

大気汚染・温暖化関連物質監視のためのフーリエ  
変換赤外分光計測技術の開発に関する研究  
(革新的環境監視計測技術先導研究)

Development of FTIR measurement techniques for monitoring air-pollutants and  
green house gases

平成 12 ~ 14 年度  
FY 2000 ~ 2002

NIES



独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES  
<http://www.nies.go.jp/index-j.html>

大気汚染・温暖化関連物質監視のためのフーリエ  
変換赤外分光計測技術の開発に関する研究  
(革新的環境監視計測技術先導研究)

Development of FTIR measurement techniques for monitoring air-pollutants and  
green house gases

平成 12 ~ 14 年度  
FY 2000 ~ 2002

革新的環境監視計測技術先導研究「大気汚染・温暖化関連物質監視のためのフーリエ変換赤外分光計測技術の開発に関する研究」  
(期間 平成12～14年度)

特別研究責任者：笹野泰弘

特別研究幹事：中根英昭

報告書編集担当：中根英昭

## 序

本報告書は平成12年度から14年度の3年間にかけて実施した革新的環境監視計測技術先導研究「大気汚染・温暖化関連物質監視のためのフーリエ変換赤外分光計測技術の開発に関する研究」の成果をまとめたものである。

温室効果ガスの増加と様々なスケールでの大気質の劣化は、我々が毎日接している対流圏大気の二大問題である。これだけ身近でありながら、その全容を把握するための監視計測は容易ではない。スケールの大きさ、水平的な空間分布・鉛直分布、変動性の存在、多成分同時観測の必要性が常に立ちはだかってきた。計測技術の開発が常に求められてきた所以である。この分野で1990年代以降大きく発達した技術に、フーリエ変換赤外分光（FTIR）技術と人工衛星からの大気観測技術がある。FTIRそのものは新しい技術ではないが、フーリエ変換するというコンピュータ抜きでは事実上成立しないこの測定技術は、1990年代以降のコンピュータの高性能化と低価格化の恩恵を享受して発展・普及した。他方、人工衛星観測は、オゾンホールに代表される成層圏大気の観測で大きな成果を挙げた後、一酸化炭素やメタン等の対流圏大気成分、さらには二酸化炭素の排出量・吸収量の観測に挑戦しようとしている。

折しも、平成12年度末に竣工した地球温暖化研究棟に「衛星センサー分光パラメータ評価実験システム」が設置されたが、このシステムは、屋上のドーム内に設置された太陽追尾装置と3階の大気微量成分スペクトル観測室内に設置された高分解能フーリエ変換赤外分光計から構成されている。研究者は「高分解能FTIR」と略称しているようである。実際、 $0.0015\text{cm}^{-1}$ の分解能は既製品としては当時世界最高であったが、気体の吸収スペクトルの持つドップラー幅と圧力幅を分解して吸収のプロファイルを測るにはもっと高分解能であっても良い位である。また、人工衛星センサーの多くが、直接的あるいは間接的に太陽を光源として観測を行っており、太陽を光源にした大気吸収スペクトルの高分解能観測は、人工衛星観測に必要な多くの情報を与えるに違いない。

本研究の中で、一酸化炭素、メタン、二酸化炭素の鉛直分布やカラム濃度が観測されたことは、米国、欧州さらには我が国の衛星観測データの検証に対する、フーリエ変換赤外分光計測技術の有効性を示すものである。また、二酸化炭素の鉛直分布測定の結果が、データベースに集積された分光パラメータについて問題提起できる精度を持っていることも示された。本研究によって、「衛星センサー分光パラメータ評価実験システム」を活用する研究の第一歩を踏み出せたことは間違いない。

おわりに、研究を進める上で大学等、所外の関係者の方々に多くのご助言やご協力をいただいた。ここに深く感謝の意を表する次第である。

平成15年9月

独立行政法人 国立環境研究所  
理事長 合 志 陽 一



# 目 次

1	研究の目的と経緯	1
1.1	研究の背景と目的	1
1.2	研究の概要と構成	1
2	研究の成果	4
2.1	フーリエ変換赤外分光計 (FTIR) による大気微量成分の観測	4
2.1.1	FTIRの原理	4
2.1.2	インターフェログラムとスペクトルの関係	4
2.1.3	FTIR大気微量成分観測装置の概要	5
2.2	太陽光吸収スペクトル観測によるCO, N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , O <sub>3</sub> の鉛直分布の測定	6
2.2.1	太陽光の赤外吸収スペクトル観測による大気微量分子の鉛直分布の測定	6
2.2.2	観測装置と観測方法	7
2.2.3	解析方法	8
2.2.4	観測結果	10
2.2.5	他の解析法との比較	15
2.3	地上FTIRを用いた太陽光吸収スペクトル観測によるCO <sub>2</sub> の鉛直分布およびカラム平均濃度の解析	16
2.3.1	研究の背景	16
2.3.2	解析と観測結果	16
2.3.3	考察	18
2.4	高分解能FTIRを用いた長光路吸収法による大気微量成分の計測手法の研究	18
2.4.1	長光路吸収法による計測システム	18
2.4.2	観測	20
2.4.3	解析方法	21
2.4.4	観測結果	21
2.4.5	考察	28
2.5	今後の展開	35
	引用文献	35
	[資料]	
I	研究の組織と研究課題の構成	39
1	研究の組織	39
2	研究課題と担当者	39
II	研究成果発表一覧	40
1	誌上発表	40
2	口頭発表	41



# 1 研究の目的と経緯

## 1.1 研究の背景と目的

最近の数年の間にフーリエ変換赤外分光計 (Fourier Transform InfraRed spectrometer; FTIR) による大気汚染物質・温室効果ガス (以下、大気微量成分と総称する) 観測を取り巻く状況が大きく変わった。その第一は、大気微量成分の衛星観測またはその計画が急速に立ち上がってきたことである。これら気体成分濃度を衛星から観測する試みは、1996年8月に打ち上げられた日本の人工衛星ADEOS (みどり) に搭載されたIMG (Interferometric Monitor of Greenhouse Gases) によって行われ (IMG Mission Operation & Verification Committee<sup>1)</sup>、次に1999年12月に打ち上げられた米国の衛星センサMOPITT (Measurements of Pollution In The Troposphere) によって行われている。MOPITTは、一酸化炭素とメタンのカラム濃度 (地表面から大気上端までの積算濃度) および鉛直分布をグローバルに観測している (McKernan *et al.*<sup>2)</sup>)。また、2004年には、対流圏オゾンと一酸化炭素の観測を行う衛星センサTES (Tropospheric Emission Spectrometer) が打ち上げられる予定である (Luo *et al.*<sup>3)</sup>)。さらに注目すべきことは、米国、欧州において二酸化炭素のカラム濃度を衛星から観測する提案がなされており、日本においてもその可能性の検討が行われていることである。上記の衛星センサは大気汚染物質・温室効果ガスのカラム濃度、あるいは低い高度分解能での鉛直分布を観測するものである。衛星観測については検証が不可欠であるため、より高い精度で同一の物理量を測定する、太陽を光源とする地上からのFTIR観測が用いられるであろう (McKernan *et al.*<sup>2)</sup>; Yang *et al.*<sup>4)</sup>)。この役割を果たす手段としては航空機搭載測器による直接測定もあるが、FTIRがコストや観測の連続性の点で優れている。

他方、地上付近の大気汚染物質・温室効果ガスの観測については、平成9~11年に実施された革新的環境監視計測技術先導研究「大気有害化学物質監視用自動連続多成分同時計測センサー技術の開発に関する研究」による有害炭化水素類の多成分同時観測、DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) による可視・紫外域の長光路測定等の光学的観測手法も普及してきており、FTIRによる長光路測定が優位に立つ分野を絞り込んで

開発する必要が出てきた。太陽光を光源として地上でスペクトル観測する際には、その鉛直分解能が低いために、直接測定や地上付近でのFTIR測定により地上から数100mから2kmの間にある混合層 (境界層) 内の平均的な濃度を求め、太陽光源観測で求めたカラム濃度の変動や鉛直分布と比較することが重要である。

以上の背景を踏まえ、本研究では、FTIRを用いて太陽を光源とする観測を行いCO、N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>およびオゾンの鉛直分布を求めると共に、CO<sub>2</sub>の鉛直分布およびカラム平均濃度およびこれらの気体の地上付近での平均濃度をオープンパス長光路測定する手法の開発を行うことを目的とした。

## 1.2 研究の概要と構成

本研究は、(1) 長光路吸収法による大気汚染物質の同時多成分計測技術の開発 (2) 太陽光源赤外吸収スペクトルを用いた温暖化関連物質の鉛直分布計測技術の開発の二つのサブテーマによって構成されている。サブテーマ (1) では260mおよび409m離れた場所に置かれた人工光源を用い、サブテーマ (2) では太陽を光源として用いた。いずれの場合にも、分光測定は地球温暖化研究棟3階東端および屋上に設けられた大気微量成分スペクトル観測室に設置された衛星分光パラメータ評価実験システム (高分解能FTIR; Bruker IFS120HR) によって行った。測定する光の導入は、屋上のドーム内に設置された太陽追尾装置によって行った。大気微量成分スペクトル観測室の概略をドームの写真と共に図1に示す。高分解能フーリエ変換赤外分光装置の写真を図2に示す。

サブテーマ (2) では、上記装置によるデータの他に、国立環境研究所グラウンド横に置かれたコンテナ内に設置された移動型FTIR (Bruker IFS120M) によって取得されたデータ、名古屋大学太陽地球環境研究所陸別観測所 (Bruker IFS120M) および母子里観測所 (Bruker IFS120HR) によって観測されたデータとの比較や、異なる解析手法との比較を行った。

データの解析には、米国ジェット推進研究所 (JPL) が衛星センサーTESのために開発した解析ソフトウェアSEASCRAPEを用いた。SEASCRAPEは大気からの赤外



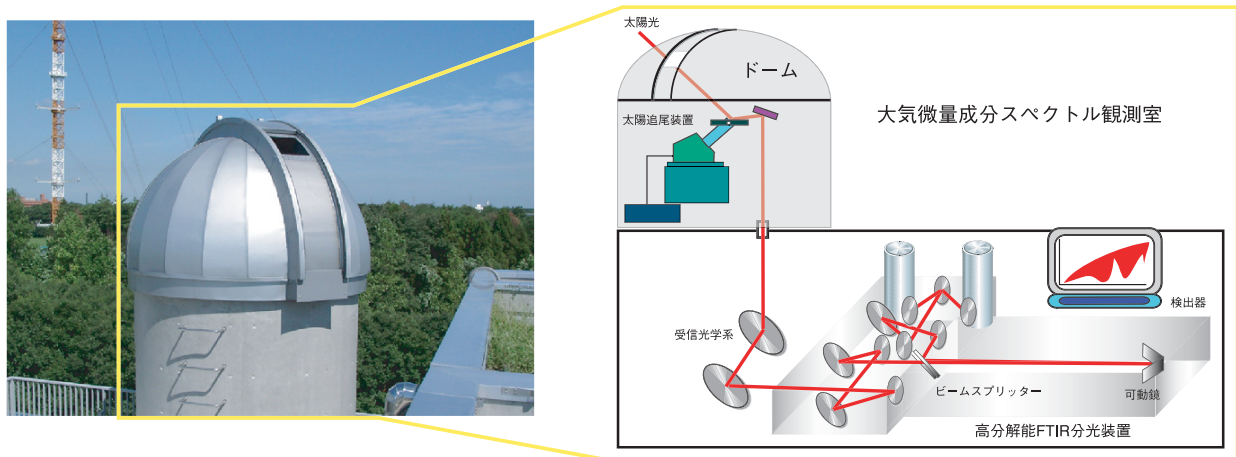


図1 地球温暖化研究棟屋上のドーム（左）および大気微量成分スペクトル観測室の概略  
 太陽光または外部人工光源からの光はドームの窓を通して太陽追尾装置に導かれ、受信光学系によってFTIRに導かれる。



図2 大気微量成分スペクトル観測室に設置された高分解能フーリエ変換赤外分光計（FTIR）

放射スペクトルの解析が可能であるという特長を持っているが、これを吸収スペクトルの解析に用いた。

本研究によって、太陽を光源とするFTIR観測からCO, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>の鉛直分布が求められた。また、CO<sub>2</sub>の鉛直分布およびカラム濃度測定に必要なリトリーバルを行い、0.05cm<sup>-1</sup>というそれ程高くない分解能で観測されたスペクトルでも対流圏下部のCO<sub>2</sub>濃度の情報を持つこと、1%より高い確度でカラム濃度を測定できることが示された。人工光源を用いたオープンパス長光路FTIR

観測では、CO, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>および地上付近の濃度が求められ、気温や水蒸気の影響が評価された。

なお、サブテーマは、(1) 長光路吸収法による大気汚染物質の同時多成分計測技術の開発 (2) 太陽光源赤外吸収スペクトルを用いた温暖化関連物質の鉛直分布計測技術の開発の順に番号が付されているが、上記の背景に述べた優先順位を考慮して、(2) の成果から順に報告することとした。

## 2 研究の成果

### 2.1 フーリエ変換赤外分光計 (FTIR) による大気微量成分の観測

#### 2.1.1 FTIRの原理

赤外領域においては、分光装置としてフーリエ変換分光計 (FTIR) を用いることで、広い波数範囲のスペクトルを高い波数分解能で計測することができる。FTIR はマイケルソン干渉計を用いた分光計であるが、入射した光はビームスプリッターによって二つに分けられ、一方の光は固定鏡で反射され、他方の光は可動鏡で反射され、これら2つの光束が検知器へ入る。可動鏡を前後に動かすことで二つの光の光路差により起こる干渉光の強度変化 (インターフェログラム) を測定し、それをフーリエ変換することによってスペクトルを得る。FTIRは入射光の利用効率が高く、強い信号強度を得ることができるのが特長である。図3にFTIRによる大気微量成分計測システムの概略を示す。

#### 2.1.2 インターフェログラムとスペクトルの関係

光源スペクトルについて単色光の光源を用いた場合、光の振幅を  $A$ 、波数を  $\nu$  とすると、光路差  $x$  の場合に得られる出射光の強度  $I(x)$  は、

$$I(x) = A^2(1 + \cos 2\pi\nu x), \quad (1)$$

となる (図4(a))。二色の単色光を発する光源を用いた場合には、異なった周期の正弦波の和の信号が得られる (図4(b))。さまざまな波数の混じった光がマイケルソン干渉計に入射したときに得られる出射光の強度を光路差  $x$  の関数として表すと、 $B(\nu)$  を受信光の強度の波数依存性を示す関数とすると、式(1)から、

$$I(x) = \int_{-\infty}^{\infty} B(\nu)(1 + \cos 2\pi\nu x) d\nu, \quad (2)$$

が得られる。式(2)のうち、変調信号を示す第2項の交流成分はインターフェログラム (interferogram) とよばれる (図4(c))。インターフェログラムはフーリエ変換対式の片方の式(3)に相当する。

$$F(x) = \int_{-\infty}^{\infty} B_e(\nu) \cos 2\pi\nu x d\nu, \quad (3)$$

$$B_e(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} F(x) \cos 2\pi\nu x dx, \quad (4)$$

$F(x)$  はインターフェログラム、 $B_e(\nu)$  は  $\nu \geq 0$  に対して  $B(\nu)/2$ 、 $\nu < 0$  に対して  $B(-\nu)/2$  で定義される受信光のスペクトルである。 $F(x)$  が観測量であり、それをフーリエ変換してスペクトルが得られる。

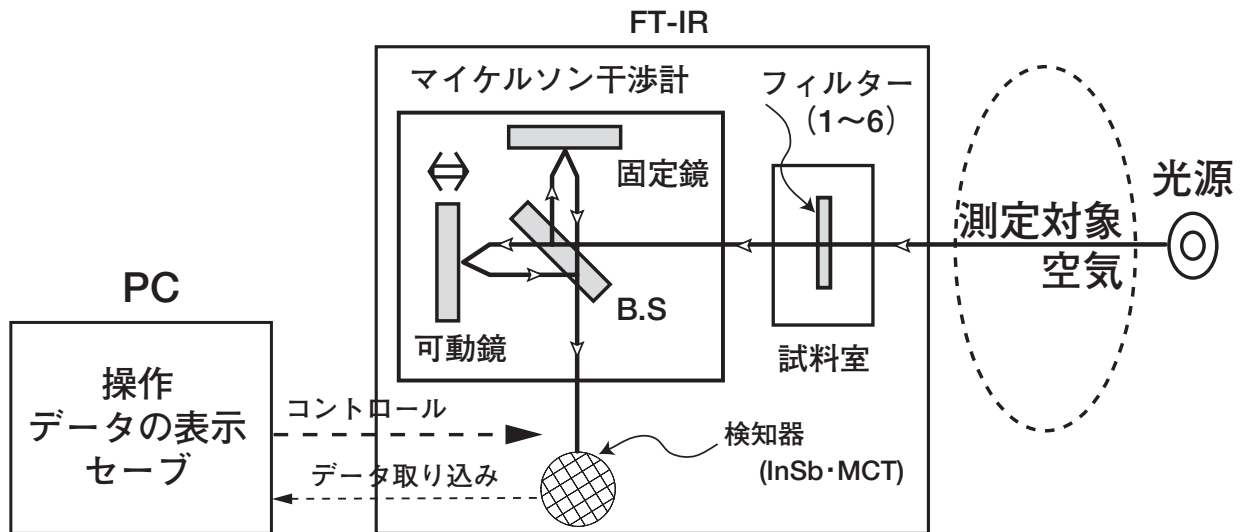


図3 FTIR装置の概略図

### 2.1.3 FTIR大気微量成分観測装置の概要

FTIR大気微量成分観測装置の概要は以下の通りである。

#### (1) 光源

大気微量成分の鉛直分布、あるいはカラム濃度を測定する場合は太陽を用いた。地上付近で大気微量成分のオープンパス長光路測定する場合は、主に炭化ケイ素(SiC)を棒状に焼結したグローバー灯光源を用いたが、 $2500\text{cm}^{-1}$ より高い波数(4  $\mu\text{m}$ より短い波長)ではハロゲンランプを併用した。

#### (2) 光学フィルタ

太陽光を光源にする場合には、波数領域を制限し、ダイナミックレンジを適正にするために、大気窓領域に対応した光学フィルタを用いた。今回使用した光学フィルタの波数領域を表1にまとめた。これらのフィルタのセットは「NDSCフィルタ」と呼ばれるもので、地上からの遠隔計測による成層圏オゾン層の変化を観測する国際的なネットワークであるNDSC (Network for the Detection of Stratospheric Change) のFTIR観測で共通に使用されているものである。

#### (3) 高分解能FTIR本体

観測には、主に地球温暖化研究棟3階大気微量成分ス

ペクトル観測室に設置したBruker社のIFS120HRを使用した。比較のためのデータは所内グラウンド横に設置した移動型FTIR (Bruker IFS120M) で取得した。それぞれの装置の諸元を表2にまとめる。

表1 光学フィルタの波数領域

名称	波数範囲
フィルタ1:	4016~4292 $\text{cm}^{-1}$
フィルタ2:	3007~3824 $\text{cm}^{-1}$
フィルタ3:	2421~3077 $\text{cm}^{-1}$
フィルタ4:	2020~2571 $\text{cm}^{-1}$
フィルタ5:	1750~2200 $\text{cm}^{-1}$
フィルタ6:	500~1400 $\text{cm}^{-1}$

表2 FTIRの諸元

型名	最高分解能	アパーチャー直径	可動鏡の移動距離
IFS120M	0.0035 $\text{cm}^{-1}$	0.3~10.0 mm	142.9cm
IFS120HR	0.0015 $\text{cm}^{-1}$	0.5~12.5 mm	333.4cm

