応する複素数の波数は

$$\tilde{k} = \frac{\omega}{c/\tilde{n}} = (n - in') \frac{\omega}{c} = k - in' \frac{\omega}{c} \quad (39)$$

となるので、たとえば z 方向に進む電場の x 成分について

$$\begin{aligned} E_x &= E_0 \exp[-i(\tilde{k}z - \omega t)] \\ &= E_0 \exp[-i(kz - \omega t)] \exp\left(-n' \frac{\omega}{c} z\right) \end{aligned} \quad (40)$$

が成り立つ。光強度は電場の絶対値の2乗に比例するので、この媒質中での吸収定数 α_{abs} は

$$\alpha_{abs} = \frac{2n'\omega}{c} \quad (41)$$

と表せることになる。

3. エアロゾルモデル

3.1 粒径分布モデル

大気エアロゾルは上述したように幅広い粒径にわたって存在しており、これによる散乱・吸収を定量的に記述するためには粒径分布関数のモデル化が必要となる。単位体積中において半径が a から $a+da$ の間の粒子数を dN とすると

$$dN = N(a)da \quad (42)$$

と書ける。この $N(a)$ を粒径分布関数という。累積分布関数を

$$\tilde{N}(a) = \int_{a_{min}}^a N(a')da' \quad (43)$$

によって定義する。 $q = \log_{10} a$ と置くと、 $dq/da = 1/a \ln 10$ であるから、累積分布関数と粒径分布関数の関係は、

$$\frac{d\tilde{N}(a)}{dq} = N(a) \cdot a \ln 10 \quad (44)$$

これを用いると、エアロゾル消散係数は次のように表される：

$$\begin{aligned} \alpha_{ext} &= \int_{a_{min}}^{a_{max}} \pi a^2 Q_{ext}(a) N(a) da \\ &= \int_{q_{min}}^{q_{max}} \pi a^2 Q_{ext}(a) \frac{d\tilde{N}(a)}{dq} dq \end{aligned} \quad (45)$$

多くの観測に基づき、都市型、田園型、海洋型などいくつかの代表的なエアロゾルモデルがあり、これらは次式の3峰性対数正規分布で記述される¹⁴⁾：

$$\frac{d\tilde{N}(a)}{dq} = \sum_{i=1}^3 \frac{n_i}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_i} \exp\left[-\frac{(\log a/R_i)^2}{2(\log \sigma_i)^2}\right] \quad (46)$$

ここで、 \log は常用対数であり、 n_i 、 R_i 、 $\log \sigma_i$ はそれぞれ、 i 番目の分布曲線の積分値、平均粒子半径、分布の広がりを与えるパラメータである。Table 2 に代表的エアロゾルモデルに対するこれらパラメータと複素屈折率の代表値を示す¹⁴⁾。また、式(46)で計算される対数正規分布関数を Fig. 4 に示す。Fig. 4(a) は数密度で表した分布関数、同図(b) は面積で表示した分布関数である。後者を見ると、海洋型エアロゾルにおいて粗大粒子が多く、都市型エアロゾルで微小粒子が卓越している様子が理解できる。

Fig. 5 に、3つのエアロゾルモデルに対してミー散乱の計算を行って得られた(a)波長 $550\ \text{nm}$ で規格

Table 2 Size distribution parameters and complex refractive index assumed for representative aerosol models¹⁴⁾.

	n_i	R_i	$\log \sigma_i$	Ref. Index
Maritime				
$i=1$	133	0.0039	0.657	
$i=2$	66.6	0.133	0.21	1.40-0.0001 <i>i</i>
$i=3$	3.06	0.29	0.396	
Rural				
$i=1$	6650	0.00739	0.225	
$i=2$	147	0.0269	0.557	1.55-0.003 <i>i</i>
$i=3$	1990	0.0419	0.266	
Urban				
$i=1$	99300	0.00651	0.245	
$i=2$	1110	0.00714	0.666	1.51-0.017 <i>i</i>
$i=3$	36400	0.0248	0.337	

