



特集 ライダーデータ利用 [(エアロゾル・雲)

ドップラーライダーを活用した 大気汚染物質の動態・拡散過程の研究

髙島 久洋*1

1 福岡大学理学部(〒814-0022 福岡市城南区七隈 8-19-1)

Pollutant diffusion/variations using 3-D coherent Doppler lidar measurement

Hisahiro Takashima *1

¹Faculty of Science, Fukuoka University, 8–19–1 Nanakuma, Jounan-ku, Fukuoka 814–0180, Japan

(Received November 30, 2022; revised December 14, 2022; accepted December 19, 2022)

The Doppler lidar is a powerful tool for direct observation of 3-D wind speed/direction. Combining observations of trace gas/air pollutants with the Doppler lidar allows us to understand the finer diffusion process of air pollutants. In this report, we present a study of pollutant diffusion over the Fukuoka urban areas using the MAX-DOAS trace gas profile and ground-based gas/aerosol observations combined with Doppler lidar wind observations.

キーワード:ドップラーライダー, 大気汚染物質拡散, 二酸化窒素, MAX-DOAS **Key Words**: Doppler lidar, diffusion of air pollutant, nitrogen dioxide, MAX-DOAS

1. はじめに

ドップラーライダーは大気中に浮遊している粒子(主にエアロゾル粒子)にレーザー光を照射し、その周波数シフトから、粒子の動き、すなわち大気の流れを可視化できる観測装置である。大気境界層内の気象現象の諸過程、乱流、大気汚染物質の拡散過程等の研究に広く利用されている。福岡都市圏にある福岡大学では『福岡から診る大気環境研究所』を立ち上げるなど、国内最大級の大気エアロゾル・ガス観測拠点を構築してきた。本稿では、3Dコヒーレントドップラーライダーによる風観測と大気微量成分観測を組み合わせて実施している大気汚染物質の動態・拡散過程研究について紹介する。

2. 福岡都市圏でのドップラーライダー観測. 大気微量成分観測

福岡市は人口 160 万人を超える日本最西端の大都市である。中国・韓国からの越境大気汚染の影響を受けるとともに、福岡市自身から排出される大気汚染物質と越境大気汚染物質が混合する大気化学的に興味深い場所に位置する。福岡市は首都圏のように周辺に大都市がないほか、福岡都市圏での人為大気汚染物質の発生源が都市中心部(天神周辺)に集中している。さらに北側は海に面した平野(福岡平野)が広がり、海陸風循環など支配している気象場も単純であることから、大気汚染物質の輸送・拡散過程を研究する上で適した場所といえる^{1,2)}。福岡大学では、『福岡から診る大気環境研究所』を設置し、学外の研究所や大学等と連携をはかりながら、大気中のエアロゾル組成・ガス成分等の様々な観測を実施し、大気観測の基盤を構築してきた。

ドップラーライダーについては、2016年11月末に北海道大学と共同で三菱電機製3-Dコヒーレントドッ





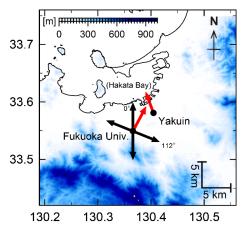


Fig. 1 Locations of observatories (Fukuoka University and Yakuin). Black arrows indicate the azimuth directions for RHI scanning of 3D-CDL (0° and 112°). Red arrows indicate the lines of sight of MAX-DOAS. Color shows altitude.



Fig. 2 Photograph of the 3D-CDL instrument installed at top of building A of Fukuoka University.

 $Table\ 1\quad Technical\ specifications\ of\ 3-D\ coherent\ Doppler\ lidar\ system.$

Parameter	Specification
Source of light	DFB-Er doped fiber laser
Wavelength	1.54 μm
Pulse energy	1.0 mJ/pulse
Pulse repetition rate	4000 Hz (average power: 4W)
Pulse width	200 ns
Telescope diameter (effective)	120 mm
Range resolution	60 m
Measurable distance	up to 12 km (200 range bins)

プラーライダー(以下 3D-CDL)を福岡大学 A 棟屋上(33.549°N, 130.366°E)に設置し(Fig. 1),福岡平野内の風直接観測を開始した。設置した 3D-CDL の外観を Fig. 2 に,3D-CDL の詳細を Table 1 に示す。観測波長はアイセーフ帯 1.54 μ m, 3D-CDL は風の 3 次元分布を直接観測することが可能であり,とくに都市域では大気汚染物質の拡散・輸送・混合過程,さらに微細な気象現象の可視化に利用できる³⁾。Fig. 3 に花火の噴煙の拡散事例を示す。この事例は,観測地点の北側に見られる花火の噴煙が北風に伴って南方向に流れなが