#### (4) 検知器

波数が比較的小さい赤外光に対して感度の高い検知器

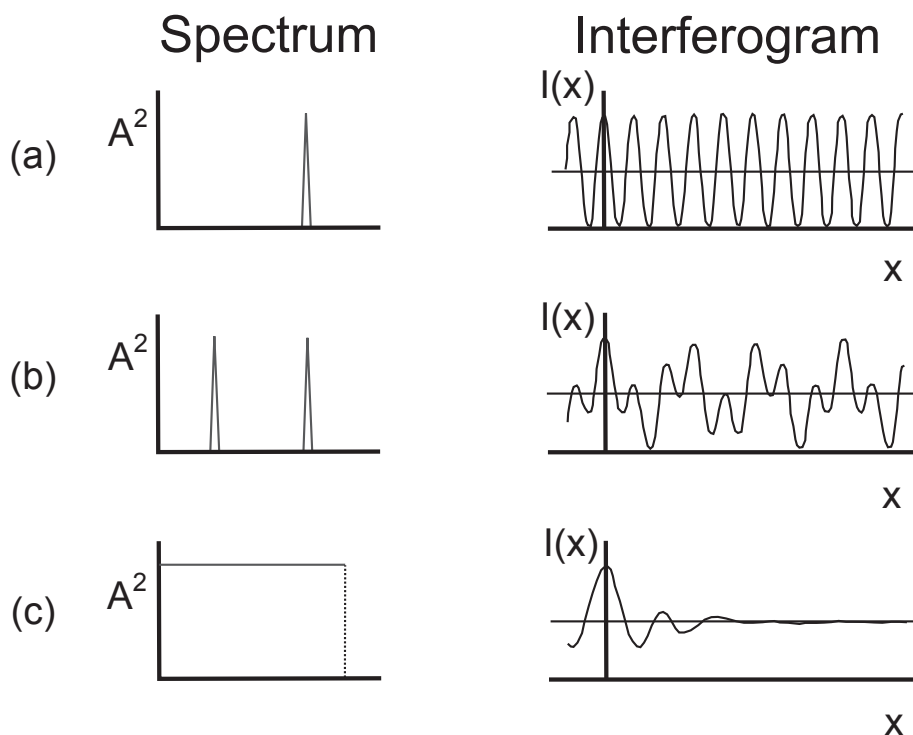


図4 光源のスペクトルと干渉計からの出力信号(インターフェログラム)との関係

として、水銀カドミウムテルル ( $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ ) 検知器 (略してMCT検知器) が用いられる。動作温度は液体窒素温度 (77K) で、感度領域は $500\sim 2000\text{cm}^{-1}$ である。中間赤外から近赤外域 ( $4000\sim 10000\text{cm}^{-1}$ ) に高い感度を有する検知器としては、同じく液体窒素温度で動作するインジウムアンチモン (InSb) 検出器がある。今回の測定では、フィルタ1から5の波数領域に対してはInSbを、フィルタ6の波数領域ではMCTを用いた。

## 2.2 太陽光吸収スペクトル観測による $\text{CO}$ 、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{O}_3$ の鉛直分布の測定

### 2.2.1 太陽光の赤外吸収スペクトル観測による大気微量分子の鉛直分布の測定

大気中の微量分子の多くは、その振動状態および回転状態の遷移に対応した、赤外領域にスペクトルを持つ。たとえば、水蒸気 ( $\text{H}_2\text{O}$ ) は振動回転遷移による $6.3\mu\text{m}$ にスペクトル帯を持ち、二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) は $15\mu\text{m}$ 付近、オゾン ( $\text{O}_3$ ) は $9.6\mu\text{m}$ 付近、メタン ( $\text{CH}_4$ ) は $7.6\mu\text{m}$ 付近等にスペクトル帯を持つ。したがって、赤外領域に

おいて分光観測を行うことで、多くの大気微量分子の計測を行うことが可能である (図5)。

大気微量成分の赤外分光観測において、太陽光を光源とした吸収スペクトル観測は、光強度が強いため、高い波数分解能のスペクトルを高いSN比で取得できる点で優れた手法である。さらに、高い波長分解能でスペクトルを取得することで、インバージョンによりスペクトルから大気微量分子の鉛直分布を求めることが可能である。インバージョンとは次のような方法である。スペクトルの線幅は圧力に比例するので、高高度にある分子のスペクトルは線幅が狭く、低高度の分子のスペクトルは広い線幅を持つ。地上から観測されるスペクトルは、これら各高度に対応した様々な線幅のスペクトルを重ね合わせたものとなる。そこで、大気的气温・圧力・密度の鉛直分布と微量分子の鉛直分布を初期値として与え、それから放射伝達方程式で計算したスペクトルと観測されたスペクトルが同じになるように、微量分子の鉛直分布を修正することにより現実の微量分子の鉛直分布を得る (図6)。

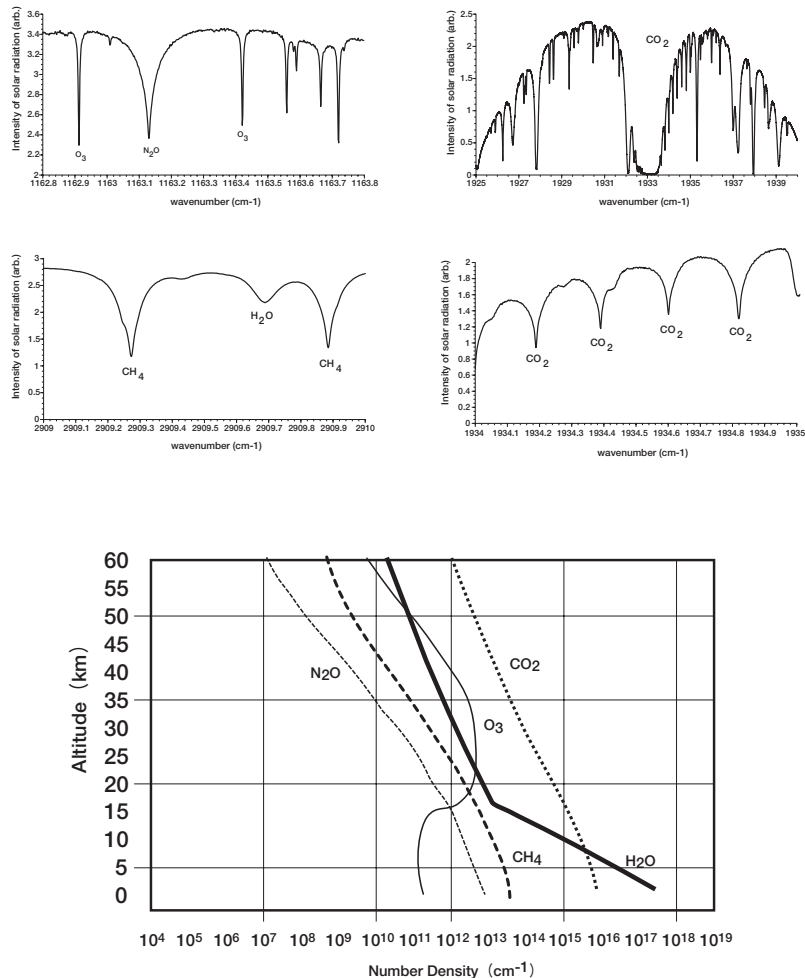


図5 太陽光を用いた観測で得られる吸収スペクトルの例 (上図) と1次元モデルによる微量成分の鉛直分布 (下図)



この手法により、赤外領域ではCOやC<sub>2</sub>H<sub>6</sub>、HCNなどの鉛直分布の観測が行われてきた（たとえば、Rinsland *et al.*<sup>5)</sup>）が、解析法等についてはなお多くの研究の余地があり、いまだに確立された観測手法とはなっていない。本研究では、太陽光を用いた吸収スペクトル観測を行い、得られたスペクトルからCO、N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>およびオゾンの鉛直分布の解析を行い、解析手法とその精度、高度ごとの感度、分解能等について評価を行った。

## 2.2.2 観測装置と観測方法

図7に装置のブロック図を示す。地球温暖化研究棟屋

上に設置されたドーム内にある太陽追尾装置により、太陽光を室内に取り入れ、FTIRへと太陽光を導く。観測に使用するFTIRはBruker IFS120HRで、最大波長分解能0.0015cm<sup>-1</sup>である。FTIRの検出器には1700cm<sup>-1</sup>以上の波数領域に対してはInSb、それより小さい波数領域ではMCT (Hg<sub>1-x</sub>Cd<sub>x</sub>Te) を用いる。いずれの検出器も液体窒素(77K)で冷却している。観測されたインターフェログラムおよび高速フーリエ変換(FFT)を行った後のスペクトルデータはパーソナルコンピュータに保存される。

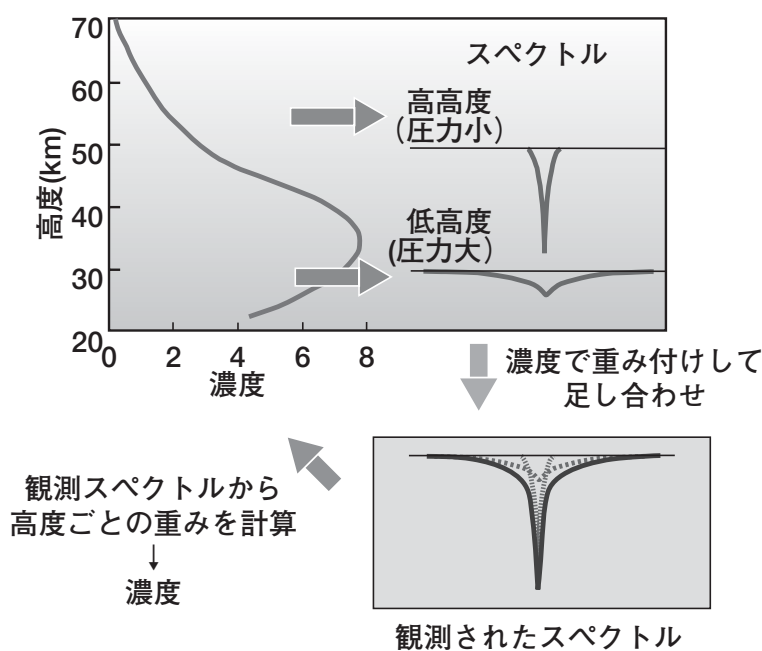


図6 インバージョンの原理

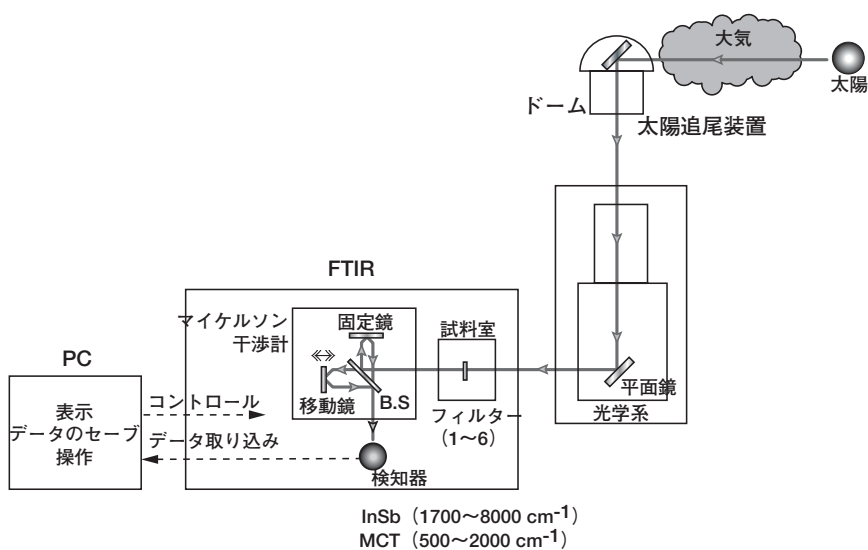


図7 装置のブロック図

### 2.2.3 解析方法

観測される吸収スペクトルは、さまざまな高度にある微量分子による吸収を重ね合わせたものである。吸収スペクトルの線幅は主に圧力幅によって決まるため、気圧の低い高高度の分子による吸収スペクトルは線幅が細く、低高度の分子による吸収スペクトルは線幅が広い。そこで、高度ごとの気圧を与えることで、観測スペクトルから高度ごとの微量分子の分布を逆計算することが可能である。

太陽光を地上で観測する場合、波数 $\lambda$ 、天頂角 $\varphi$ で観測される放射輝度 (Radiance)  $I(\lambda, \varphi)$  は次の放射伝達方程式で表される。

$$I(\lambda, \varphi) = I_0(\lambda) T_g(\lambda, \varphi), \quad (5)$$

ここで、 $I_0$ は大気上端における太陽放射、 $T_g$ は分子による吸収の光学的厚みである。エアロゾルによる吸収・散乱の影響は、近赤外域以外では無視できるほど小さい。一方、 $T_g$ については、

$$T_g(\lambda, \varphi) = \exp\left\{-\int_0^{H_0} B(h, \varphi) \sum_{j=1}^{N_g} K_j(\lambda, h) \rho_j(h) dh\right\} \quad (6)$$

と表すことができる。ここで、 $B$ は視線方向への光路長、 $H_0$ は大気の上端の高度、 $N_g$ は吸収に関与する分子の数、 $K_j$ はj番目の分子による吸収係数、 $\rho_j$ はj番目の分子の個数密度である。 $\rho_j$ は大気の個数密度 $\rho$ と分子の濃度 $x_j$ を用いて、

$$\rho_j = \rho x_j, \quad (7)$$

である。これらの式より、観測スペクトルの放射輝度  $I(\lambda, \varphi)$  と式 (5) の右辺に相当する計算によるスペクトルの放射輝度から、各高度における濃度を計算する。式 (6) と (7) をまとめることで、式 (5) は以下のような行列によって表すことができる。

$$I_i = \sum_{j=1}^{N_g} D_{ij} x_j, \quad (8)$$

ここで、 $I_i$ は波数 $i$ における観測された放射強度、 $D_{ij}$ は式 (5) と (6) を合わせた積分内の項であり、加重関数 (Weighting Function) と呼ばれるものである。式 (8) を $x_j$ について解く方法はインバージョンと呼ばれ、最小

二乗法や最適評価法 (ロジャース法) など様々な手法が提案されている。

本研究では、このような計算を行い、観測されたスペクトルからそれぞれの微量分子の鉛直分布を解析するために、赤外スペクトル解析ソフトウェアの SEASCRAPE (以降、SS) を用いる。SSは米国ジェット推進研究所 (JPL) で衛星搭載センサの赤外線スペクトルデータ解析用に開発されたソフトウェアで、気温や分子の鉛直分布を初期推定値として与えれば、放射伝達の計算および観測スペクトルデータからのインバージョンによる分子、気温および圧力の鉛直分布を計算することができる。このソフトウェアの特長は、フォワードモデルとしてline-by-lineで放射伝達計算を行うことにより、吸収と放射を同時に取り扱うことができること、インバージョンでは二乗平均情報フィルタ法 (Square-Root Information Filter法; 以降SRIF法) によるアルゴリズムを用いることにより安定して鉛直分布の解を得ることができることである。さらに鉛直方向に任意のグリッドで計算ができるので、地上観測によるデータの解析にも応用でき、解析対象に合わせた都合の良い鉛直グリッドを用いることが可能である。SSによって計算した天頂方向での赤外領域における大気微量成分の太陽光吸収スペクトルと放射スペクトルの例を図8に示す。

SSのインバージョンに用いているSRIF法は、カルマンフィルター法を用いたアルゴリズムで、概要は以下の通りである。いま、 $i$ 回目の反復により推定された濃度を $x_i$ 、観測スペクトルを $y_i$ としたとき、これらは線形カルマンフィルターにより、

$$x_i = M_i x_{i-1} + \xi_i, \quad (9)$$

$$y_i = D_i x_i + \varepsilon_i, \quad (10)$$

ここで、 $M_i$ は発展モデル関数、 $D_i$ は加重関数 (Weighting Function)、 $\xi_i$ は予測誤差、 $\varepsilon_i$ は測定誤差である。これらの式を用いて予測した  $i$  回目の $x$ を $x_{ai}$ 、そのときの誤差の共分散を $S_{ai}$ とすると、これらは、

$$x_{ai} = M_i x_{i-1}, \quad (11)$$

$$S_{ai} = M_i S_{i-1} M^T + S_{\xi_i}, \quad (12)$$

ここで、 $S_i$ は推定値 $x_i$ に対する誤差の共分散、 $S_{\xi_i}$ は予

測誤差の共分散である。この値を用いて最適評価法で濃度 $x_i$ を推定すると、

$$x_i = x_{ai} + G_i (y_i - D_i x_{ai}), \quad (13)$$

ただし、

$$G_i = S_{ai} D_i^T (G_i S_{ai} D_i^T + S_\varepsilon)^{-1}, \quad (14)$$

である。なお、 $S_\varepsilon$ は観測スペクトルの誤差の共分散である。このような予測と推定を繰り返すことにより、確からしい $x_i$ を求める。

SSを用いて解析を行う準備として、観測されたスペクトルの前処理を行う。まず観測されたデータから、分子ごとに解析に適した波数領域を選び、スペクトルを切り出す。ここで解析に適した波数領域とは、温度依存性が小さいスペクトルを含み、それが他の分子のスペクトルとの干渉が小さく、自身の吸収が大きくない波数領域である。本研究では、COの場合には、2111-2112  $\text{cm}^{-1}$  および2157.9-2158.9  $\text{cm}^{-1}$ の波数領域、 $\text{N}_2\text{O}$ およびオゾン

については1162.85-1164.45  $\text{cm}^{-1}$ 、 $\text{CH}_4$ については2673.9-2674.4  $\text{cm}^{-1}$ の波数領域のスペクトルを切り出して解析に用いた。次に、スペクトルのベースラインを求め、絶対値の較正を行う。観測されたスペクトルの強度は相対値であり、これを輝度強度に変換する必要がある。その方法は以下のとおりである。まず、気温と微量分子の初期推定値を使ってフォワードモデルによりスペクトルを計算する。それが吸収の小さい波数領域で観測スペクトルとできるだけ一致するように、観測スペクトルに補正関数をかける。補正関数として波数を変数とした3次関数を用い、最小二乗法により補正関数の係数を定める。観測スペクトルに補正関数をかけたものが、絶対値の較正された観測スペクトルとなる。

較正された観測スペクトルから、SSを用いて微量分子の鉛直分布解析を行った。上で示したように、インバージョンを行うには、スペクトルの波数領域に吸収をもつ微量分子の鉛直分布の初期推定値および大気の温度、気圧、密度の鉛直分布を与える必要がある。本研究では気温、気圧、密度の鉛直分布としてNCEP再解析(Reanalysis)データを用いた。また、 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{O}_3$ 、

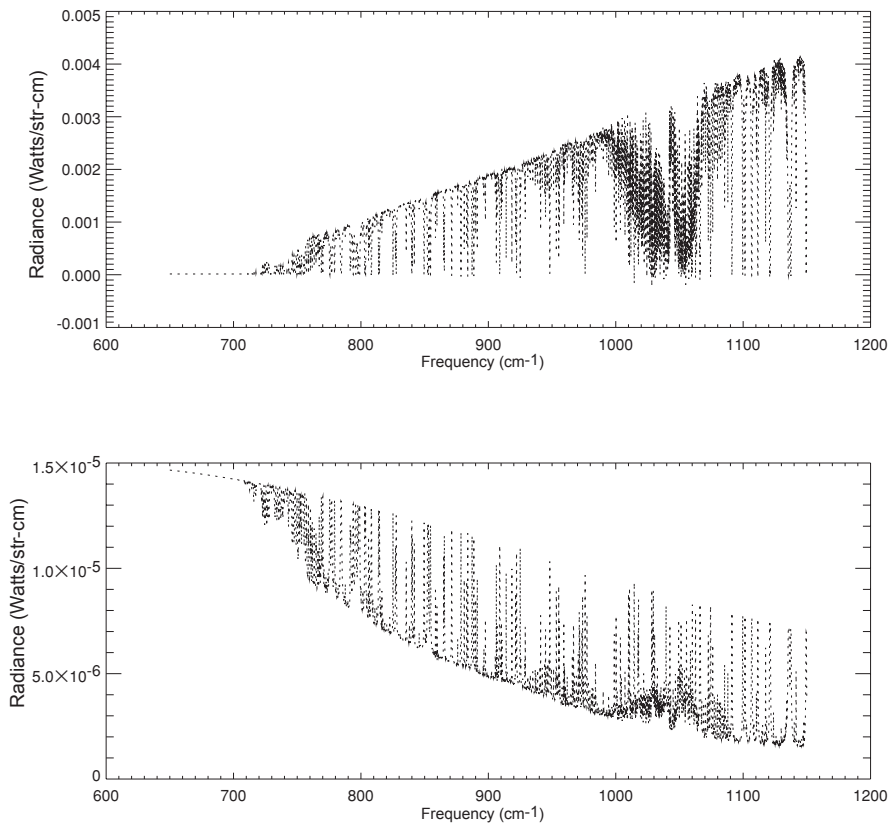


図8 SSで計算した天頂方向での大気微量成分の太陽光吸収スペクトル（上）と放射スペクトル（下）の例



CO, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>の鉛直分布を初期推定値として与えた。これらの鉛直分布はMIPAS大気モデル(2001)の中緯度昼間データを用いた。SSでは鉛直方向のグリッドを自由に設定することが可能で、本解析では高度1 kmから40 kmまで1 kmごとのグリッドを設定し、各高度での濃度を求めた。インバージョンを行う際に、求めた鉛直分布が鉛直方向で大きく振動する場合がある。これは、 $S_{\epsilon}$ や $S_{\xi_i}$ で決まる解の拘束条件が不適当なことによる。そこで、鉛直分布が振動しないように最適化を行った。最適化は各波数領域ごとに試行して行った。