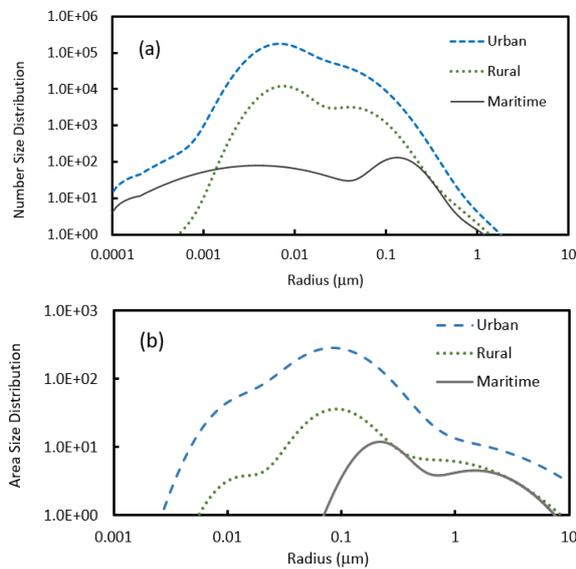


Fig. 4 Size distributions of typical aerosol models: (a) number size distribution and (b) area size distribution.

化した消散係数および(b)ライダー比 S_1 の波長依存性を示す。(a)において波長依存性をもっとも大きいのは都市型モデル、もっとも小さいのは海洋型モデルであるが、これはそれぞれ、微小粒子、粗大粒子が卓越していることに由来している。一般に、消散係数の波長依存性は次式によってよく近似できることが知られている¹⁵⁾：

$$\alpha_{ext}(\lambda) = \alpha_{ext}(\lambda_0) \left(\frac{\lambda}{\lambda_0} \right)^{-p} \quad (47)$$

この波長部分の指数 p を Angstrom 指数という。Fig. 5(a)の結果から3つのエアロゾルモデルに対して p の値を求めると、海洋型で0.55、田園型で0.84、都市型で1.25程度になっており、これは沿岸部においてサンフォトメータやスカイラジオメータ等の測器によりエアロゾル計測を行って通常観測さ

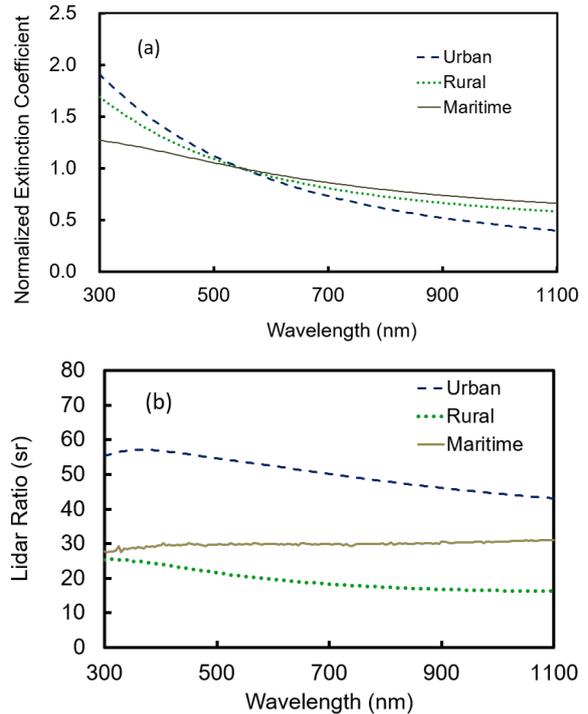


Fig. 5 Wavelength dependence of (a) normalized extinction coefficient and (b) lidar ratio (S_1) for urban, rural, and maritime aerosol models.