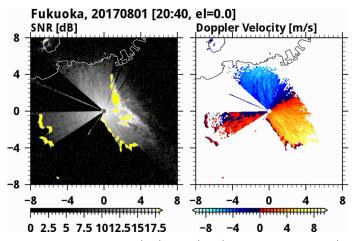


Fig. 3 Horizontal sections of (left) SNR, (right) radial velocity for PPI (Plan Position Indicator) scans with an elevation angle of 0° observed on 1 August 2017 by Doppler lidar in Fukuoka at 20:40 JST.



Fig. 4 Photographs of the compact MAX-DOAS instrument installed at Yakuin, Fukuoka

ら拡散する様子をとらえている。観測地点の北側では北風がストリーク構造をともなっていることが確認できるほか、観測地点の南東側では、観測地点南側の山(油山;標高 597 m)を迂回するように風が南向きから南東向きに変化している様子も確認できる。このように 3D-CDL は大気拡散過程の可視化に有用な観測機器である

次に、福岡にて大気微量成分の鉛直分布観測に利用している MAX-DOAS(Multi Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy)法(複数仰角における太陽散乱光分光計測・差分吸収測定法)について述べる。 MAX-DOAS 法は、紫外域から可視域の太陽散乱光を地上から複数の低い仰角で測定し、対流圏中の微量ガスやエアロゾルの鉛直分布・鉛直カラム濃度を連続的にリモートセンシング観測する手法である $^{4.51}$. 二酸化窒素(NO2)やエアロゾル、ホルムアルデヒド(HCHO)、二酸化硫黄(SO2)、亜硝酸(HONO)などの大気微量成分に加えて、一酸化ヨウ素(IO)や一酸化臭素(BrO)などのハロゲン物質 61 の鉛直分布の観測に利用されている。比較的安価な装置で複数の大気成分を同時に連続観測することができ 71 、大気汚染物質、大気化学過程の研究に広く利用されている。福岡大学では2012年に18号館屋上(33.550 $^{\circ}$ N、130.364 $^{\circ}$ E)に装置を設置し、福岡都市圏の大気汚染物質の観測・人工衛星観測データの検証等に利用してきた 11 . またモバイル観測用の小型装置の開発を行い(Fig. 4 に小型観測装置の1 例を示す)、自動車に搭載して福岡都市圏のNO2の空間分布把握や、都市圏からの窒素酸化物排出量推定に利用してきた(Fig. 5) 81 . また次節で紹介するように、福岡平野内の複数地点でNO2鉛直分布の同時観測を行い、3D-CDLによる風観測と組み合わせることで、福岡都市圏から排出された大気汚染物質の拡散過程を明らかにするための研究に利用してきた.



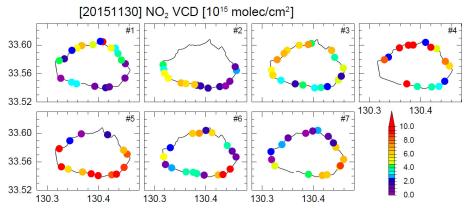


Fig. 5 Tropospheric NO_2 vertical column densities (VCDs) (molecules/cm²) observed by Car MAX-DOAS on the Fukuoka Urban Expressway in Fukuoka, along the closed circular route, on 30 November 2015 (7 circles from 8 am to 3 pm; #1-#7) (Yamaguchi et al., 2016)⁸⁾.

そのほかに福岡大学では、ライダーやシーロメータ、スカイラジオメータなどのリモートセンシング観測、エアロゾルの様々な組成の観測、ガス観測(一酸化炭素、オゾン、窒素酸化物、二酸化硫黄など)を学外の研究機関とも連携しながら実施している.

3. 大気汚染物質をトレーサーとした大気拡散過程の観測的研究

大気汚染物質の拡散において、汚染物質の鉛直分布やその要因を明らかにすることは重要である。ここでは、まず二酸化窒素(NO_2)の鉛直分布観測と 3D-CDL を組み合わせた研究事例について紹介する。 NO_2 は 短寿命大気汚染物質で、対流圏下層での寿命は最大 1 日程度、そのため発生源付近で濃度が高く、大気汚染物質の輸送や拡散過程を調べる際にトレーサーとして利用が可能である $^{1)}$. NO_2 の主な人為起源は化石燃料の燃焼と考えられ、福岡都市圏では自動車やバス等の排気ガスが主要な排出源と考えられる。