解析で得られる鉛直分布は、ある高度分解能の範囲内での加重平均値である。そこで、各高度における高度分解能を求めた。高度分解能は次のような方法で評価した。まず、求める分子の鉛直分布の初期推定値に、特定の高度にだけ濃度を10倍与えてSSを使ったフォワードモデルでスペクトルを計算する。このスペクトルを観測データと見なして、SSを用いて鉛直分布を求める。このとき分子の初期推定値は通常のものを用いる。得られた鉛直分布と初期推定値の差分が、特定の高度における高度分解能である。この方法を各高度で繰り返すことにより、それぞれの高度における高度分解能を求めた。

#### 2.2.4 観測結果

観測は晴天時の昼間にのみ行い、2001年10月から2002年2月までに37日分のスペクトルデータを取得した。観測時間とSN比との兼ね合いから、主に波数分解能 $0.0035\text{cm}^{-1}$ でスペクトルデータを取得した。観測は、6つの光学フィルタを順番に交換してデータを取得し、

6つのスペクトルデータで1回の観測セットとした。一つのスペクトルデータあたりの観測時間は約20分であり、1データセットは約2時間で得られる。

観測したスペクトルから、CO, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, O<sub>3</sub>の鉛直分布を求めた。図9に観測されたCOを含むスペクトルとそれから求めたCOの鉛直分布を示す。スペクトルは2001年10月2日に観測されたものである。左上図は観測されたスペクトルと求めた鉛直分布からフォワードモデルにより計算されたスペクトルである。波数領域全体にかけて大きな吸収があるスペクトルがCOで、中心付近では吸収により強度が0にまで落ちている。COによる吸収の周りには、線幅の小さい吸収スペクトルはO<sub>3</sub>とCO<sub>2</sub>によるものである。左下図は、観測および計算スペクトルの残差である。O<sub>3</sub>による吸収がある領域を除き、残差には顕著な系統誤差は見られない。このことは、リトリバルが正しく行われていることを表している。COスペクトルの中心付近では吸収が飽和していることから、細い線幅の成分のみを持つ高高度にあるCOについての情報は失われていること、すなわち低高度のCOの分布のみを選択的に観測していることが予想される。右図にSSで求めたCOの鉛直分布と初期推定値を示す。高度6 km以下の対流圏下部において、観測値が初期推定値から離れていることが分かる。

図10に高度2 kmおよび8 kmにおけるアベレージングカーネルを示す。アベレージングカーネルとは、ある高度に対する他の高度からの情報の寄与の割合を表したものである。高度分解能に等しい。図から、いずれの高度においても高度2 km付近に最も高い感度があり、高度5 km

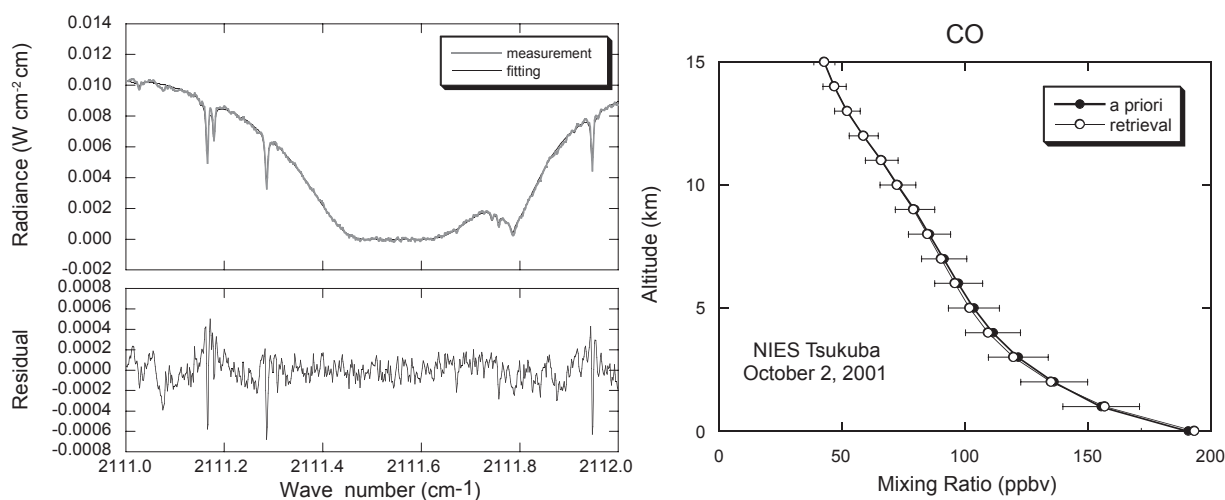


図9 観測されたCOスペクトルとそれから求めた鉛直分布

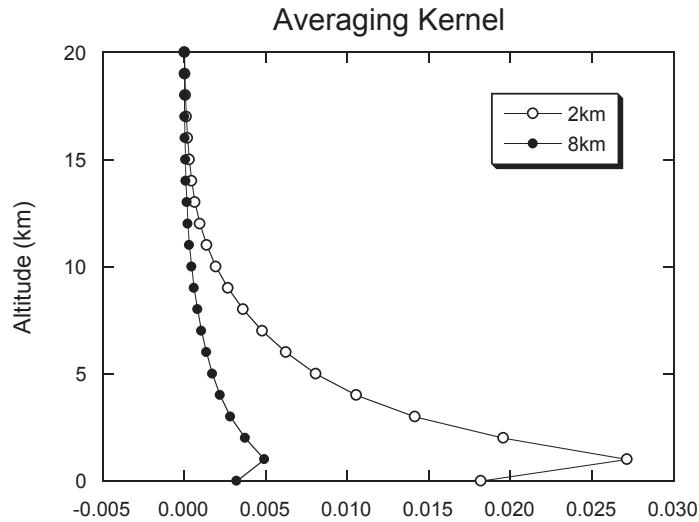


図10 高度2 kmおよび8 kmにおけるアベレージングカーネル

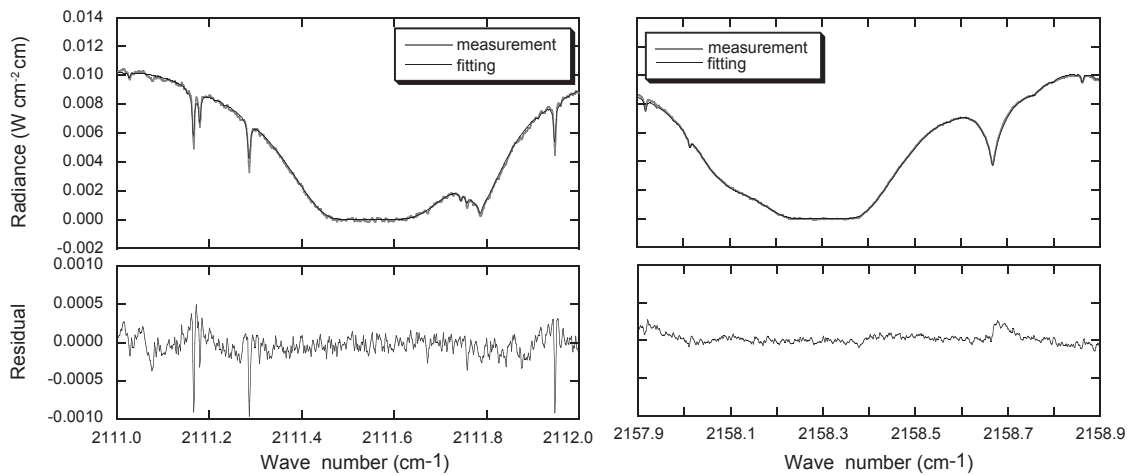


図11 2つのCOスペクトル同時解析の例  
観測スペクトルは図9と同じものである。

以上ではほとんど感度が無いことが分かる。このことは、対流圏下部のCOのみを選択的に観測していることを示している。このような状況は、複数の深い吸収を持つCOスペクトルを用いた場合でも変わらない。図11に2つのCOスペクトルを同時に解析した例を示す。また、この2つのスペクトルを使った場合のアベレージングカーネルを図12に示す。1つのスペクトルを用いた場合に比べても、アベレージングカーネルには大きな変化が見られない。また、対流圏上部に対しては、いずれの場合も感度がほとんどないことが分かる。したがって、吸収の大きいスペクトルの解析では、基本的には対流圏下部の分布のみを選択的に観測することが分かった。

図13に高度2 kmにおけるCOの濃度の時間変動を示す。観測された高度2 kmでのCO濃度は135ppmvから

190ppmvである。これは大気が清浄な場所である北海道陸別町で1995年11月に測定された高度0～3 kmにおけるCO濃度の平均値140ppmv (Zhao *et al.*<sup>6)</sup>)に近い値である。しかし、陸別町におけるCO濃度は、はっきりとした季節変動を示すのに対して、つくばでの観測値は大きく分散して、季節変動の傾向は見えない。これは、つくば近郊の都市部で発生したCOの輸送の影響が強く表れているものと考えられる。

次に、観測されたN<sub>2</sub>Oのスペクトルとリトリーバルによって求めた鉛直分布を図14に示す。スペクトルデータは2001年10月23日に取得されたものである。左上図のスペクトルで、中心付近の吸収がN<sub>2</sub>Oスペクトルで両端はO<sub>3</sub>スペクトルである。N<sub>2</sub>OスペクトルはO<sub>3</sub>スペクトルと比べて線幅が広いことが分かる。これは、O<sub>3</sub>が主に成

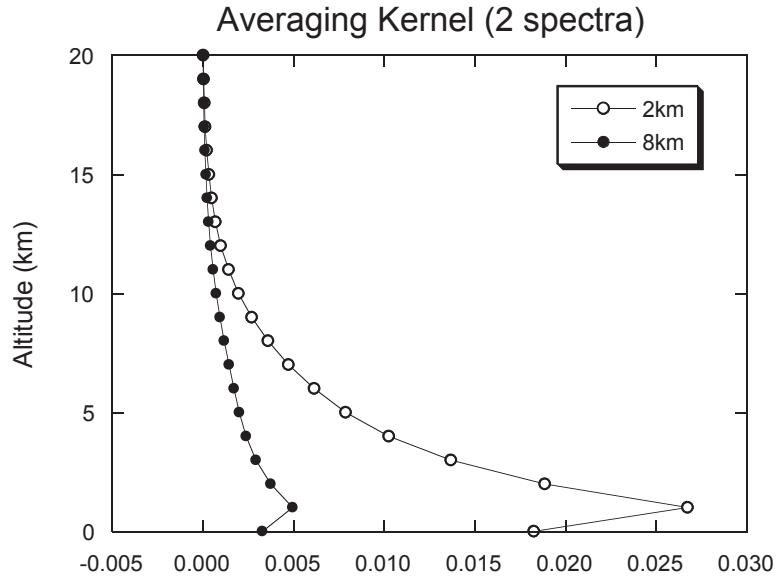


図12 2つのCOスペクトルを使って解析した場合のアベレージングカーネル

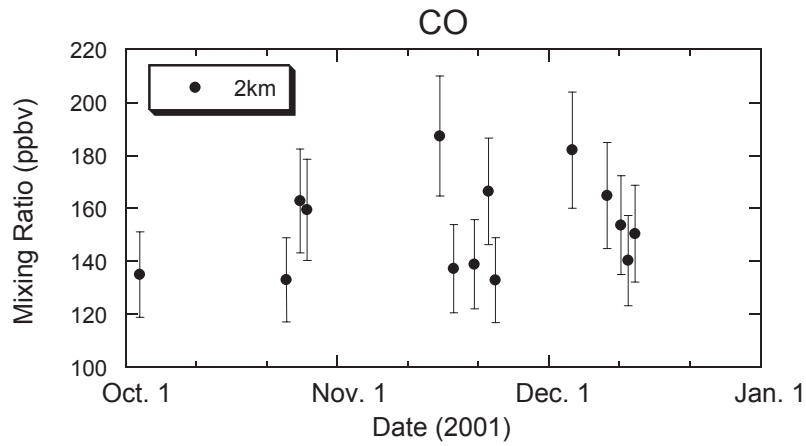


図13 高度2kmにおけるCO濃度の時間変化

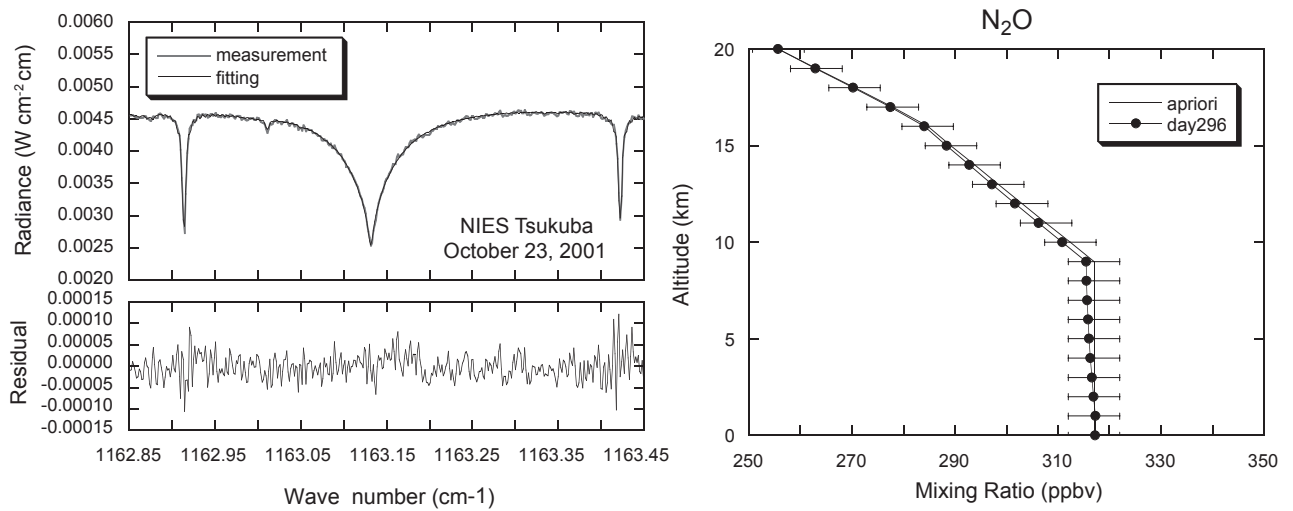


図14 観測されたN<sub>2</sub>Oとオゾンのスペクトルおよびそれから求めたN<sub>2</sub>O鉛直分布の例

層圏に分布しているのに対して、 $N_2O$ が対流圏に主に分布していることを反映したものである。今回の解析では、 $N_2O$ と $O_3$ を同時に解析し、両者の鉛直分布を求めた。観測から得られた $N_2O$ の鉛直分布は、基本的には初期推定値から大きく離れていない。図15に観測されたすべてのデータによる $N_2O$ の鉛直分布の結果を示す。高度2kmにおいては、観測値は、315ppbvから325ppbvの間に分散している。 $N_2O$ 濃度には関しては、大きな季節変動は無いことが知られている。 $N_2O$ のバックグラウンド濃度として、観測された時点での沖縄県波照間島における $N_2O$ の観測値を参照すると316ppbv程度であり、今回の観測値はつくばが都市域であることを考慮すると妥当なものと考えられる。

$N_2O$ と同時に求めたオゾンの鉛直分布を図16に示す。図には、同じ敷地内に設置されたオゾンレーザーレーダーによる同日夜間に観測された $O_3$ 鉛直分布も示してある。両者の結果を比較すると、高度20~30kmにおいて7%以内で一致していることが分かる。このことは、FTIRによるスペクトルからリトリーブが正しく行われていることを表している。 $O_3$ のような成層圏に主に分布する微量分子のスペクトルは線幅が狭いので、装置の線形関数 (Instrumental Line Shape function; ILS) の影響を受けやすい。そのため、ILSを $N_2O$ やHBr等の低圧ガスセルの測定から求めて補正する必要があることが分かった (村田ら<sup>7)</sup>)。

図17に観測された $CH_4$ スペクトルとそれから得られた鉛直分布を示す。左上図に見られるように、 $CH_4$ のスペクトルは他の分子の干渉をほとんど受けていないことが分かる。観測スペクトルと計算されたスペクトルの残差から、吸収の大きさに対して1%程度の系統誤差が見られる。スペクトルの中心付近の誤差は、リトリーブによる高度分解能が高高度で粗く、感度がないことが原因である。中心以外における系統残差はスペクトルのベースライン決定時の誤差によるものと考えられる。右図に示した鉛直分布によると、 $CH_4$ の場合においても高度15km以下の主に対流圏において、観測値が初期推定値から大きく離れている。このことから、このスペクトルには、主に対流圏の $CH_4$ 濃度の情報が含まれていることが分かる。高度2kmにおける $CH_4$ 濃度は1.78ppmvで、これは沖縄県波照間島での観測値の1.87ppmvより5%程度小さい。これは、観測している高度の違いと高度分解能の影響の組み合わせによるものと考えられる。 $CH_4$ の濃度は上空に行くにしたがって減少することが知られている。本観測の代表高度は2kmであり、地表付近で測定した波照間島での観測値よりは小さくなることは合理的である。また、本観測では高度分解能が3km程度なので、濃度の低い部分との平均値で見ると、その場の高度の値より低くなることが考えられる。このような影響の組み合わせにより、本観測値が地上観測値より低くなったものと考えられる。