れる Angstrom 指数の値に近いものになっている。なお、Rayleigh 散乱の場合は p の値は4であり、これは粒子が小さいほど、短波長側での散乱断面積が大きくなることを反映している。

Fig. 5(b)に示したライダー比においては、 S_1 の値は波長とともに緩やかに変化するが、その大きさを比較すると都市型、海洋型、田園型の順になっている。このモデル計算では、 S_1 はおよそ15~60 srの間の値をとっている。

Fig. 6に、(a)波長532 nmおよび(b)波長1064 nmに対して計算した散乱位相関数の角度依存性を示す。前方散乱の強度は、波長532 nmのほうが1064 nmに比べて強くなっている。一方、後方散乱の強度は田園型が大きく、都市型・海洋型は同じ程度の大きさになっている。また、散乱角が90°~120°の範囲においては、海洋型エアロゾルからの散乱光強度が比較的弱くなっていることが分かる。こうしたことから、スカイラジオメータのように色々な散乱角の方向で天空光(散乱太陽光)の強度を観測し、直達太陽光と比較することによってエアロゾルの特性を計測することが可能になる¹⁶⁾。

ライダーの場合には後方散乱を観測するのが普通であるが、レーザー光の透過にともなう任意の方向での散乱光の計測を行うときは、次のようにして位相関数と散乱光強度を結び付けることができる。い

エアロゾルと大気分子の光散乱計測 (久世 宏明)

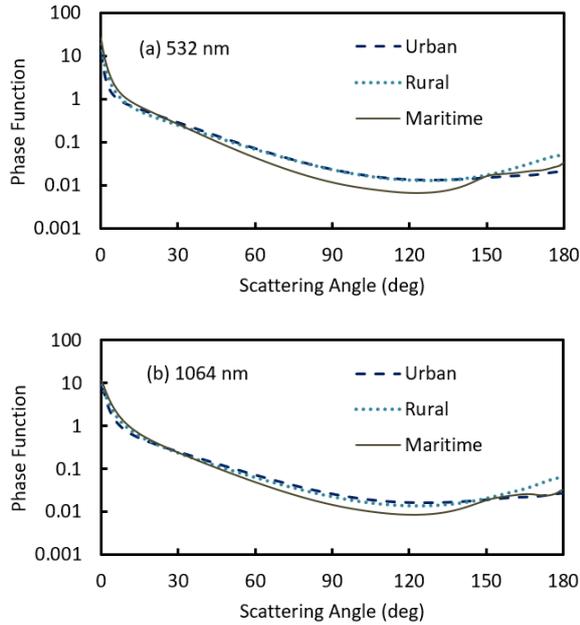


Fig. 6 Scattering-angle dependence of the phase functions for typical aerosol models: (a) 532 nm and (b) 1064 nm.

ま、パワー P のレーザー光が数密度 N 、散乱断面積 σ の散乱体の存在する空間を伝搬するものとする。距離 dz を進むとき、散乱角 θ 方向に散乱されるパワーは、

$$N\sigma f(\cos\theta)d\Omega \cdot Pdz = N \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\theta} d\Omega \cdot Pdz \quad (48)$$

と表される。位相関数、あるいは微分断面積が既知であれば、この式から θ 方向にある検出器が受光する光子数を計算できる。この式を全立体角について積分すれば

$$\begin{aligned} dP &= -N\sigma \iint f(\cos\theta) d\Omega \cdot Pdz \\ &= -N\sigma Pdz = -\alpha Pdz \end{aligned} \quad (49)$$

となって、Lambert-Beer の法則に一致する ($\alpha = N\sigma$ は消散係数)。

4. Mie 散乱ライダーの観測例

本節では、筆者のグループが千葉大学環境リモートセンシング研究センターにおいて行ってきたライダー観測のうち、とくに本稿に関係の深い Mie 散乱ライダーによるエアロゾル観測例について述べる。地表から鉛直上方に向けて多波長ライダー観測を行うことにより粒径情報を含むエアロゾルプロファイルを対流圏から成層圏下部まで取得できる。その際、各波長においてライダー比 S_1 の値を適切に評価することが不可欠である。昼間の観測でサン