Fig. 6 に 2018 年 11 月 29 日に、都市部の薬院と福岡大学にて、MAX-DOAS 法で観測した NO_2 の時間-高度断面を示す。なお Fig. 1 に薬院と福岡大学の場所、MAX-DOAS の視線方向を示している。薬院は都市部

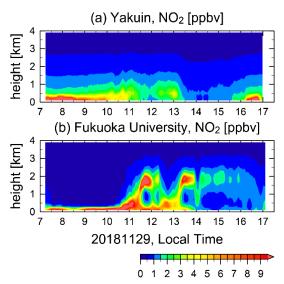


Fig. 6 Time-height section of NO₂ volume mixing ratio (ppbv) observed by MAX-DOAS at (a) Yakuin and (b) Fukuoka University on 29 November 2018 (Ueki et al., 2021)⁹⁾.



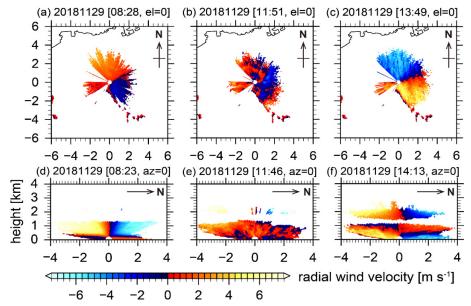


Fig. 7 Horizontal sections of radial wind velocity (m s⁻¹) for PPI scan with elevation angle of 0° at 8:28, 11:51, and 13:49 (top panels) and north-south height sections of radial wind velocity (m s⁻¹) for RHI (Range Height Indicator) with azimuth direction of 0° at 8:23, 11:46, and 14:13 (bottom panels) observed on 29 November 2018 by 3D-CDL in Fukuoka. For the top panels, axes show horizontal distance (km) from 3D-CDL. For bottom panels, the horizontal axis is distance (km) from 3D-CDL. The vertical axis shows height (km). Warm colors represent flow away from 3D-CDL. Cold colors represent flow toward it (Ueki et al., 2021)⁹⁾.

に位置しているが、海方向を観測している。いっぽう福岡大学は海から内陸側約5kmと離れているが、都市中心部上空の大気を観測している。午前中は地表付近で濃度が高く、特に薬院では、午前10時ころまで高濃度である。都市部上空を見ると(Fig. 6b)、10時半ごろから、より上空での濃度上昇がみられる。その後、薬院では13:30頃以降に地表付近で低濃度になり、30分ほど遅れて福岡大学の観測も低濃度になった。3D-CDLの風観測を合わせてみると(Fig. 7)、朝は弱い海方向の風が地表 200-300 m の層内で確認できる(陸風)。それより上空の風向きは下層と逆で海から陸向きである。昼頃になると水平風速は弱まり、ベナールセル状の構造が確認できる(Fig. 7b, e)。さらに午後になり、海側から強い風(海風)が流入している(ストリーク構造を伴っている)。朝は自動車などから排出された高濃度 NO_2 気塊が地表近傍に捕捉されているが、その後の鉛直混合により徐々に上空に拡散、その後、海風の流入により、高濃度気塊は南側に流れるとともに、海上の清浄な空気が流入したと考えられる。なお本事例のように海風によって高濃度空気塊が水平・鉛直輸送(拡散)する様子は、1年を通して観測された 91 。3D-CDL は風向風速だけでなく、微細な境界層構造を観測できるので、この事例のように大気汚染物質の拡散研究に極めて有効である。

ドップラーライダーを利用して海風前線の構造について調べた研究はこれまでいくつかある 10 . 海陸風循環の枠組みで、局地的な前線構造が有り、前線面が通過する際に地上大気組成がわずか数分間の間に急変動する事例がしばしば福岡でも観測されている。3D-CDLで観測する SN 比はエアロゾル量にほぼ比例し、局所前線面の後方では近傍で排出されたエアロゾルが捕捉されてエアロゾル濃度が比較的高くなることが予想されるため、SN 比の観測からも前線を探すことができる。Fig. 8 に福岡平野で観測された海風前線の事例を示す(SN 比と視線速度の水平断面および鉛直断面)。Fig. 8a では南西から北東方向に前線面(収束帯)がみられ、その前面(北西側)で SN 比が高い(地表付近でエアロゾル濃度が高い)。鉛直断面図(Fig. 8b 左)から前線の鉛直構造が確認できる。前線は南東方向に移動し、この事例では正午過ぎに福岡大学を通過した。通過時に、福岡大学での地表のエアロゾル濃度だけでなく、ブラックカーボン、一酸化炭素(CO)、二酸化硫黄(SO₂)についても同じタイミングで短時間での増加が観測された(Fig. 9)。なおこの事例では変化が見られなかったが前線通過時にオゾン(O₃)濃度の減少もしばしば観測されている 11 . この事例で