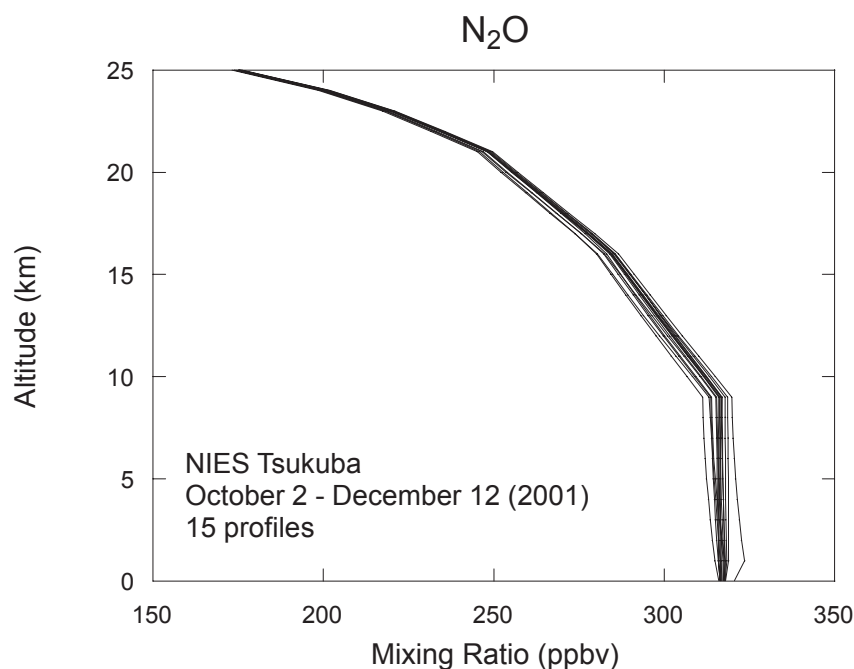


図15 観測されたすべてのスペクトルより求めた $N_2O$ の鉛直分布

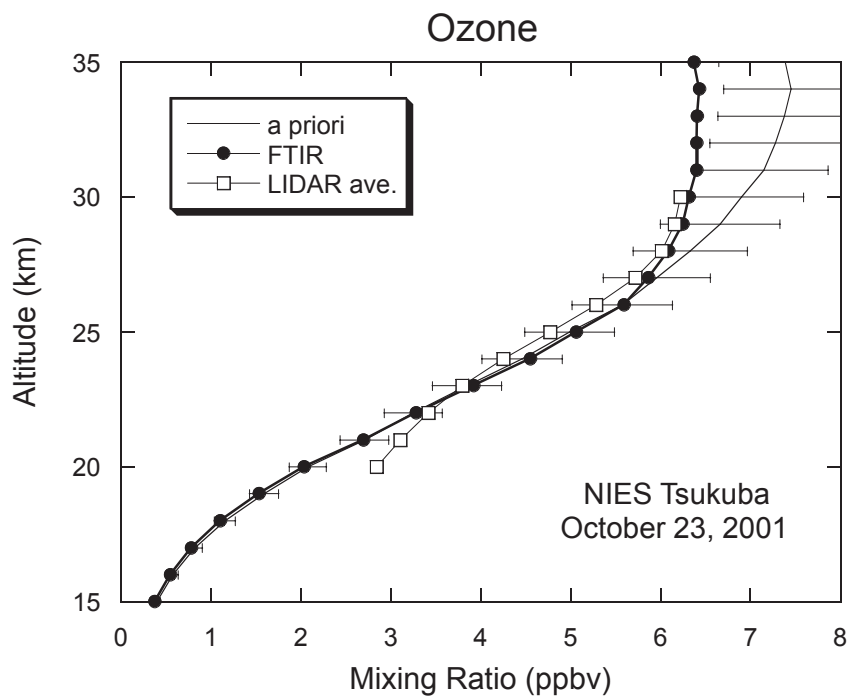


図16 解析から得られたオゾンの鉛直分布  
同日のオゾンレーザーレーダーによる観測値も合わせて示した。

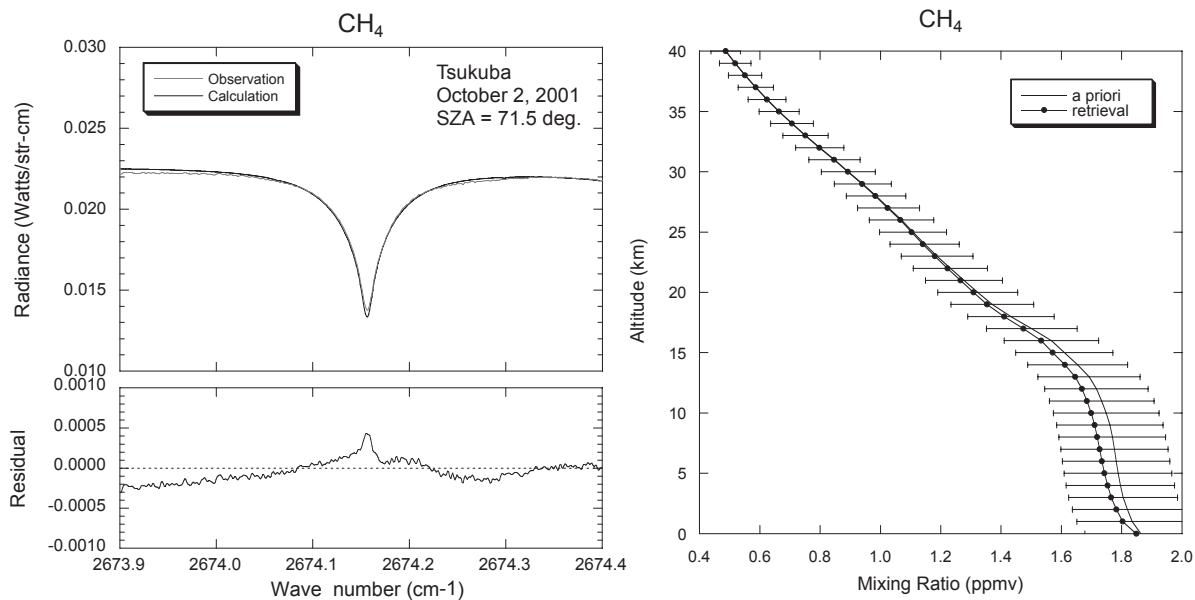


図17 観測されたCH<sub>4</sub>スペクトルとそれから得られたCH<sub>4</sub>の鉛直分布

### 2.2.5 他の解析法との比較

本研究では、観測されたスペクトルから微量分子の鉛直分布を求めるのにSSを用いた。同様の解析ソフトは他にもいくつかあり、中でもSFIT2は地上FTIR観測データの解析にこれまで広く用いられている。SFIT2はフォワードモデル計算にfascode3、リトリーバルに線形最適法（ロジャース法）を用いたもので、太陽光吸収スペクトルから鉛直分布を求めるソフトである。SSとSFIT2の特徴を表3にまとめる。

表3 SEASCRAPE (SS) とSFIT2の比較

	SS	SFIT2
放射伝達方程式	放射・吸収	吸収
リトリーバル法	情報フィルタ法	ロジャース法
配布形態	有料	無料
解析の信頼度	未知数	検証実験あり

SSとSFIT2の大きな違いの一つは、SSが放射スペクトルを取り扱うことができるのに対してSFIT2は吸収スペクトルのみを取り扱う点である。太陽光を光源とした吸収スペクトルの観測の場合には、放射の影響は問題とならないが、人工光源を使った長光路吸収観測等の場合には、光量が弱いため放射を考慮する必要がある。このよ

うな場合でもSSは太陽光の場合と同様に取り扱うことができる。

SSのSFIT2に対する弱点の一つは、解析の信頼度についての研究がほとんど行われていないことである。SFIT2によって解析されたデータについては、限定的ながら検証実験が行われ、解析結果の検証が行われている。これに対してSSによる解析はこれまでほとんど行われていないため、解析の信頼度は未知数である。そのため、他のデータとの相互検証を行うことで解析の信頼度を確認することが不可欠である。

そこで本研究では、観測されたスペクトルをSSとSFIT2で解析し、両者で求めた鉛直分布の比較を行った。用いたスペクトルは、名古屋大学太陽地球環境研究所陸別総合観測室のFTIRで2000年3月29日に取得された、波数領域2157.4~2159.2 $\text{cm}^{-1}$ のCOの吸収スペクトルである（村田ら<sup>7)</sup>）。図18にスペクトルを示す。図で2157.8 $\text{cm}^{-1}$ と2159.0 $\text{cm}^{-1}$ 付近の観測とSSによるフォワードモデル計算によるスペクトルとの大きな差は、太陽のCOスペクトルによるものである。図19にそれから求めた鉛直分布を示す。両者による鉛直分布は基本的によく一致している。いずれの場合でもリトリーバルによる鉛直分布は、高度が低いほど初期推定値から大きくずれ、観測データが反映されていることが分かる。最も低い高

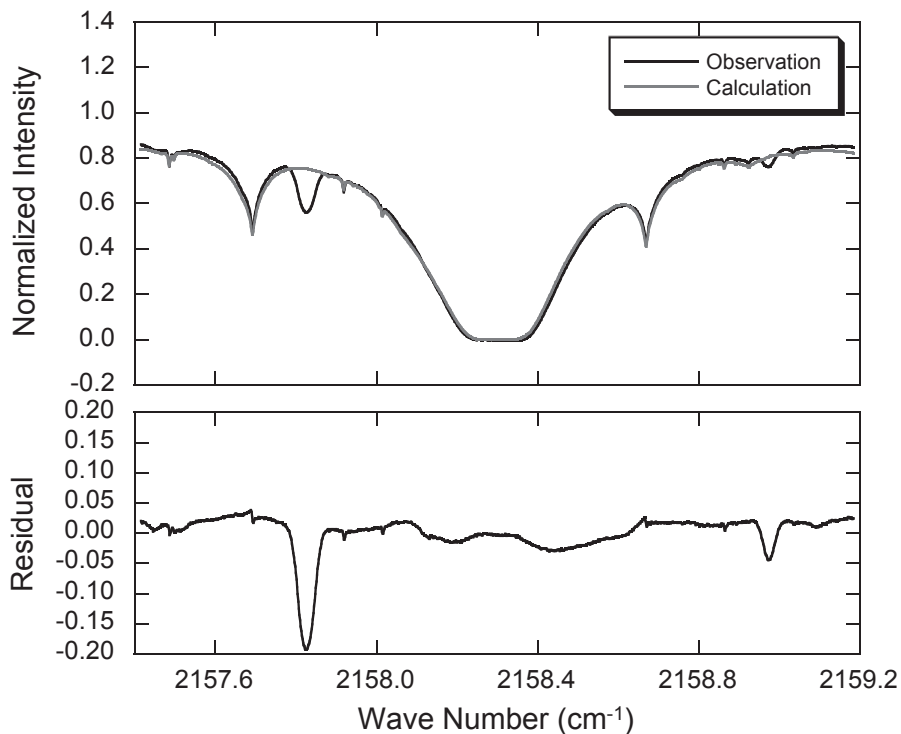


図18 観測されたCOスペクトルとSSによるフォワードモデル計算によるスペクトル（上）および2つの残差（下）



度 (1.15 km) 以外では、両者の違いは5%以内であり、高度1.15kmでは両者の差が15%程度に広がる。最も低い高度の値はスペクトルのベースラインの取り方に強く依存する。SFIT2では2次曲線によりベースラインを近似しているが、SSを使った解析では3次曲線を使っている。この違いが最も低い高度の結果となったと考えられる。

### 2.3 地上FTIRを用いた太陽光吸収スペクトル観測によるCO<sub>2</sub>の鉛直分布およびカラム平均濃度の解析

#### 2.3.1 研究の背景

大気中のCO<sub>2</sub>は地球温暖化に最も大きな役割を果たしており、その濃度は年々増加していることが知られている。近年、米国、欧州および日本においてCO<sub>2</sub>のカラム濃度を衛星から観測する提案がなされており、これらの観測データの検証を行う手法として、太陽光源を用いた地上FTIR観測によるCO<sub>2</sub>カラム濃度の測定が期待されている。

前節で示したように、地上FTIRによる太陽光赤外吸収スペクトル観測では、様々な大気微量分子の吸収スペクトルを観測することができ、また波数分解能が非常に高いため、それらのスペクトルからインバージョンによ

り鉛直分布を求めることが可能である。ここでは、観測されたCO<sub>2</sub>スペクトルから鉛直分布およびカラム平均濃度の解析について、精度等の評価を行う。

#### 2.3.2 解析と観測結果

観測されたCO<sub>2</sub>スペクトルのうち、1.6 μm帯の波数6300-6347cm<sup>-1</sup>の吸収バンドのスペクトルを用いて解析を行った。波数分解能は0.05cm<sup>-1</sup>である。観測されたスペクトルを図20に示す。観測されたスペクトルにはCO<sub>2</sub>による吸収だけでなく、太陽表面の気体による吸収スペクトルが同時に観測されるため、太陽による吸収スペクトルのデータベース (Livingston and Wallace<sup>8)</sup>) を用いて、これらの太陽による吸収スペクトルの影響を補正した。波数λ, 天頂角φで観測されるスペクトルの放射輝度 (Radiance)  $I(\lambda, \varphi)$  は、

$$I(\lambda, \varphi) = I_0(\lambda) T_{sun}(\lambda) T_g(\lambda, \varphi) T_c(\lambda, \varphi), \quad (15)$$

と表せる。ここで、 $I_0$ は太陽による黒体放射、 $T_{sun}(\lambda)$ は太陽表面のガスの光学的厚み、 $T_g(\lambda, \varphi)$ はCO<sub>2</sub>の光学的厚み、 $T_c(\lambda, \varphi)$ は水蒸気やエアロゾル等の連続吸収の光学的厚みである。観測されたスペクトルを $T_{sun}$ で

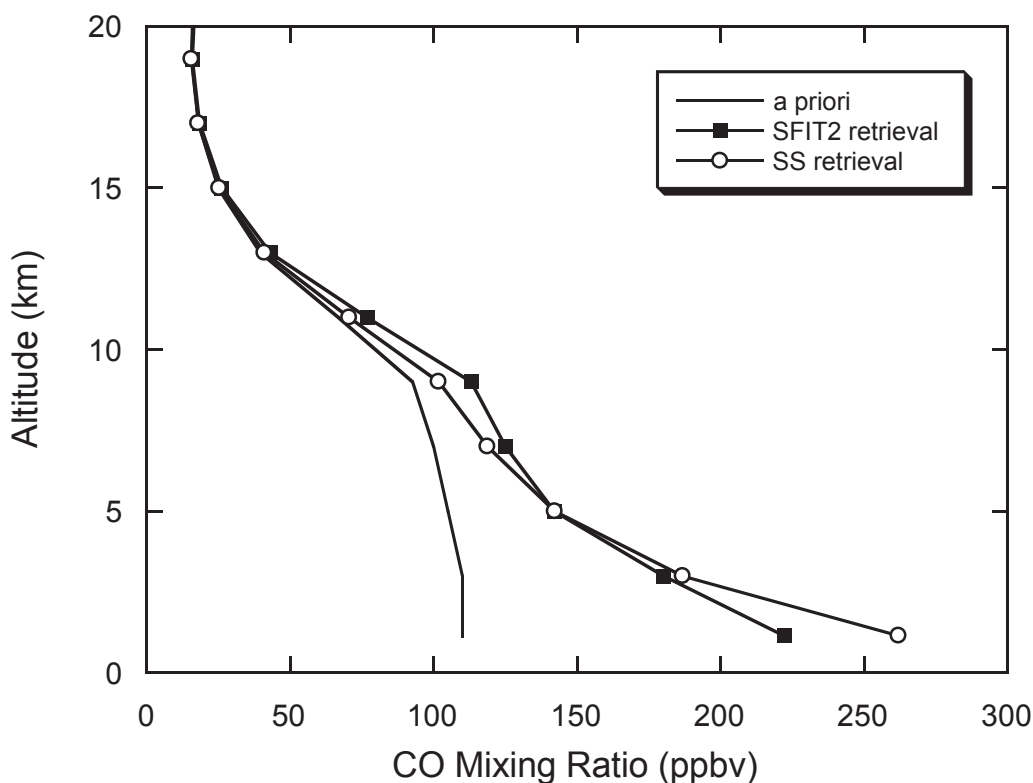


図19 SSおよびSFIT2で求めたCO鉛直分布

割ることにより、この影響を補正した。その後、観測されたスペクトルのベースラインと絶対値を求めた。このような処理を行った後のスペクトルを図21に示す。図には求めた鉛直分布からフォワードモデルで計算したスペクトルとその残差も合わせて示している。領域のほとんどで残差が小さく、系統的な差が見られないことから、リトリバルが精度良く行われていると考えられる。

CO<sub>2</sub>の鉛直分布のリトリバルは、SSを用いて行った。気温の分布はNCEP再解析データを用い、CO<sub>2</sub>以外の微量分子についてはMIPAS大気モデル(2001)の中緯度昼間データを用いた。CO<sub>2</sub>については、初期推定値として360ppmv、冬季の気候値、冬季の気候値から-3ppmv、-7ppmvシフトしたものの4つの場合について解析を行った。分子パラメータはHITRAN96データ

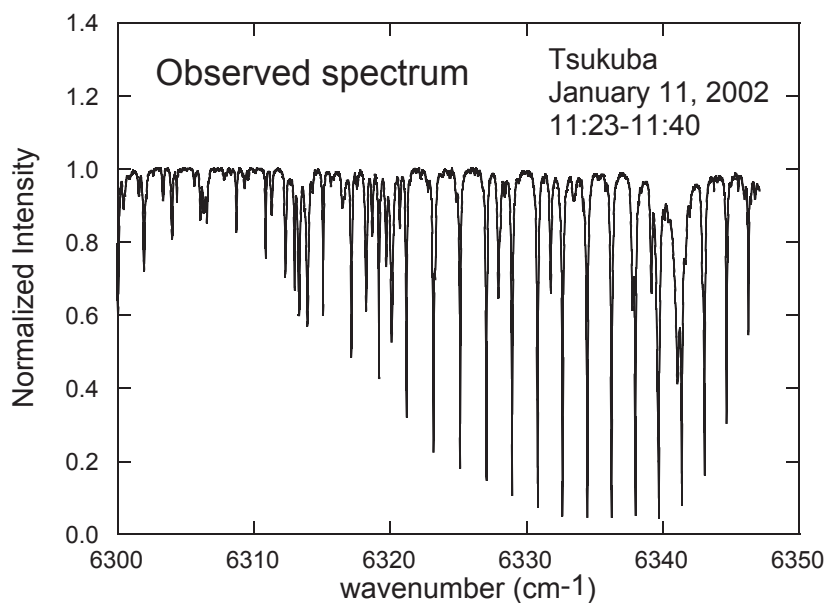


図20 観測された波数6300-6347 cm<sup>-1</sup>のCO<sub>2</sub>スペクトル

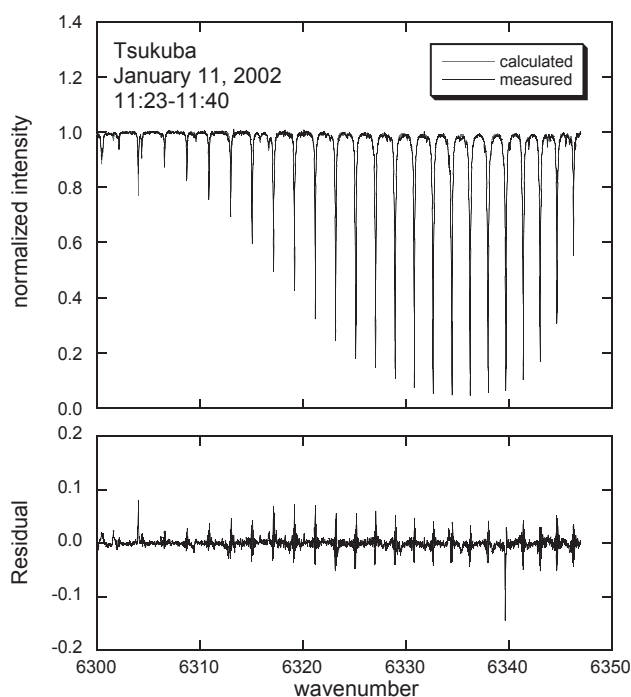


図21 補正等の処理後のCO<sub>2</sub>スペクトル(上)  
求めた鉛直分布からフォワードモデルで計算したスペクトル(上)とその残差(下)も合わせて示す。



ベースの値を用いた。図22に初期推定値360ppmvで求めたCO<sub>2</sub>の鉛直分布を示す。観測されたCO<sub>2</sub>の鉛直分布は、高度25km以下で初期推定値から離れていることが分かる。このことは、25km以下の高度領域、特に大気低層に観測感度があることを示している。得られた鉛直分布の形は気候値の分布に近いが、全体的に低濃度側にシフトしている。

### 2.3.3 考察

リトリーバルを行う場合、解析結果の初期推定値への依存度は大きな問題である。初期推定値への依存度は高度によって異なるので、ここでは3つの異なる場合について比較し、その影響を調べた。3つの異なる初期推定値によるリトリーバル結果を図23に示す。初期推定値が変わると得られる鉛直分布も異なることが分かる。特に高度の高い領域では、初期推定値からのずれが小さく、3つの場合で値が異なっている。一方、大気低層の高度1kmにおいては、いずれの場合でも371.5ppmv程度でほぼ一定である。これらのことは、境界層付近の大気低層に対しては初期推定値の影響をあまり受けずに観測ができていて、高度の高い領域、特に成層圏、では初期

推定値の影響を強く受けることを示している。しかし、成層圏や自由対流圏におけるCO<sub>2</sub>濃度は比較的良好な精度の気候値が存在し、その時間変動も小さいため、その値を初期推定値とすることで影響を小さくすることができる。また、カラム平均濃度を求める場合には、密度で加重平均するため、境界層付近の濃度変動の影響が最も大きく、それより上層の濃度変動の影響は小さい。したがって、低層での濃度変動を正しくとらえる必要があるが、今回の結果はそれが可能であることを示しており、境界層付近での濃度変動を正しくとらえている。また、初期推定値を2%変更してもカラム平均濃度の変化は1%以下であり、これを高い精度で観測することができることを示している。

## 2.4 高分解能FTIRを用いた長光路吸収法による大気微量成分の計測手法の研究

### 2.4.1 長光路吸収法による計測システム

人工光源を用いた長光路吸収スペクトルの観測による大気微量成分の濃度の測定技術の開発と測定精度等の評価を行った。以下に、使用したFTIR等の計測システムの構成について説明する。