フォトメータやスカイラジオメータの同時計測データが入手可能であれば、次式で定義される光学的厚さ $\tau(\lambda)$ が波長ごとに取得できる：

$$I(\lambda) = kE_0(\lambda) \exp[-m\tau(\lambda)] \quad (50)$$

$$m \cong 1/\cos\theta_S$$

ここで、 $I(\lambda)$ は測器が観測する光強度、 k は装置定数、 $E_0(\lambda)$ は大気上端での太陽分光放射照度、 θ_S は太陽天頂角である。また、 m はエアマスと呼ばれる量で、太陽天頂角とともに変化する。式(50)における装置定数 k の値は、エアロゾル量が少なく、かつ安定している基準日において日中を通じた観測を行い、 $\ln[I(\lambda)]$ を m に対してプロットすることにより決定できる (Langrey プロット)。光学的厚さ $\tau(\lambda)$ は鉛直方向で消散係数 $\alpha(\lambda)$ を積分したものと等しいので、これを拘束条件として波長ごとのライダー比 S_1 の値が決められる (Kinjo et al., 2001)¹⁷⁾。夜間の観測や、雲によって遠方までの信号が取得不能な場合にはこの方法は適用できない。そこで、Yabuki et al., 2003¹⁸⁾ においては、粒径分布・複素屈折率について予め可能な変動範囲を決めて参照テーブルを計算しておき、多波長ライダー信号を地上から順次解析する手法を提案した。こうした手法の発展形として、最近では多波長での散乱計測を行う積分型ネフェロメータや吸収計測を行うエーサロメータ、粒径分布測定を行うパーティクルカウンター等の地上エアロゾルサンプリング装置からのデータを援用した対流圏下部のエアロゾルについての研究が進展している^{19, 20)}。これらのライダーはいずれも後方散乱光を受光して解析するが、バイスタティック計測においては、高感度の紫外望遠鏡システムを用いることによって、地上付近のエアロゾル分布に関して後方散乱では得られない 2次元画像取得ができることを明らかにした^{21, 22)}。

長期間の連続した大気データ取得のためのライダーとして、マイクロパルスライダー (Micro Pulse Lidar, MPL) と可搬型自動アラインメントライダー (Portable Automated Lidar, PAL) が挙げられる。MPL は波長 523 nm (5 μ J/pulse, 2.5 kHz) のライダーで、同軸で送受信を行う装置である。MPL による 1 年間の連続観測データに基づき、筑波における混合層高度と気象の季節変化の関連を明らかにした (Chen et al., 2001)²³⁾。また、ライダーパルスの雲の透過と多重散乱の関係について理論計算との比較を行った (Widada et al., 2000)²⁴⁾。PAL は千葉大学と浜松フォトンクスが共同で開発した連続計測用のライダー (波長 532 nm, 6 μ J/pulse, 2.5/1.4 kHz) で、15

分に1回程度の自動アラインメント機能を備えている点に特徴がある。千葉上空のエアロゾルと雲の長期間の連続解析(Lagrosas et al., 2005)²⁵⁾や二方向からの同時のライダー雲計測結果と衛星データの比較(Bagtasa et al., 2007)²⁶⁾などの結果が得られている。また、地上サンプリングタとの時系列データ比較によって、ライダーによる光学測定とサンプリングによる浮遊粒子状物質(suspended particulate matter, SPM)の質量測定を橋渡しする質量消散係数についての詳細な解析を行うことができた^{27, 28)}。

5. まとめ

本解説では、大気中におけるレーザー光の散乱によって検出される大気分子やエアロゾルについて、その基本的な特性である Rayleigh 散乱と Mie 散乱について述べた。Rayleigh 散乱は、光の波長に比べて大気分子の大きさが十分に小さいことから生じる。その波長依存性は、電磁気学における誘電体理論を援用し、空気の屈折率の波長依存性から精度よく導くことができる。Rayleigh 散乱に基づくライダー比、すなわち消散係数と後方散乱係数の比を求めるには、分子が非球形であることを考慮する必要がある。Mie 散乱は、誘電体球に電磁波が照射されるときに起こる複雑な光学現象を電磁波の境界条件に基づいて説明する理論であり、その基本的な変数は、粒径と波長の比で与えられるサイズパラメータおよび誘電体球の複素屈折率である。大気中を浮遊する液体または固体粒子であるエアロゾルや雲の散乱は、Mie 散乱で記述される。