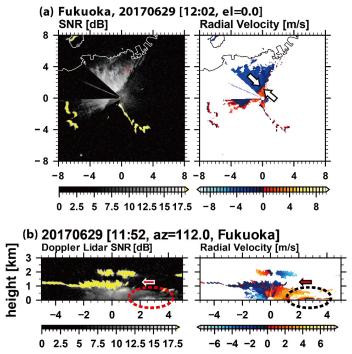


Fig. 8 (Left) SNR and (right) radial velocity for (a) PPI scan with elevation angle of 0°/(b) RHI scan with azimuth direction of 112° observed on 29 Jun 2017 by the Doppler lidar at Fukuoka during local front passage (Takashima et al., 2019) 11).

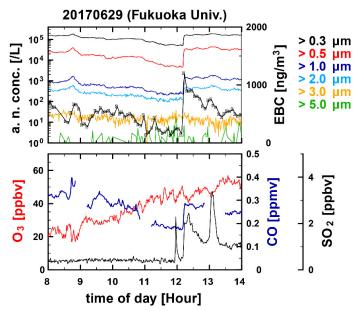


Fig. 9 Time series of aerosol, equivalent black carbon, ozone, carbon monoxide, sulfur dioxide observed in Fukuoka on 29 Jun 2017 (Takashima et al., 2019) ¹¹⁾.



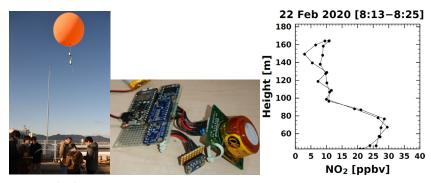


Fig. 10 (left) Photograph of vertical profile measurement using electrochemical sensor (middle) photograph of the electrochemical sensor unit (right) vertical profile of NO₂ observed at Fukuoka University on 22 February 2020.

は前線の深さが300-400 m 程度と浅く, また前線面通過時の大気汚染物質濃度の変化が比較的大きい事例であった. いくつかの海風前線の福岡平野の事例を解析したところ, 前線が鉛直的に浅い方が地上濃度変動で変化が大きい傾向がみられるようである.

さらに直接観測から拡散過程を明らかするため、3D-CDL、MAX-DOAS、地上観測に加えて Electrochemical センサと呼ばれる小型センサを用いて大気汚染物質の鉛直分布観測を行う研究も実施している(Fig. 10). 係留気球に気象センサとガス成分センサ(CO や NO₂)を搭載し、鉛直分布測定を行う. Electrochemical センサは安価でありまた省電力でもあり近年国内外で利用されるようになった。多地点での大気汚染物質の面的な動態観測などにも利用されている。このセンサは応答速度が速いという特徴があるので、鉛直分布観測に利用可能である。Fig. 10 に NO₂ 鉛直分布の事例を示す。早朝に地表近傍で濃度が高く、それよりも上空で濃度が低く、明瞭な境界が存在していることがわかる。この例では 3D-CDL の境界層構造の観測と MAX-DOAS NO₂ 鉛直分布観測と合わせて解析を行っている。

4. まとめ

福岡都市圏にて 3-D コヒーレントドップラーライダーによる風観測と大気微量成分観測を実施し、大気汚 染物質の拡散過程に関する研究を行っている.太陽散乱光を利用した MAX-DOAS 法と呼ばれるリモートセ ンシング法による二酸化窒素 (NO₂) の鉛直分布を福岡都市圏の2地点で実施し、都市部中心で排出された NO₂が水平・鉛直方向に拡散・輸送される様子の可視化に成功した。また局地前線通過にともない、地表 大気エアロゾル・ガス成分がわずか数分間という短時間で急変動する事例について、局地前線の水平鉛直構 造の観測と組み合わせて明らかにした研究を紹介した。大気環境を理解するための大気汚染物質の観測手 法、数値計算の高度化が進み、観測、モデルともに、より高時間・高空間分解能で理解が進むようになって きている. たとえば人工衛星観測については、TROPOMI (Tropospheric Monitoring Instrument) 衛星センサ の分解能は水平分解 5 km にまで向上し、さらに GEMS (Geostationary Environmental Monitoring Spectrometer) など静止大気環境衛星により、時間的に連続した観測が行われるようになってきた。衛星と地上観測、 モデル結果のすり合わせにより理解は少しずつ前進しているが、複雑な発生源をもつ都市圏においては、水 平・鉛直拡散過程の理解はまだ発展途上段階と言える。その際、ドップラーライダーは大気境界層の構造と 風観測を同時に行うことができ、衛星観測と地上観測とモデルをつなぐうえで極めて強力なツールとなる. 紹介した短寿命大気微量成分を利用したドップラーライダーとの複合観測による観測は、今後の大気環境を 理解する上で必要不可欠な研究手法といえよう。福岡という好立地な場所において、これまで築いてきた観 測基盤に強力な観測ツールが追加された. 今後も, 越境大気汚染, 都市大気汚染, 大気環境, 大気化学の知 見向上への貢献が期待される.