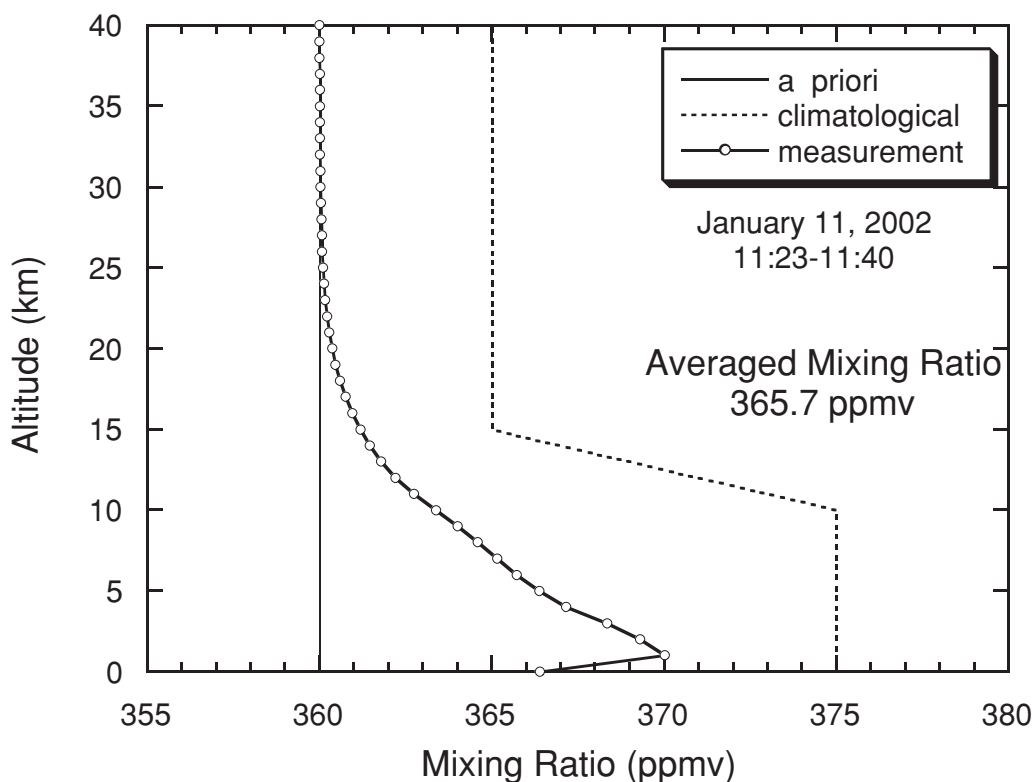


図22 観測されたCO<sub>2</sub>の鉛直分布

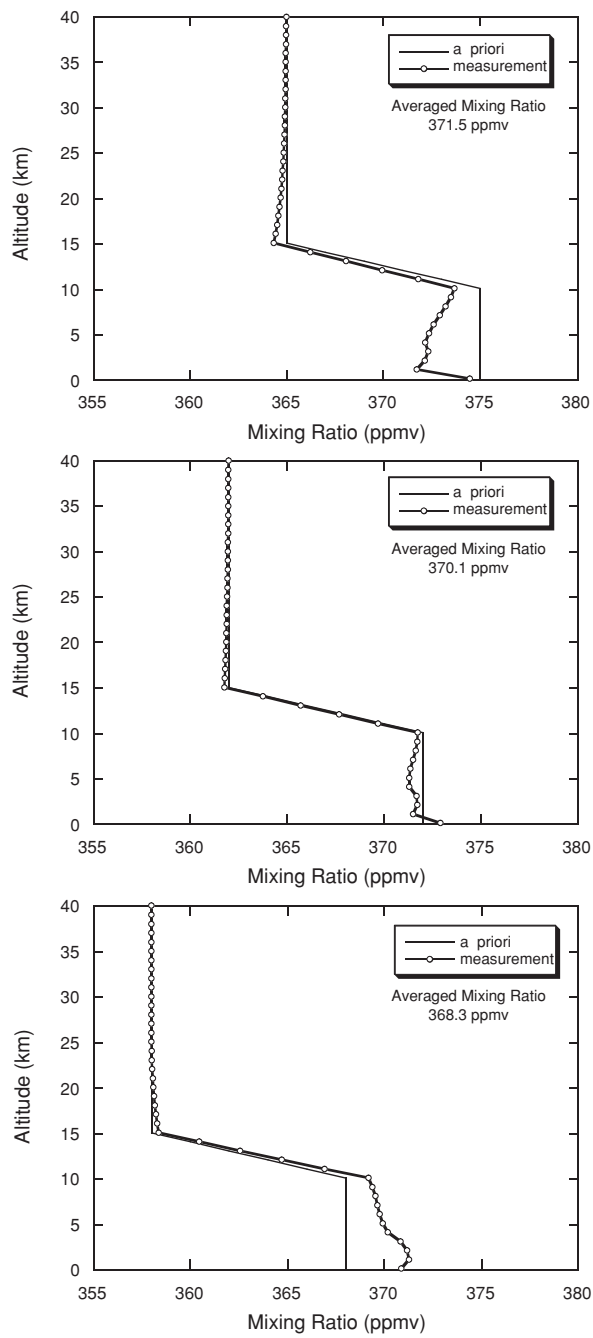


図23 CO<sub>2</sub>の鉛直分布の初期値を-3, -7ppmvシフトした場合の鉛直分布の変化  
 高度1 kmでは, 371.5ppmvでほぼ一定であり, カラム平均濃度の変化も3.2ppmv以下である。

人工光源としては、炭化ケイ素（SiC）を棒状に焼結したグローバー灯光源を用いた。グローバー灯光源は、およそ $100\sim 9000\text{cm}^{-1}$ の波数領域でほぼ黒体放射に近いスペクトル分布をもっており、この波数領域では光源として適当である。光学フィルタには、太陽光吸収スペクトル観測で用いた6つのNDSCフィルタを使用した。FTIRは地球温暖化研究棟に設置されたBruker社のIFS120HRを使用し、観測は波長分解能 $0.1\text{cm}^{-1}$ で行った。

図24に測定に用いた光路の全体図を示す。光源は研究本館I棟屋上または動物棟ベランダに設置し、光源から発せられた光は測定対象空気を通して水平にドームへ向かう。光源からFTIRまでの距離はそれぞれの場合で260mと409mである。光学系のアライメントがスペクト

ルの形に悪影響を与えていないことは、ハロゲン灯を光源としたHBrセルの測定によって確認を行った。HBrセルには低圧でHBrが封入されており、そのスペクトルの線幅は、波数分解能 $0.1\text{cm}^{-1}$ に対して十分小さいので、スペクトルの形から光学系のアライメントを確認することができる。

#### 2.4.2 観測

光路長260mによる観測は2002年12月20日の21時から27時（翌日3時）にかけて行った。また、光路長409mによる観測は2003年3月14日16時から19時にかけて行った。このときの観測条件を表4にまとめる。

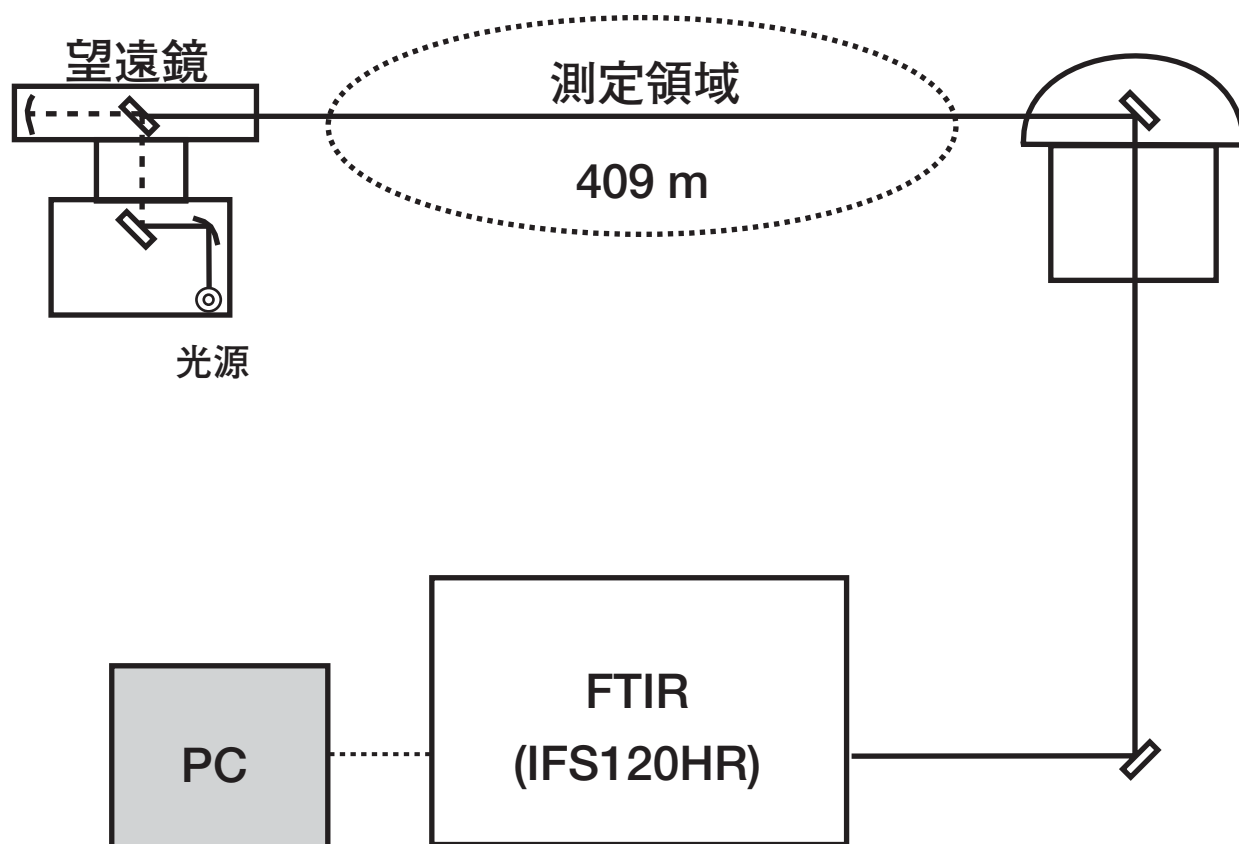


図24 光路測定全体の図（光路長409mの場合）

表4 観測諸元

観測日:	2002年12月20日	2003年3月14日
気象条件		
・天候:	晴れ	晴れ
・気圧:	1026hPa	1022hPa
・気温:	4.5°C	8-10°C

機器設定 (長光路光学系)		
・光路長:	260m	409m
・光源:	グローバー灯	同左 1300 W

機器設定 (FTIR)		
・分解能:	0.1cm <sup>-1</sup>	同左
・アパーチャー: 直径	6.3mm	1.0mm
・ビームスプ: リッター	KBr	同左
・フィルタ:	#1~#6	無し
・検知器:	InSb (フィルタ#1-5) <hr/> MCT (フィルタ#6)	InSb
・スキャン回数:	150回	1000回
・ゼロフィリング:	8	4

### 2.4.3 解析方法

観測したスペクトルデータから濃度を解析するのに、太陽光吸収スペクトル観測と同様に、赤外スペクトル解析ソフトSSを使用した。SSは視線方向や鉛直方向のグリッドを自由に設定できるため、FTIRによる長光路吸収スペクトル観測によって得られた赤外吸収・放射スペクトルから大気微量成分の濃度や気温を算出することも可能である。

#### (1) 解析の準備

各分子による吸収がどの波数領域にあるかを理解し、解析に用いる波数領域を選ぶために、500~3500cm<sup>-1</sup>の波数範囲で、観測時と同じ気象条件および機器の設定条件でSSによる大気吸収シミュレーションを行った。計算を行った分子は、H<sub>2</sub>O, CO, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>Cl, HCl, NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>S, NO, NO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, HNO<sub>3</sub>,

OCS, HOCl, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, HCN, COF<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, SF<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>Oである。シミュレーションの結果、有意な吸収が見られたのはH<sub>2</sub>O, CO, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>であった。そこで、これらの5つの分子について観測スペクトルから濃度解析を行った。図25および図26に、波数2050~2220 cm<sup>-1</sup>におけるCOスペクトルのシミュレーションおよびこの波数領域での観測スペクトルを示す。図26から、実際の観測ではCOだけでなくその他の吸収スペクトルとの重なりを考慮し、解析に用いる波数領域を選択する必要があることが分かる。

#### (2) ベースライン決定

解析にあたっては、まず、観測したスペクトルのベースラインの決定を行った。

最初に、フォワードモデル計算によるスペクトルのシミュレーションを行った。図27に観測されたスペクトル、図28にシミュレーションの結果の例を示す。シミュレーションでは、高度0~1 kmの様な大気層を仮定し、微量成分の初期推定値としてMIPAS大気モデル(2001)の中緯度データの地表での値を用いた。

次に、シミュレーションスペクトルを用いて観測スペクトルのベースライン合わせを行った。図27と図28を比較すると、縦軸が大きく異なっている。また、観測スペクトルのベースラインは、フィルタの透過率や光源の強度曲線の影響を受け、シミュレーションのような直線ではない。そこで、これらの影響を補正する必要がある。これを行うために、鉛直分布観測の時と同様に、観測スペクトルで比較的吸収の小さい部分において、スペクトルのベースラインを3次関数でフィッティングして補正を行った。図29に例を示す。図の四角で囲った部分を使って、ベースライン決めを行った。

#### (3) リトリバー

ベースラインを決定した観測スペクトルを使って、SSでリトリバー計算を行い、濃度を求めた。その際、一度求めた解を再び初期推定値として与えて反復計算を行うことで解の最適化を行った。

### 2.4.4 観測結果

観測されたスペクトルからCO<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>Oについて濃度を求めた。解析に用いたスペクトルは、光路長260mの場合については、フィルタ4によるもの、

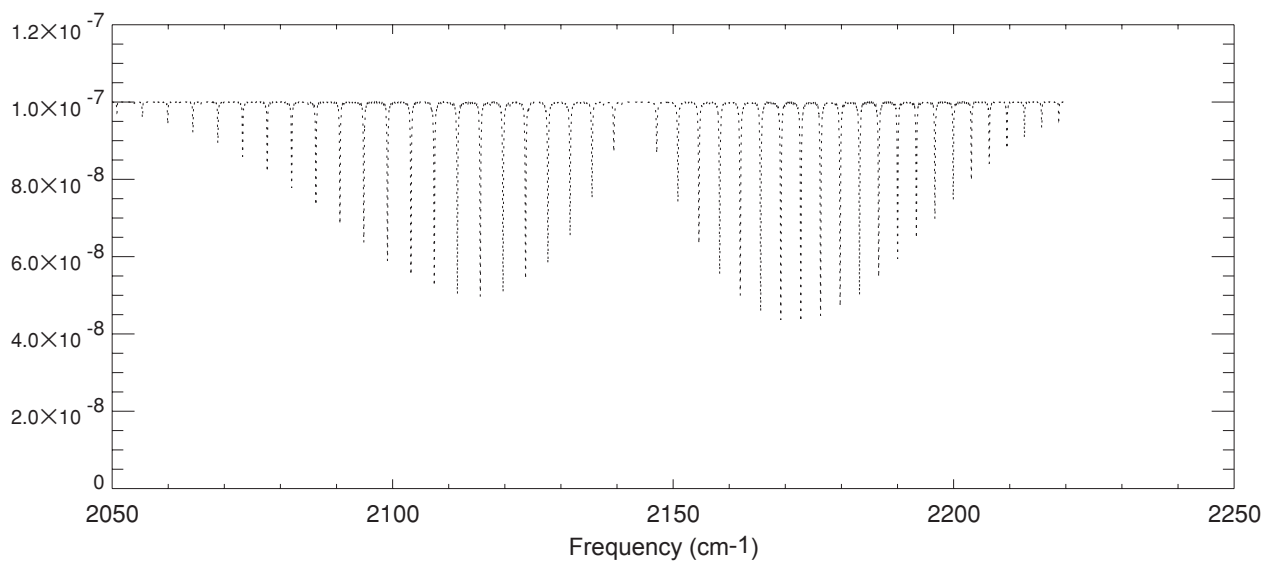


図25 SSによる波数2050～2220  $\text{cm}^{-1}$ のCOのシミュレーションスペクトル

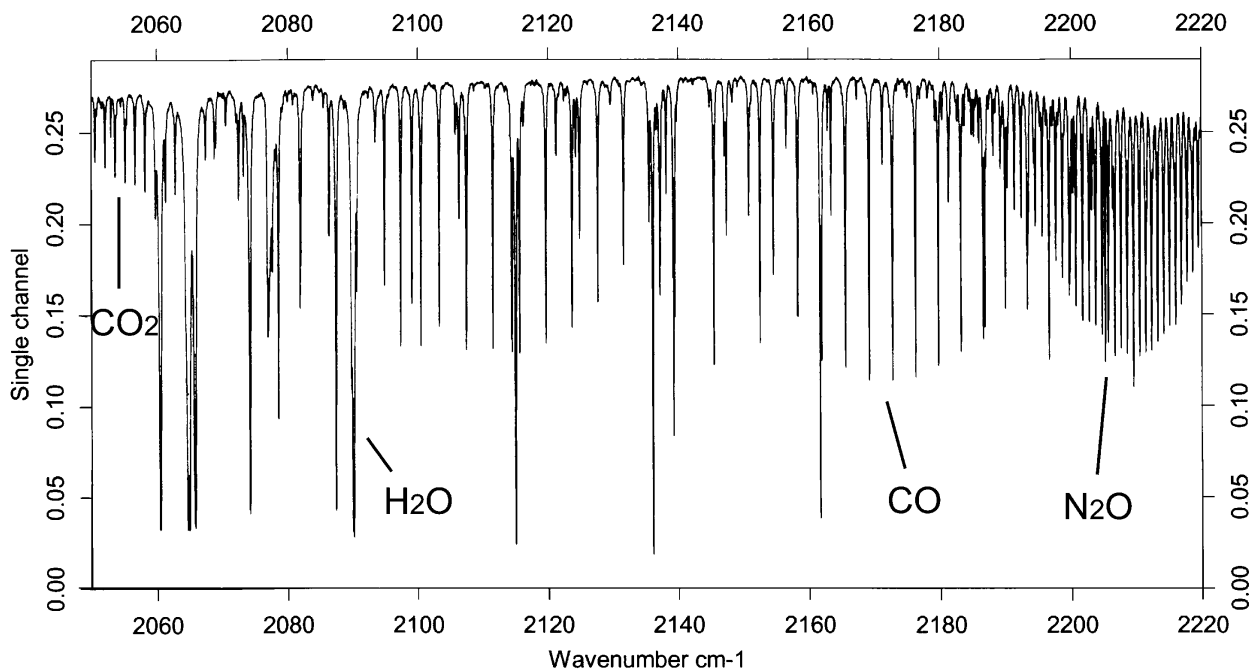


図26 波数2050～2220  $\text{cm}^{-1}$ の観測スペクトル  
この波数領域にはCOの他に、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ 、COの吸収スペクトルも見られる。

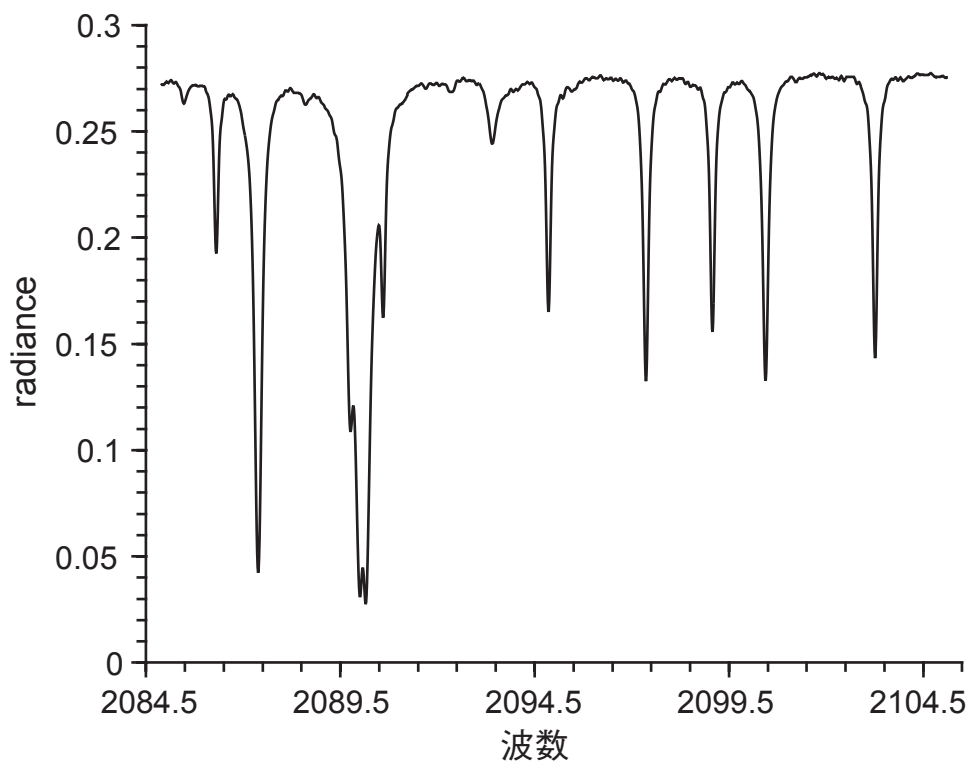


図27 切り出した2084.88～2105.13 cm<sup>-1</sup>の観測スペクトル

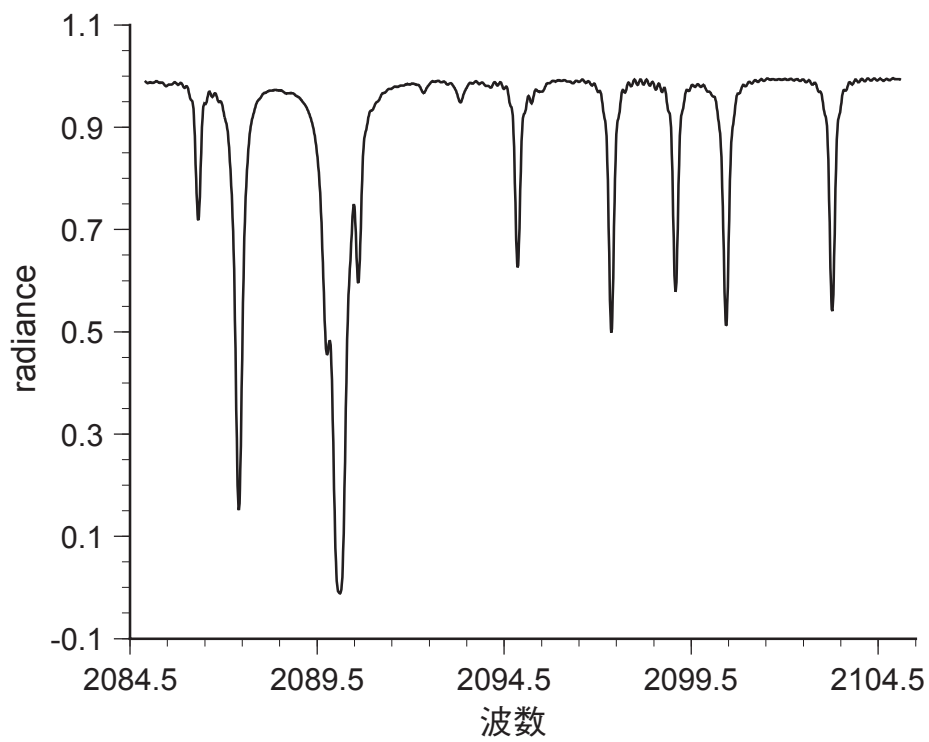


図28 SSによるシミュレーションスペクトル

光路長409mの場合については、フィルタ無しの場合のスペクトルである。

各分子の濃度計算に用いた波数領域を表5に示す。分子が幾つかの波数領域で吸収スペクトルを持つ場合には、他の分子の影響が少なく、かつ吸収が60%程度である波数領域から算出されたものの中で、最もフィッティング誤差の小さいものを測定値とした。光路長260mにおける各波数領域での観測スペクトルと求めた濃度からフォワードモデルで計算したスペクトル、および二つのスペクトルの残差を図30から図34に示す。