本解説では触れなかったが、レーザー光や太陽光が光学的に比較的厚い大気層を伝搬する際には、単散乱に加えて多重散乱の効果を考慮する必要がある²⁹⁾。また、大気中には鉱物に由来するエアロゾルや氷の結晶としての雲粒など非球形の粒子も存在しており、T-matrix の理論など、非球形の粒子による電磁波の散乱理論による扱いも必要である³⁰⁾。さらに、レーザー光の大気中伝搬において考慮が必要な現象として大気揺らぎがある³¹⁾。これらについては現在でも実験、理論の両面から研究が進展しており、必要に応じて適当な文献を参照されたい。

謝辞

本論文の執筆にあたり有用な議論を行っていただいた眞子直弘博士に感謝します。

参考文献

1) 小倉義光：一般気象学 第2版補訂版(東京大学出版会, 2016)。

- 2) 浅野正二：大気放射学の基礎(朝倉書店, 2010)。
- 3) 近藤純正 編著：水環境の気象学 一 地表面の水収支・熱収支一(朝倉書店, 1994)。
- 4) 笠原三紀夫, 東野 達 編著：エアロゾルの大気環境影響(京都大学学術出版会, 2007)。
- 5) J. H. Seinfeld and S. N. Pandis: "Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change, 3rd edition" (Wiley, 2016)
- 6) Lord Rayleigh F. R. S.: XXXIV. "On the transmission of light through an atmosphere containing small particles in suspension, and on the origin of the blue of the sky", The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, **47:287** (1899) 375-384, DOI: 10.1080/14786449908621276
- 7) P. E. Ciddor: "Refractive index of air: new equations for the visible and near infrared", Appl. Opt. **35** (1996), 1566-1573.
- 8) B. A. Bodhaine, N. B. Wood, E. G. Dutton, and J. R. Slusser: "On Rayleigh optical depth calculations". J. Atmos. Oceanic Tech., **16** (1999) 1854-1861.
- 9) 砂川重信：理論電磁気学 第3版(紀伊国屋書店, 1999), 75.
- 10) S. Chandrasekhar: "Radiative transfer" (Dover, 1960), 49.
- 11) R. M. Goody and Y. L. Yung, "Atmospheric Radiation — Theoretical Basis", Oxford University Press (1989).
- 12) G. Mie: "Contributions to the optics of turbid media, particularly of colloidal metal solutions". Ann. Phys. (Leipzig), **25** (1908) 377-445.
- 13) H. C. van de Hulst: "Light scattering by small particles", Wiley (1957).
- 14) P. V. Hobbs, ed.: "Aerosol-cloud-climate interactions", Academic Press (1993)
- 15) G. L. Schuster, O. Dubovik, B. N. Holben: "Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions". J. Geophys. Res.: Atmospheres, **111 (D7)** (2006).
- 16) T. Nakajima, G. Tonna, R. Rao, P. Boi, Y. Kaufman, and B. Holben: "Use of sky brightness measurements from ground for remote sensing of particulate polydispersions", Appl. Opt. **35** (1996) 2672-2686
- 17) H. Kinjo, H. Kuze, T. Takamura, M. Yabuki and N. Takeuchi: "Determination of aerosol extinction-to-backscattering ratio from multiwavelength lidar observation", Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 434-440.
- 18) M. Yabuki, H. Kuze, H. Kinjo, and N. Takeuchi: "Determination of vertical distributions of aerosol optical parameters by use of multi-wavelength lidar data", Jpn. J. Appl. Phys. **42 (2A)** (2003) 686-694.
- 19) J. Aminuddin, S. Okude, N. Lagrosas, N. Manago, and H. Kuze: "Real time derivation of atmospheric aerosol optical properties by concurrent measurements of optical and sampling instruments", Open J. Air Pollution, **7 (2)** (2018) 140-155.
- 20) P. M. Ong, N. Lagrosas, T. Shiina, and H. Kuze: "Surface aerosol properties studied using a near-horizontal lidar", Atmosphere (MDPI), **11 (1)**, 36 (2020) <https://doi.org/10.3390/atmos11010036>
- 21) S. Fukagawa, I. Kouga, H. Kuze, N. Takeuchi, M. Sasaki, Y. Asaoka, and S. Ogawa: "Simulation study for aerosol distribution retrieval from bistatic, imaging lidar data", Pacific Rim Conference on Lasers & Electro-Optics (July 2005) 1261-1268