謝辞

福岡大学におけるドップラーライダー風観測は、藤吉康志北海道大学名誉教授の協力のもと実施している.



引用文献

- H. Takashima, Y. Kanaya, and H. Irie, "Spatiotemporal inhomogeneity in NO₂ over Fukuoka observed by ground-based MAX-DOAS," Atmos Environ., 100, 117–123 (2015).
- K. Hara, H. Takashima, A. Yoshino, A. Takami, C. Nishita-Hara, Y. Fujiyoshi, and M. Hayashi, "Seasonal variations of diurnal cycles of aerosols and gases in the Fukuoka Plain, Japan: Effects of local meteorology and atmospheric chemistry," Atmos Environ., 289 (2022).
- 3) 藤吉康志, "ドップラーライダーによる流れの観測と物質輸送," ながれ:日本流体力学会誌, **32**, 301-306 (2013).
- 4) Y. Kanaya, H. Irie, H. Takashima, H. Iwabuchi, H. Akimoto, K. Sudo, M. Gu, J. Chong, Y. J. Kim, H. Lee *et al.*, "Long-term MAX-DOAS network observations of NO₂ in Russia and Asia (MADRAS) during the period 2007–2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations," Atmos Chem Phys., **14**, 7909–7927 (2014).
- 5) H. Irie, H. Takashima, Y. Kanaya, K. F. Boersma, L. Gast, F. Wittrock, D. Brunner, Y. Zhou, and M. Van Roozendael, "Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations," Atmos Meas Tech., 4, 1027–1044 (2011).
- 6) H. Takashima, Y. Kanaya, S. Kato, M. M. Friedrich, M. Van Roozendael, F. Taketani, T. Miyakawa, Y. Komazaki, C. A. Cuevas, A. Saiz-Lopez *et al.*, "Full latitudinal marine atmospheric measurements of iodine monoxide," Atmos Chem Phys., 22, 4005–4018 (2022).
- G. Hönninger, C. von Friedeburg, and U. Platt, "Multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS)," Atmos Chem Phys., 4, 231–254 (2004).
- 8) 山口秀芳, 高島久洋, 丸山勇亮, "自動車搭載型装置を用いた MAX-DOAS 法による分光観測:福岡都市圏の二酸 化窒素 (NO₂) の時空間不均質性,"大気環境学会誌, **51**, 238-244 (2016).
- 9) H. Ueki, H. Takashima, and M. M. Friedrich, "Spatiotemporal Variations of NO₂ over Fukuoka Japan, Observed by Multiple MAX-DOAS and 3-D Coherent Doppler Lidar," Sola, **17**, 69–73 (2021).
- 10) H. Iwai, Y. Murayama, S. Ishii, K. Mizutani, Y. Ohno, and T. Hashiguchi, "Strong Updraft at a Sea-Breeze Front and Associated Vertical Transport of Near-Surface Dense Aerosol Observed by Doppler Lidar and Ceilometer," Bound-Lay Meteorol., 141, 117–142 (2011).
- 11) H. Takashima, K. Hara, C. Nishita-Hara, Y. Fujiyoshi, K. Shiraishi, M. Hayashi, A. Yoshino, A. Takami, and A. Yamazaki, "Short-term variation in atmospheric constituents associated with local front passage observed by a 3-D coherent Doppler lidar and in-situ aerosol/gas measurements," Atmos Environ-X, 3, 100043 (2019).

髙島久洋

福岡大学理学部・地球圏科学科,海洋研究開発機構(JAMSTEC)・地球環境部門地球表層システム研究センター所属。都市大気質に関する研究や海洋上の大気化学過程に関する研究等に従事。所属学会は日本大気化学会、日本気象学会等。