表5 各分子の濃度計算に用いた波数領域

CO <sub>2</sub>	2230.0–2245.0 cm <sup>-1</sup>
CO	2085.0–2105.0 cm <sup>-1</sup>
CH <sub>4</sub>	2910.0–2940.0 cm <sup>-1</sup>
N <sub>2</sub> O	2201.0–2202.2 cm <sup>-1</sup>
H <sub>2</sub> O	3280.0–3307.0 cm <sup>-1</sup>

リトリーバルで求めた光路長260mおよび409mのときの各分子の濃度と誤差、およびバックグラウンド観測地点で観測された2000年12月の月平均を表6にまとめる。

バックグラウンド観測地点のデータとして、落石岬（北海道根室半島）、波照間（沖縄県八重山諸島）、綾里（岩手県）の3カ所のデータを用いた。

誤差は異なる吸収スペクトルから求められた測定値のばらつきから見積もった。誤差の要因としては、他にもフィッティング誤差、吸収スペクトルのパラメータの誤差、モデル計算の誤差などがあるが、ここでは無視できるものとした。誤差評価の結果、CO<sub>2</sub>、CO、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oについて1～4%の精度で測定が行われていることが分かった。ただし、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oについては濃度の変動が小さいことが知られており、より精度の高い測定が必要であると考えられる。H<sub>2</sub>Oについては誤差が6～8%で、他の分子と比較すると大きい、これはH<sub>2</sub>Oの変動が大きいこと、スペクトルの温度依存度が大きいことによるものと考えられる。

光路長260mにおける測定結果をみると、COの濃度がバックグラウンドの値と比べてそれぞれ3倍程度大きいものに対して、CO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>Oはバックグラウンドとほぼ同じ値である。またCH<sub>4</sub>の濃度はバックグラウンドよりもやや大きい。一方、COについては、都市部の道路沿いでは、車の排気ガスなど化石燃料の燃焼による汚染の影響を受け

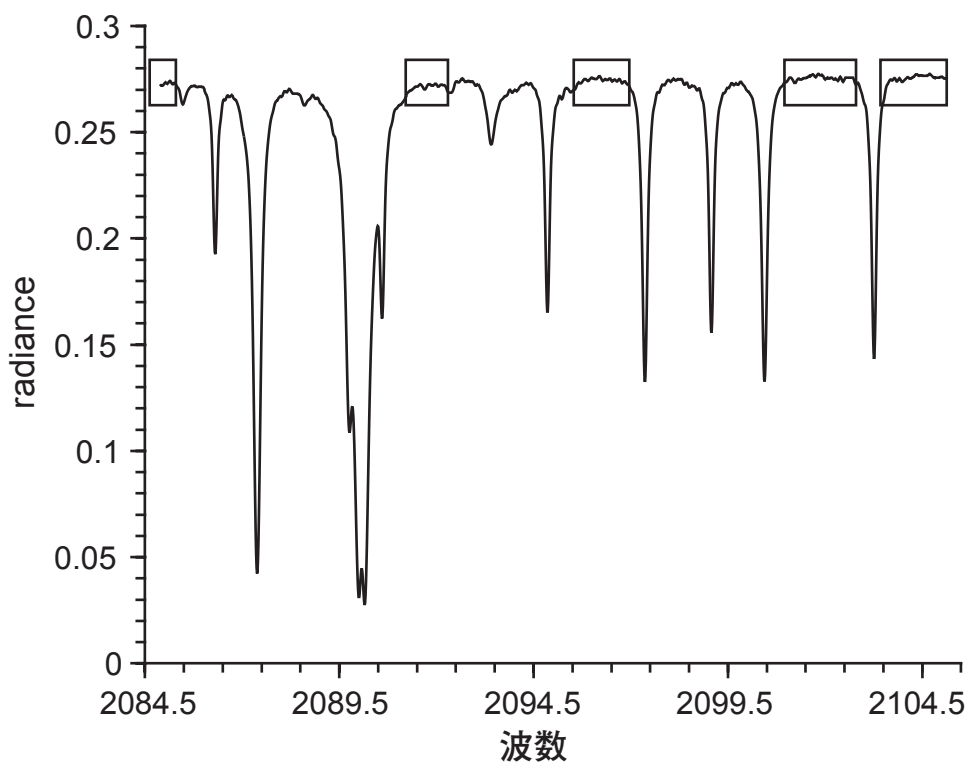


図29 ベースライン決定  
図中の四角で囲った部分をベースラインと見なす。

て濃度が大きく変化し、1000ppbvを超える場合がある。観測を行った国立環境研究所の正面には幹線道路があるため、汚染大気が輸送されてきた可能性が考えられるが、化石燃料の燃焼の影響とすればCO<sub>2</sub>の値がバックグラウンドとほぼ同じ値であることと矛盾があり、COあるいは他の分子の濃度になんらかの測定誤差があると考えられる。一つの可能性として、大気熱赤外放射の影響が考えられる。

そこで、光路長409mによるデータの解析においては、

熱赤外放射の影響を取り除いた。その結果、CO<sub>2</sub>とCOの濃度はともにバックグラウンドよりも大きく、CH<sub>4</sub>はほぼ同じ、N<sub>2</sub>Oは小さい値である。COとCO<sub>2</sub>に関しては、光路長260mの場合のような矛盾が無いことから、輸送されてきた汚染大気を観測した可能性が考えられる。N<sub>2</sub>Oについてはバックグラウンドの値より10ppbv程度小さいが、これは誤差の範囲内であり、今後測定システムの高精度化あるいは分光パラメータの高精度化が必要であると考えられる。

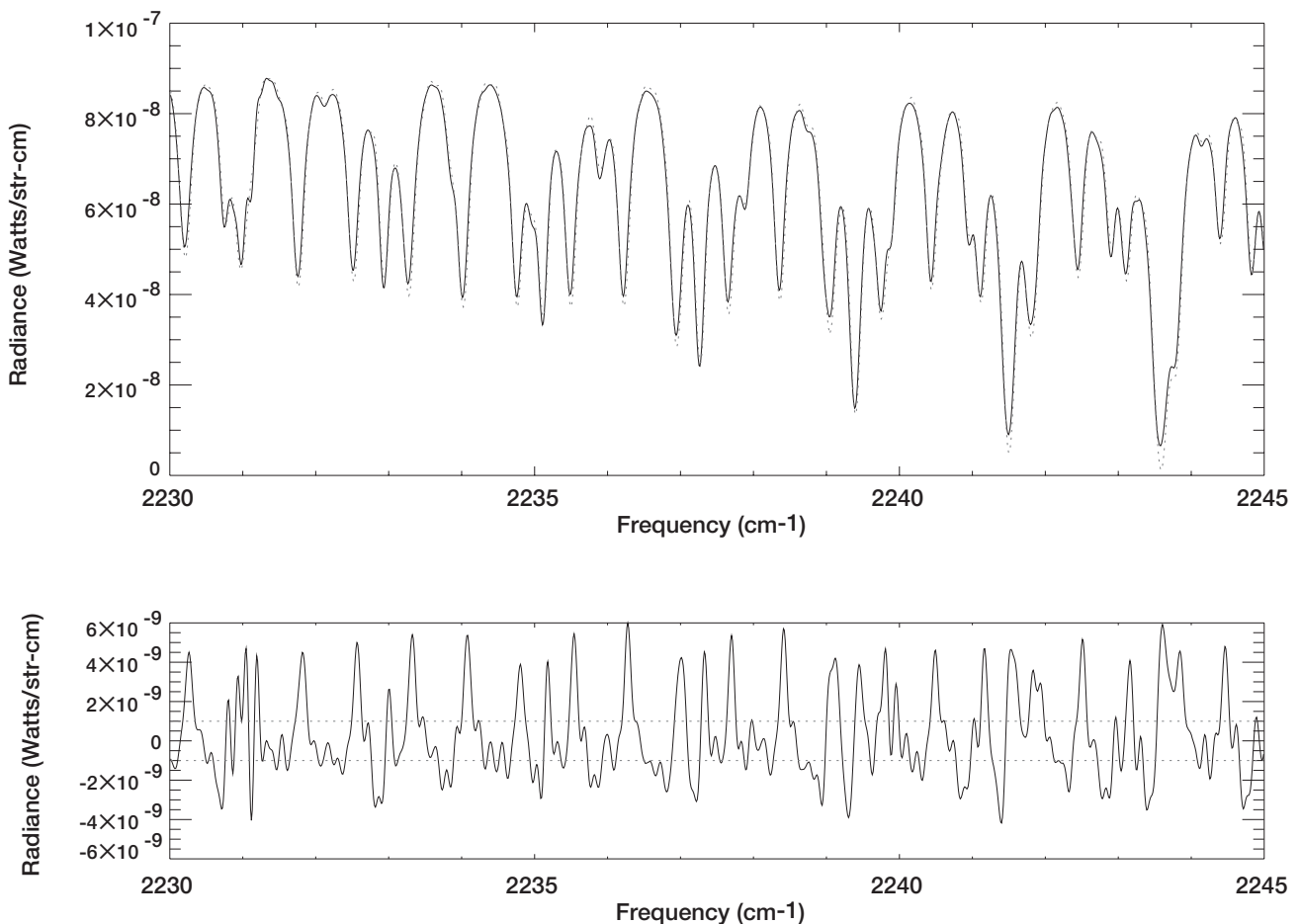


図30 上図はCO<sub>2</sub>の積算スペクトル（破線）とシミュレーションスペクトル（実線）  
下は2つのスペクトルの残差。波数領域は2230.0~2245.0 cm<sup>-1</sup>である。



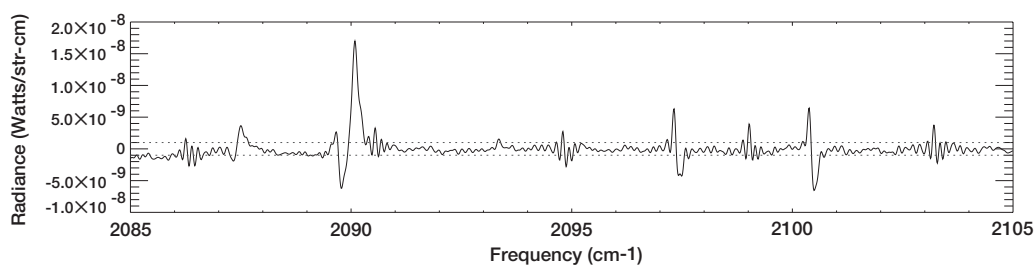
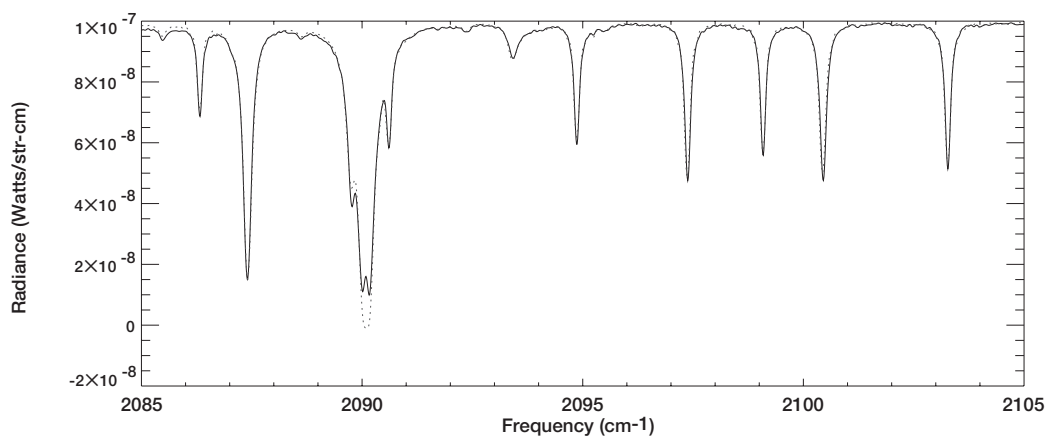


図31 上図はCOの積算スペクトル（破線）とシミュレーションスペクトル（実線）  
 下図は2つのスペクトルの残差  
 波数領域は2085.0～2105.0  $\text{cm}^{-1}$ である。

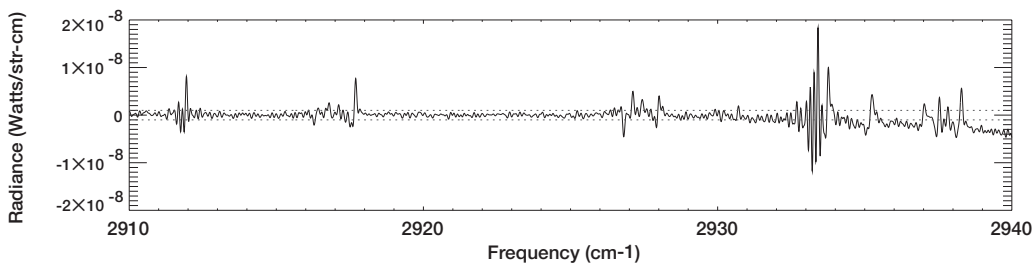
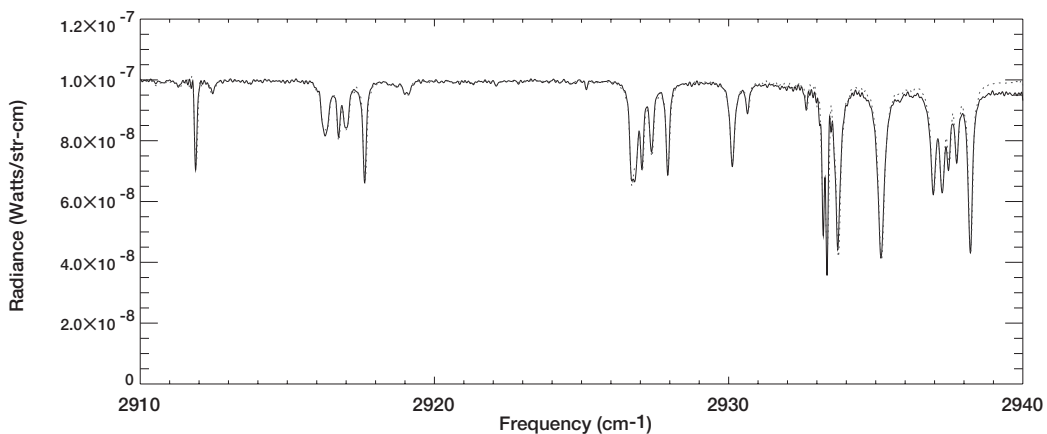


図32 上図はCH<sub>4</sub>の積算スペクトル（破線）とシミュレーションスペクトル（実線）  
 下図は2つのスペクトルの残差  
 波数領域は2910.0～2940.0  $\text{cm}^{-1}$ である。

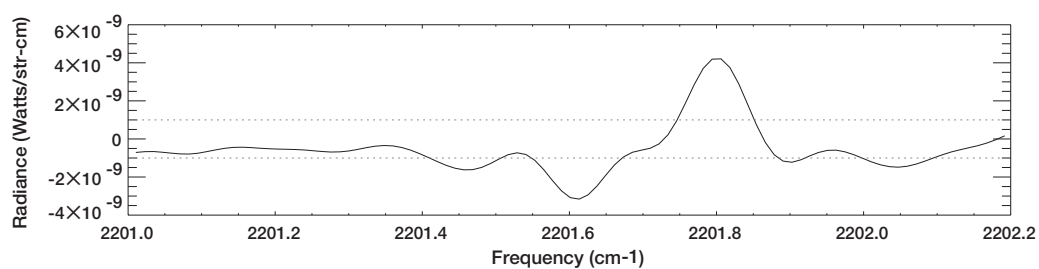
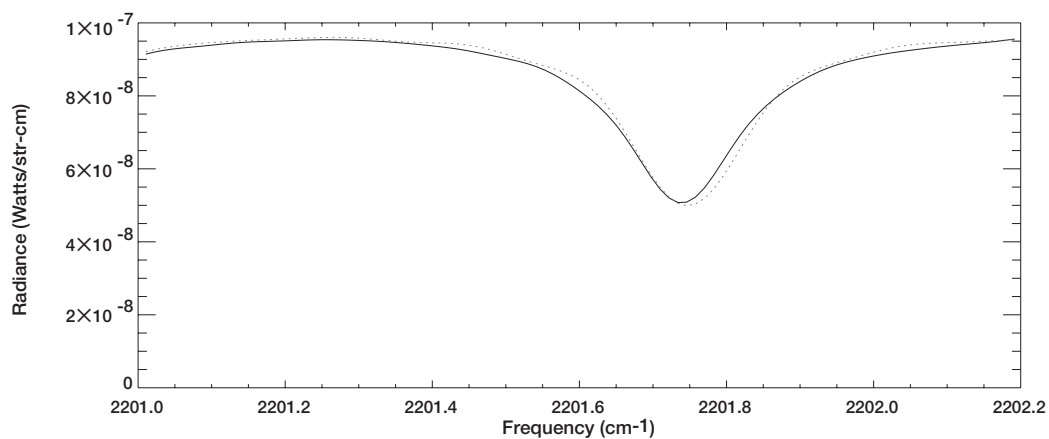


図33 上図はN<sub>2</sub>Oの積算スペクトル（破線）とシミュレーションスペクトル（実線）  
 下図は2つのスペクトルの残差  
 波数領域は2201.0～2202.2 cm<sup>-1</sup>である。