エアロゾルと大気分子の光散乱計測 (久世 宏明)

- 1262.
- 22) Y. Yamaguchi, I. Kouga, K. Shinomiya, D. Kataoka, N. Takeuchi, H. Kuze, M. Sasaki, Y. Asaoka, and S. Ogawa: "Development of an imaging lidar for aerosol monitoring using a wide field-of-view, high-resolution telescope", Conference on Lasers and Electro-Optics - Pacific Rim (August 2007).
- 23) W. Chen, H. Kuze, A. Uchiyama, Y. Suzuki, and N. Takeuchi: "One-year observation of urban mixed layer characteristics at Tsukuba using a micro pulse lidar", *Atmos. Environ.*, **35** (2001), 4273-4280.
- 24) W. Widada, N. Takeuchi, H. Kuze, A. Tadaishi, and S. Shimamura: "Signal penetration into thick clouds studied by multi-layer data observed with a micro-pulse lidar", *Opt. Rev.* **7** (2000) 95-100.
- 25) N. Lagrosas, Y. Yoshii, H. Kuze, N. Takeuchi, S. Naito, A. Sone, and H. Kan: "Observation of boundary layer aerosols using a continuously operated, portable lidar system", *Atmos. Environ.*, **38** (2004) 3885-3892.
- 26) G. Bagtasa, C. Liu, N. Takeuchi, H. Kuze, S. Naito, A. Sone, and H. Kan: "Dual-site lidar observations and satellite data analysis for regional cloud characterization", *Opt. Rev.*, **14** (2007) 39-47.
- 27) N. Lagrosas, H. Kuze, N. Takeuchi, S. Fukagawa, G. Bagtasa, Y. Yoshii, S. Naito, and M. Yabuki: "Correlation study between suspended particulate matter and portable automated lidar data", *Aerosol Sci.*, **36** (2005) 439-454.
- 28) G. Bagtasa, N. Takeuchi, S. Fukagawa, H. Kuze, and S. Naito: "Correction in aerosol mass concentration measurements with humidity difference between ambient and instrumental condi-

- tions", *Atmos. Environ.*, **41**, (2007) 1616-1626.
- 29) M. I. Mishchenko, L. D. Travis, A. A. Lacis: "Multiple scattering of light by particles - Radiative transfer and coherent backscattering", Cambridge University Press (2006).
- 30) M. Mishchenko, J. Hovenier, L. Travis, eds.: "Light scattering by non-spherical particles - 1st Edition- Theory, measurements, and applications", Academic Press (1999).
- 31) P. R. Lang and F. S. Lombargo: "Atmospheric Turbulence, Meteorological Modeling and Aerodynamics", Nova Science Publishers (2010).

久世 宏明



1982年に東京大学大学院(物理学専攻)を修了し、理学博士の学位を取得。その後、理化学研究所レーザー科学研究グループ流動研究員、1984年静岡大学教養部助手、1986年同助教授。1987~1988、マックスプランク量子光学研究所客員研究員。1995年に千葉大学環境リモートセンシング研究センター助教授に転任、2004年同教授。2010~2014及び2018~2020同センター長。2014~2016、日本リモートセンシング学会会長。2020年4月より千葉大学名誉教授。所属学協会は、レーザーセンシング学会、応用物理学会、日本リモートセンシング学会、米国光学会、IEEEなど。専門分野は大気リモートセンシング、大気環境の光学計測。