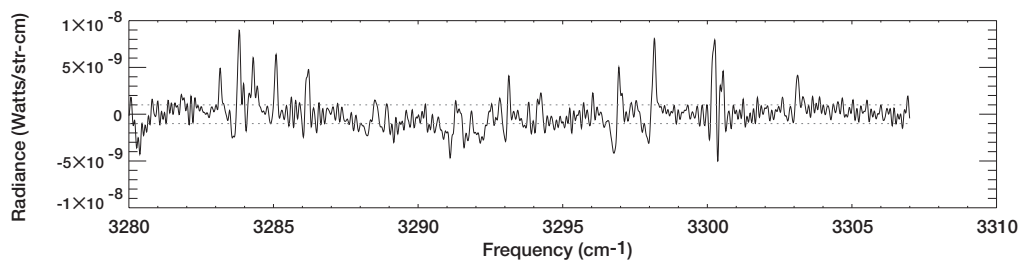
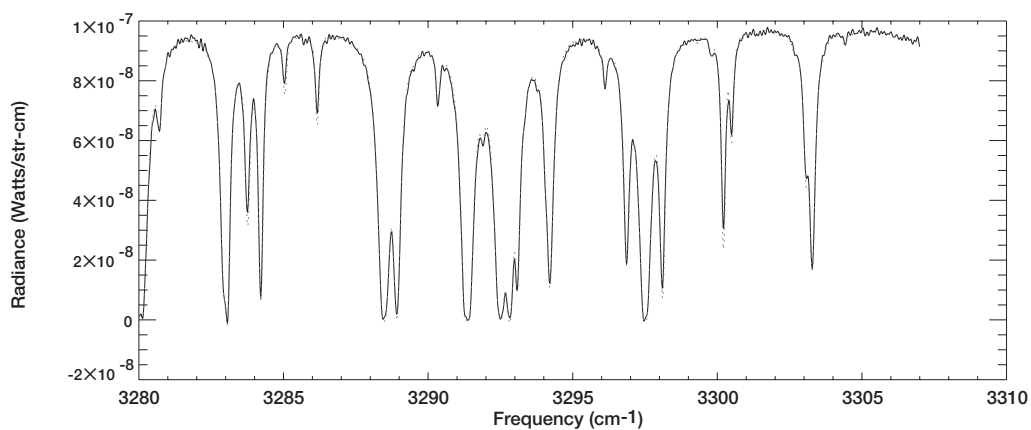


図34 上図はH<sub>2</sub>Oの積算スペクトル（破線）とシミュレーションスペクトル（実線）  
 下図は2つのスペクトルの残差  
 波数領域は3280.0～3307.0 cm<sup>-1</sup>である。

表6 観測された分子の濃度と誤差範囲

分子	測定値	誤差	測定値	誤差	参照値		
	(260m)		(409m)		落石岬	波照間	綾里
CO <sub>2</sub>	378ppmv	2%	419ppmv	1%	379ppmv	376ppmv	376ppmv
CO	572ppmv	3%	374ppbv	3%	-	-	190ppbv
CH <sub>4</sub>	1955ppmv	1%	1872ppbv	4%	1905ppbv	1870ppbv	1868ppbv
N <sub>2</sub> O	316ppmv	2%	306ppbv	3%	-	317ppbv	-
H <sub>2</sub> O	5889ppmv	8%	6232ppmv	6%	(1000～	10000ppmv)	-

## 2.4.5 考察

### (1) 気温の誤差による解析誤差の評価

微量分子スペクトルの吸収量は分子の密度だけでなく気温にも依存するので、濃度のリトリバルを行う場合には測定時の気温を正確に与える必要がある。しかし、現実には光路上の気温分布を知ることは困難で、与える気温には誤差が含まれる。この気温の誤差は濃度の解析誤差を生じさせるが、その大きさは分子のスペクトルごとに異なるので、実際に解析に用いる波数領域における数値実験により、気温の変化率に対する解析した濃度の変化率の評価を行った。

ここでスペクトルの温度依存性について、波数領域2050～2220cm<sup>-1</sup>におけるCOスペクトルの例を示す。光路長260mで観測を行った場合、気温277.5Kに対して、+2.5 Kの280.0 Kの場合および-2.5Kの275.0Kのケースでシミュレーションを行った。図35に観測時の気温277.5KでのCOスペクトルのシミュレーションを示す。図36に気温280.0Kおよび275.0Kの場合のスペクトルと277.5Kのスペクトルとの差分をそれぞれ示す。図36から、気温が高くなると吸収バンドの外側に近いスペクトルの吸収が大きくなり、内側に近いスペクトルで吸収が小さくなるのが分かる。2.5K（1%）の気温の変化に対して、COスペクトルの強度は最大0.4%変化する。また、波数2090cm<sup>-1</sup>付近と2190cm<sup>-1</sup>付近のスペクトルは温度変化の影響が小さいことが分かる。

気温の影響の評価手順は、観測されたスペクトルを使って、気温が273K、283K、293Kの場合について、H<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub>、CO、N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>の濃度の解析を行い、気温を変えたときの濃度の変化を求める。解析には光路長409mで観測されたスペクトルを用いた。解析は、(1) H<sub>2</sub>Oの

吸収スペクトルが多い3280～3305cm<sup>-1</sup>、(2) CO<sub>2</sub>の吸収スペクトルが多い2230～2245cm<sup>-1</sup>、(3) COの吸収スペクトルがある2085～2105cm<sup>-1</sup>、(4) CH<sub>4</sub>の吸収スペクトルが存在する2910～2940cm<sup>-1</sup>、(5) N<sub>2</sub>Oの吸収スペクトルが多い2190～2218cm<sup>-1</sup>、の5つの波数領域で行った。

結果を表7にまとめた。H<sub>2</sub>Oの場合は、気温が273Kから293Kに7%増加しても、濃度は0.6%減少するだけで、気温の変化の影響が非常に小さいことが分かる。一方、CO<sub>2</sub>は気温が7%増加することにより、濃度は18%減少する。また、CO、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oの場合は、それぞれ3%、1%、5%増加することが分かった。

CO<sub>2</sub>以外の分子については、気温の変化率に対して解析した濃度の変化率は同程度もしくはそれより小さい。実際の測定では、気温の測定精度は1%以下が期待できるので、観測時の気温の時間変化や光路上の気温分布に大きな不均一がなければ、気温の誤差が解析した濃度に与える影響は小さいことを示している。

一方、この波数領域のCO<sub>2</sub>スペクトルは、気温の変化率に対して濃度の変化率が大きいので、解析精度を上げるためには気温を精度良く与える必要がある。これに対して、前節でカラム平均濃度を求めるのに用いた1.6μm帯のCO<sub>2</sub>スペクトルは、温度に対する変化率がこの波数領域のスペクトルより小さいため、気温の変化の影響を受けにくい。しかし1.6μm帯のCO<sub>2</sub>スペクトルの吸収係数は小さいため、測定に必要な吸収量を得るには、光路長を十分に長く取る必要がある。今回の測定では、用いた光路長が260mと409mで、このときの1.6μm帯のCO<sub>2</sub>の吸収は小さく、測定に用いることができなかった。

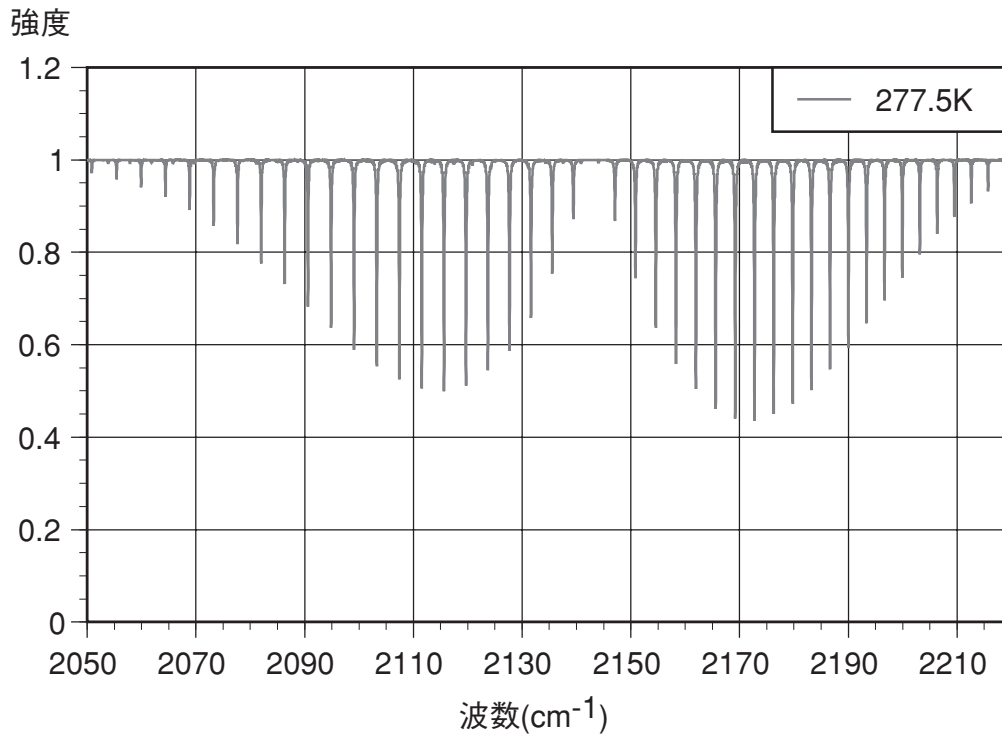


図35 気温277.5KでのCOスペクトルのシミュレーション

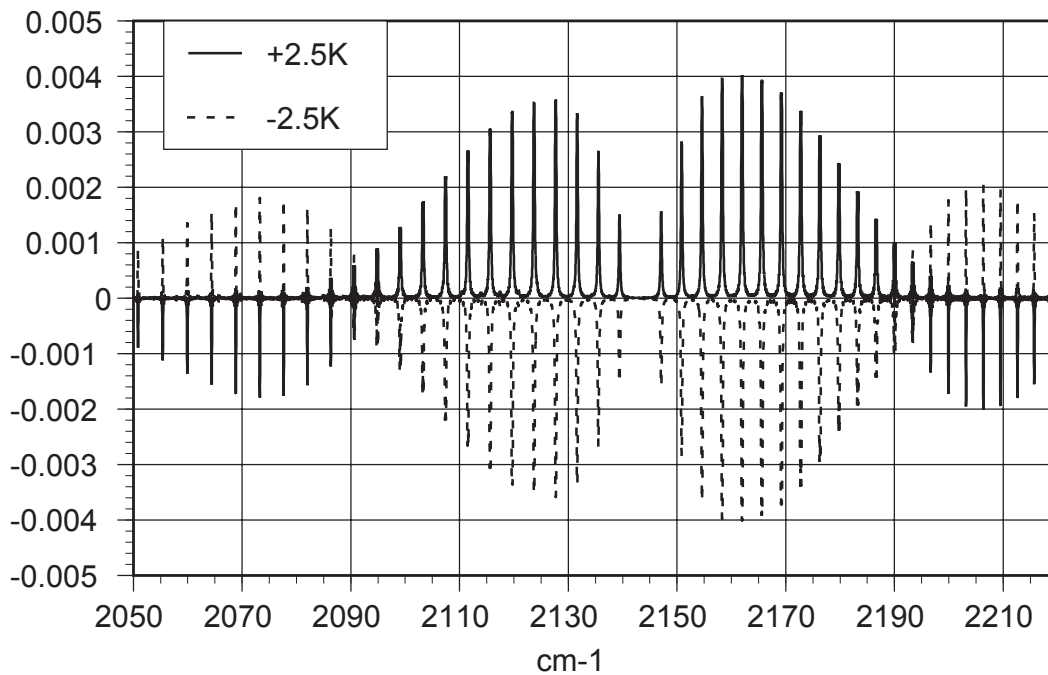


図36 COの吸収バンドでの温度の違いによるスペクトルの変化  
「+2.5K」は、(277.5Kのスペクトル) - (280Kのスペクトル) で、「-2.5K」は、(277.5Kのスペクトル) - (275Kのスペクトル) を表す。

表7 気温の変化による濃度の変化

分子濃度				
波数 (cm <sup>-1</sup> )	分子	273K	283K	293K
2910-2940	CH <sub>4</sub> (ppbv)	1860.42	1871.83	1887.02
2085-2105	CO (ppbv)	377.644	373.916	368.515
2230-2245	CO <sub>2</sub> (ppmv)	466.371	418.794	379.042
3280-3305	H <sub>2</sub> O (ppmv)	6297.82	6232.15	6265.61
2190-2210	N <sub>2</sub> O (ppbv)	299.342	306.393	313.641

(2) H<sub>2</sub>Oスペクトルごとの解析誤差

H<sub>2</sub>Oには多くの吸収スペクトルが存在することから、同じ観測データで波数領域を変えて、異なるH<sub>2</sub>Oスペクトルで解析を行った場合、濃度にどのような影響が表れるかを評価した。用いた波数領域は2005～2025cm<sup>-1</sup>、2085～2105cm<sup>-1</sup>、2600～2699cm<sup>-1</sup>の3カ所で、それぞれについて気温が275.0K、277.5K、280.0Kの場合で濃度を求めた。用いた波数領域を図37に、解析結果を表8にまとめた。

表から、同一の観測データであっても、使用する波数領域によって、求めたH<sub>2</sub>O濃度が大きく異なることが分かる。また、気温の変化の影響も波数領域によって異なる。これは、スペクトルの温度依存性が異なるためであり、精度良く濃度を求めるには、温度依存性が小さいスペクトルを用いる必要がある。ここで用いた3つの波数領域では2600～2699cm<sup>-1</sup>が気温に対する影響が最も小さく、H<sub>2</sub>O濃度を求めるのに適していると考えられる。

(3) H<sub>2</sub>O濃度のCO濃度解析に与える影響

H<sub>2</sub>Oによる吸収は大きく、連続的に吸収があるため、H<sub>2</sub>O濃度が変化することでスペクトルのベースラインが大きく変化する。そのため、その他の分子の濃度解析にも影響を及ぼすと考えられる。そこで、H<sub>2</sub>O濃度が変化した場合にCO濃度に与える影響について調べた。条件は気温を277.5Kとし、H<sub>2</sub>O濃度が4336.0ppmv、4484.9ppmv、4815.9ppmvの3つの場合について、COの濃度を求めた。結果を表9にまとめる。表から、与えたH<sub>2</sub>O濃度によって得られるCO濃度が異なることが分かる。しかし、与えたH<sub>2</sub>O濃度が11%増加したときにCO濃度は1%しか減少していない。したがって、H<sub>2</sub>O濃度が数%程度の精度で求められていれば、CO濃度の解析においてH<sub>2</sub>O濃度の不確かさは大きな影響を与えないと考えられる。

表8 気温の変化によるH<sub>2</sub>O濃度の変化

気温	波数領域					
	① 2085-2105 cm <sup>-1</sup>		② 2005-2025 cm <sup>-1</sup>		③ 2600-2699 cm <sup>-1</sup>	
277.5 K	4612.8 ppmv	変化率	4484.9 ppmv	変化率	4815.9 ppmv	変化率
280.0 K	4837.4 ppmv	+ 5 %	4395.9 ppmv	- 2 %	4860.2 ppmv	+ 1 %
275.0 K	4468.6 ppmv	- 3 %	4568.1 ppmv	+ 2 %	4771.5 ppmv	- 1 %

(4) スペクトル上のノイズによる解析誤差の評価

観測されたスペクトル上のノイズは、リトリーバルにより濃度解析を行った場合に、解析誤差を生じさせる。しかし、ノイズの大きさと解析誤差との関係は放射伝達式とリトリーバルのアルゴリズムに依存するため、解析的に求めることは困難である。そこで、数値実験により人工的にノイズを加えたスペクトルを作ってリトリーバルを行い、ノイズの大きさと解析精度との関係を調べる。

評価の手順としては、まず気温と微量分子の初期推定値を与えてSSによるフォワードモデル計算を行い、モデルスペクトルを求める。このモデルスペクトルに対して、SN比に対応する正規分布ノイズを加えたものを観測スペクトルと見なしてSSにより濃度解析を行う。得られた濃度と初期推定値との差がノイズによる解析誤差である。このような計算を繰り返し行い、ノイズによる解析誤差を評価する。

具体的にはSN比が10, 100, 1000の場合について、解析誤差を評価した。評価を行った波数領域は(1) H<sub>2</sub>Oの吸収スペクトルが多い3280~3305cm<sup>-1</sup>, (2) CO<sub>2</sub>の吸収スペクトルが多い2230~2245cm<sup>-1</sup>, (3) COの吸収スペクトルがある2085~2105cm<sup>-1</sup>の3つである。すべての場合において、気温は283Kで固定し、微量分子としてH<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CO, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>を与え、フォワードモデルにより吸収スペクトルを計算した。図38に波数3280~3305cm<sup>-1</sup>におけるフォワードモデル計算、および図39

から図41にS/N=10, 100, 1000の場合のスペクトルを示す。

表10に結果をまとめる。いずれの分子の場合でもSN比が高くなるにしたがって誤差が小さくなるが、その程度は分子によって異なることが分かる。SN比が10の時には、H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, COについて、それぞれ4%, 0.8%, 3%の誤差である。SN比が100の場合には、H<sub>2</sub>OとCO<sub>2</sub>の解析誤差が0.08%程度であるのに対して、COは0.2%程度で2~3倍程度大きい。さらに、SN比が1000の場合には、H<sub>2</sub>Oの誤差が0.0003%と非常に小さくなるのに対して、CO<sub>2</sub>, COについては、0.003%および0.03%程度と1桁以上大きい。おおまかに見ると、CO<sub>2</sub>とCOはSN比の向上に対して、ほぼ一定の割合で誤差が減少しているのに対して、H<sub>2</sub>OはSN比が1000の場合に急激に誤差が小さくなっている。

このような、分子によってSN比の改善にともなって誤差減少の程度が違うのは、解析に用いる吸収スペクトルの吸収範囲によると考えられる。H<sub>2</sub>Oの場合には、スペクトルの中心付近だけでなく波長領域全体にわたり連続的に吸収しているので、これらの濃度がスペクトルの

表9 H<sub>2</sub>O濃度とその値を用いて得られたCO濃度

H <sub>2</sub> O濃度(ppmv)	4336.0	4484.9	4815.9
CO濃度(ppmv)	573.4	571.8	566.7
CO濃度の変化率	—	- 0.3%	- 1%

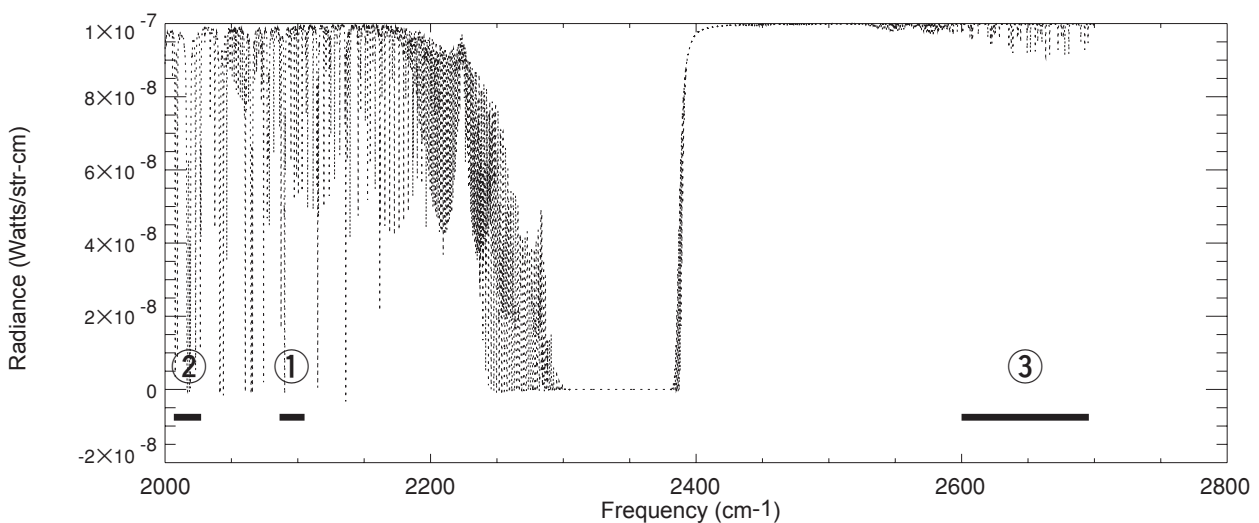


図37 H<sub>2</sub>Oのシミュレーションスペクトル (2000~2700 cm<sup>-1</sup>) で、①~③は各波数領域を表す。

ベースラインの形に大きな影響を及ぼしている。そのため、リトリーバルにより濃度を求めるときは、吸収の大きい部分の影響よりもスペクトル全体の影響を受けやすいと考えられる。なぜなら、吸収の大きい部分の波数範囲より吸収の少ないスペクトルの形を決めている部分の波数範囲のほうがはるかに広く、データ数が多いので情報を多く含むからである。この場合に、スペクトルにランダムノイズを加えても、波数範囲が十分に広いためノイズが平均され、スペクトルの形自身が大きく変化することは無い。しかし、ベースラインを決める場合に、吸収の小さな波数領域でノイズの影響を受けて誤差を生じ、その影響でSN比が向上した場合の誤差の減少が一

定ではなくなったものと考えられる。

一方、CO<sub>2</sub>やCOの場合には、連続的な吸収によるスペクトルの形への影響が無いので、吸収スペクトル1つひとつの形が解析誤差に影響すると考えられる。吸収を受けている波数範囲は狭いので、ランダムノイズを加えた場合には吸収スペクトルの形が変化しやすい。これにともなって解析誤差がH<sub>2</sub>Oの場合に比べて、ノイズの影響を受けやすく、SN比が同じであっても誤差が大きく変化すると考えられる。一般に、微量分子の吸収スペクトルの波数範囲は狭いので、この場合と同様の解析誤差が生じると推測される。

表10 スペクトル上のノイズによる解析誤差

	H <sub>2</sub> O	CO <sub>2</sub>	CO
初期推定値	7.34360E-03	7.35900E-04	9.56060E-07
	誤差 Δ (%)		
S/N=10	0.7558	4.2152	2.6421
S/N=100	0.0858	0.0742	0.1680
S/N=1000	0.0003	0.0038	0.0271

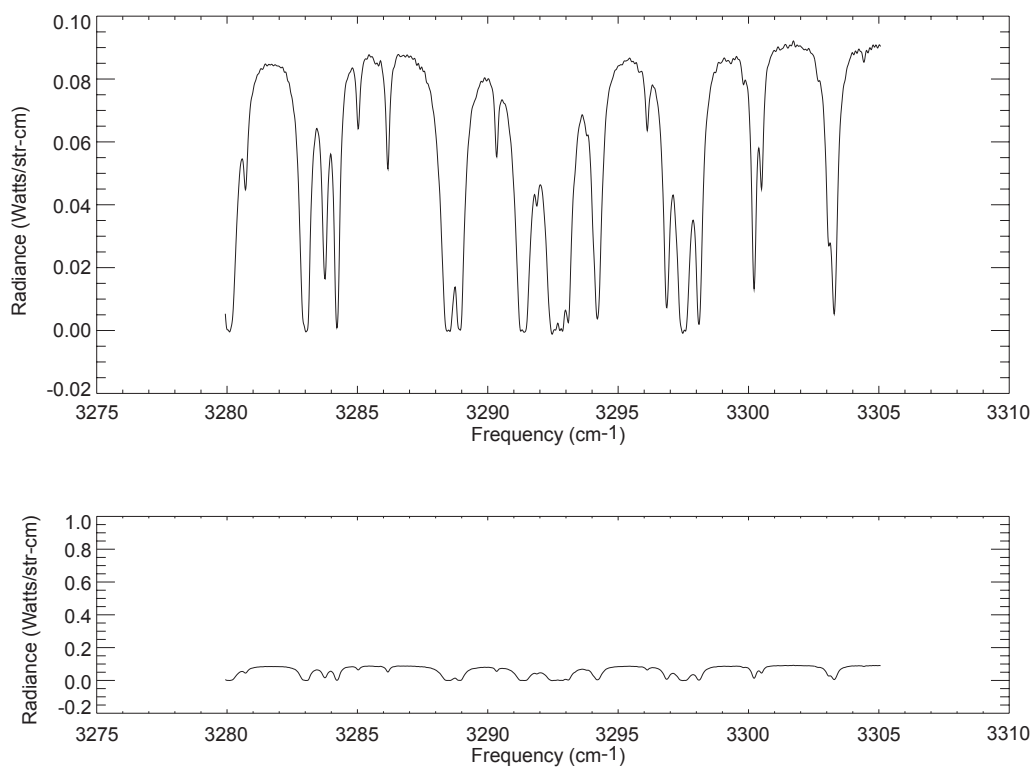


図38 波数3280-3310cm<sup>-1</sup>におけるフォワードモデル計算によるスペクトル



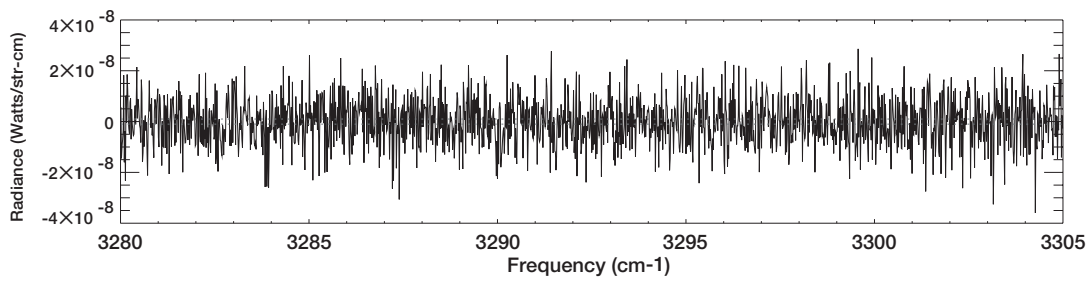
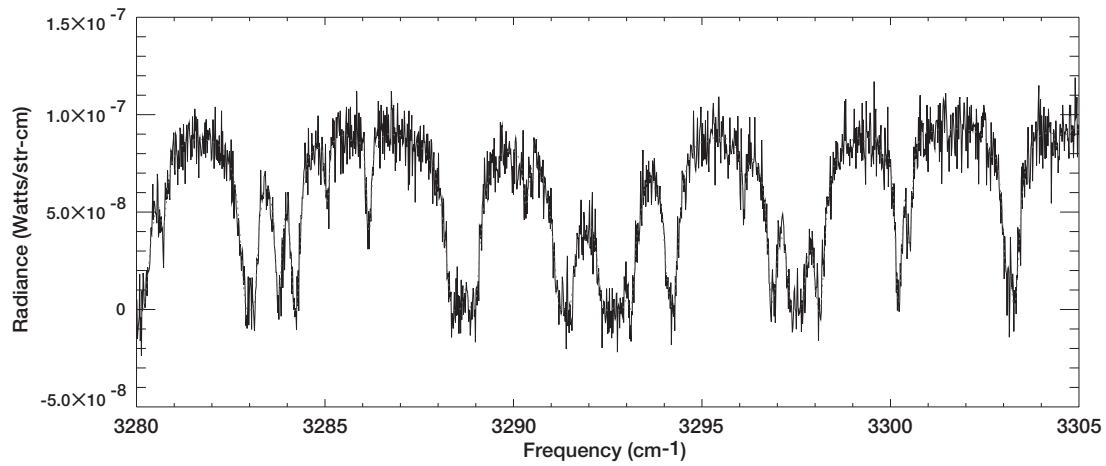


図39 図38でS/N=10の場合のフォワードモデル計算

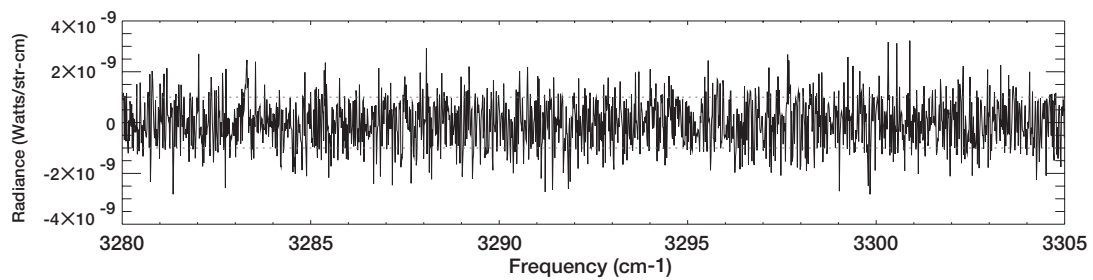
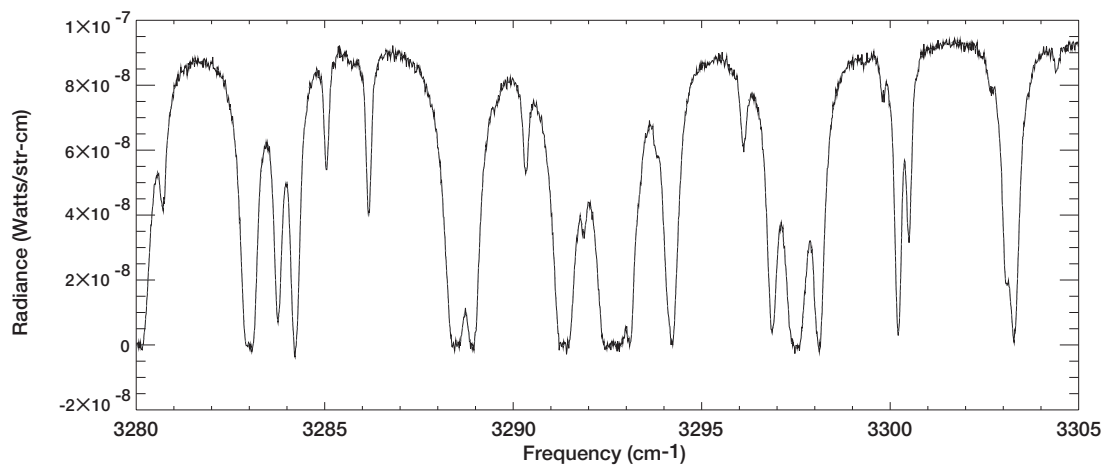


図40 図38でS/N=100の場合のフォワードモデル計算



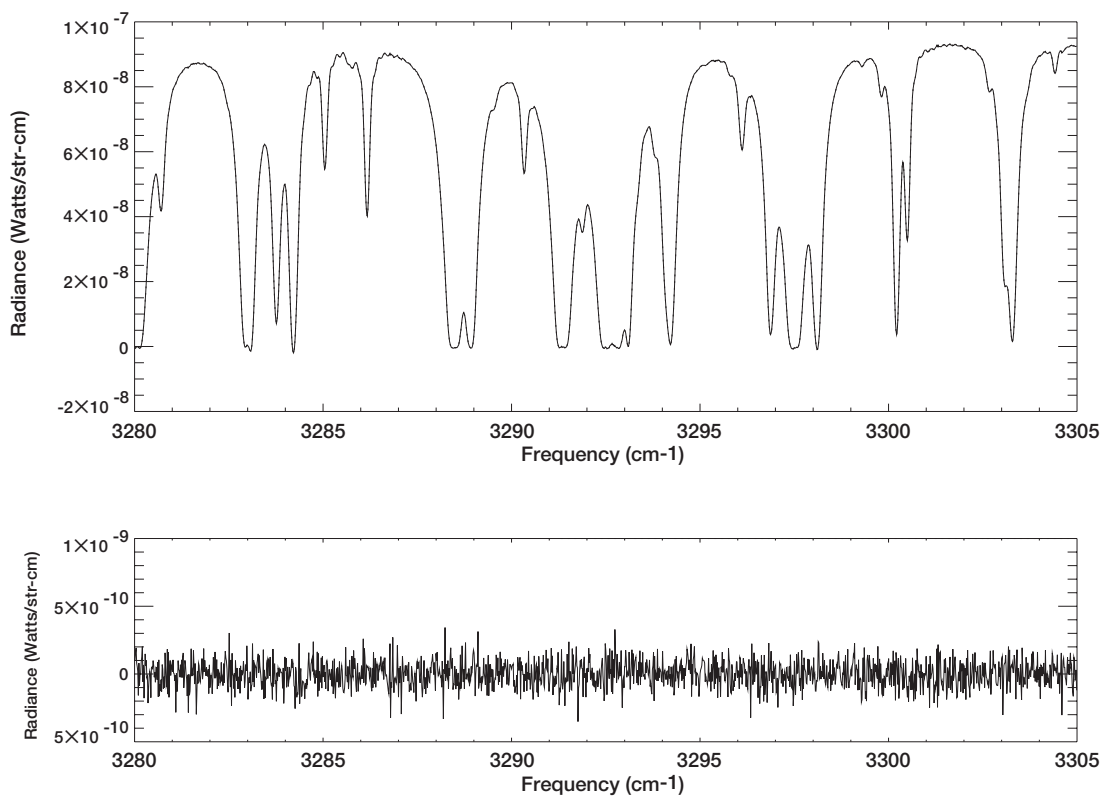


図41 図38でS/N=1000の場合のフォワードモデル計算

(5) 吸収の大きいスペクトルのみを用いたH<sub>2</sub>Oの濃度解析

FTIRによる吸収スペクトル観測では絶対値が分からないため、吸収が小さい波数領域のデータを使って、フォワードモデルの結果とのフィッティングを行い、観測データを絶対値に変換している。しかし、スペクトルのベースラインは、光源の輝度温度だけでなく、H<sub>2</sub>OとCO<sub>2</sub>の影響を大きく受ける。フォワードモデルにおけるH<sub>2</sub>OとCO<sub>2</sub>の初期推定値によってスペクトルのベースラインの形が決まるので、このフォワードモデルのスペクトルに観測スペクトルをフィッティングしてベースラインを決めると、その値は初期推定値の影響を強く受けたものとなることが予想される。そこで、スペクトル全体を使って濃度解析を行った場合と吸収の大きいスペクトルの部分だけを使って濃度解析を行った場合で濃度に違いが出るかどうかを調べることで、ベースライン決定時に初期推定値の与える影響を評価する。

評価の手順として、観測したスペクトルを用いて、波数領域全体のスペクトルを使って解析を行った場合と吸収量が0.1から0.7の範囲の波数領域を使って解析を行った場合を比較する。観測したスペクトルとして光路長

409mのデータを用い、3280~3305cm<sup>-1</sup>の波数領域を使って評価を行った。この波数領域にはH<sub>2</sub>Oのスペクトルが多数存在するので、このような評価を行うには適している。まず、これまでの解析手順でスペクトルのベースラインを決めた後、濃度の解析を行う。次に、求めたベースラインからの吸収量が0.1から0.7の範囲のデータを抜き出し、それだけを用いて濃度の解析を行う。

吸収量が0.1から0.7の波数領域を図42に示す。解析の結果、H<sub>2</sub>Oの場合はスペクトル全体を使った場合の濃度は6.08×10<sup>3</sup>ppmvに対し、吸収の大きい部分のみの場合では6.19×10<sup>3</sup>ppmvで、両者の間で約2%の差がある。また、両者の値はベースライン決定に使ったH<sub>2</sub>Oの初期推定値6.54×10<sup>3</sup>ppmvからはいずれも5%以上異なっている。2つの方法による解析結果は、いずれも初期推定値から有意に変化していることから、解析において初期推定値の影響は小さいと考えられる。また、スペクトル全体で濃度を求めた場合と吸収が十分にある部分のみで濃度を測定した場合とで大きな違いがないことより、いずれの方法でも十分な精度で結果が得られていると考えられる。

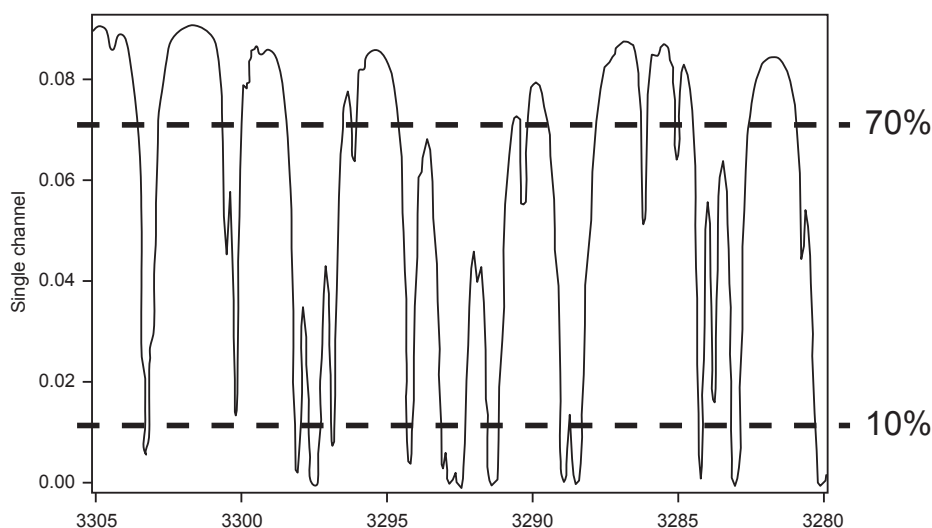


図42 水蒸気スペクトルの吸収量10~70%の範囲

## 2.5 今後の展開

本研究では、FTIRを用いて太陽を光源として主に温室効果ガスの鉛直分布およびカラム平均濃度を観測する手法を開発するとともに、これらの気体の地上付近での平均濃度をオープンパス長光路測定する手法の評価を行った。

鉛直分布およびカラム平均濃度の測定精度を向上させるためには、以下の課題がある。

- (1) 特に精度を要求されるCO<sub>2</sub>については、吸収係数などの分光パラメータのより正確な測定が必要である。
- (2) 鉛直分布についての検証が必要である。特に、CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>Oについては、航空機に搭載した*in-situ* 測器による検証が不可欠である。
- (3) SEASCRAPEとSFIT2等の解析ソフトウェアの特徴

と詳細をより明らかにし、最適な使用条件を見極める必要がある。

オープンパス長光路吸収観測に関しては、さらに開発を進める場合には、以下の課題がある。

- (1) SEASCRAPEによる解析で、解析する波数領域の選択やベースラインを求めるための吸収が小さい範囲の選択基準などの最適化を行う必要がある。また、吸収の大きいH<sub>2</sub>OやCO<sub>2</sub>などの影響を受けずにその他の吸収の小さな分子の濃度を求める手法の検討が必要である。
- (2) 正確な気温や水蒸気量をFTIR以外の手法で精度良く測定し、解析の時点で外部からデータとして与える方法を検討する必要がある。

## 引用文献

- 1) IMG Mission Operation & Verification Committee (1999): CRIEPI, Interferometric Monitoring for Greenhouse gases (IMG) project technical report.
- 2) McKernan, E., L. Yurganov, B. T. Tolton, and J. R. Drummond (2000): MOPIT validation using ground-based IR spectroscopy, SPIE 44th Annu. Meet., Int. Symp. Opt. Sci., Eng. & Instrum.
- 3) Luo, M., R. Beer, D. J. Jacob, J. A. Logan, and C. D. Rodgers (2002): Simulated observation of tropospheric ozone and CO with the Tropospheric Emission Spectrometer (TES) satellite instrument, *J. Geophys. Res.*, **107**, 10.1029/2001JD000804.
- 4) Yang, Z., G. C. Toon, J. S. Margolis, and P. O. Wennberg (2002): Atmospheric CO<sub>2</sub> retrieved from ground-based near IR solar spectra, *Geophys. Res. Lett.*, **29**, 10.1029/2001GL014537.
- 5) Rinsland, C. P., A. Meier, D. W. T. Griffith, and L. S. Chiou (2001): Ground-based measurements of tropospheric CO, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, and Hcn from Australia at 34°S latitude during 1997-1998, *J. Geophys. Res.*, **106**, 20913-20924.
- 6) Zhao, Y., Y. Kondo, F. J. Murcray, X. Liu, M. Koike, K. Kita, H. Nakajima, I. Murata, and K. Suzuki (1997): Carbon monoxide column abundances and tropospheric

concentrations retrieved from high resolution ground-based infrared solar spectra at 43.5°N over Japan, J. Geophys. Res., **102**, 23403-23411.

- 7) 村田 功, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰 (2003):  
地上赤外分光観測より導出したオゾン高度分布の精

度, 第13回大気化学シンポジウム集録, **41**.

- 8) Livingston, W. and L. Wallace (1991): An atlas of the solar spectrum in the infrared from 1850 to 9000  $\text{cm}^{-1}$ , NSO Technical Report, 91 (001).

# [資 料]



## I 研究の組織と研究課題の構成

### 1 研究の組織

#### [A 研究担当者]

大気圏環境研究領域

上席研究官

中根英昭 (平成12～14年度)

ポスドクフェロー

長浜智生 (平成12～14年度)

遠隔計測研究室

室長

杉本伸夫 (平成12～14年度)

大気反応研究室

室長

畠山史郎 (平成12～14年度)

地球環境研究センター

総括研究管理官

井上 元 (平成12～14年度)

#### [B 客員研究員]

近藤 豊

(東京大学先端科学技術研究センター)

(平成12～14年度)

小池 真

(東京大学大学院理学系研究科)

(平成12～14年度)

北 和之

(茨城大学理学部)

(平成12～14年度)

村田 功

(東北大学大学院理学研究科)

(平成12～14年度)

福西 浩

(東北大学大学院理学研究科)

(平成12～14年度)

### 2 研究課題と担当者 (\*客員研究員)

(1) 長光路吸収法による大気汚染物質の同時多成分計測技術の開発

杉本伸夫・畠山史郎・中根英昭\*・北 和之\*

(2) 太陽光源赤外吸収スペクトルを用いた温暖化関連物質の鉛直分布計測技術の開発

井上 元・長浜智生・中根英昭・近藤 豊\*・小池 真\*・村田 功\*・福西 浩\*

## II 研究成果発表一覧

### 1 誌上発表

---

発表者・題目・掲載誌・巻(号)・頁・刊年

---

小林展隆, 村田 功, 福西 浩, 中根英昭: 赤外分光観測による大気微量成分の全量導出精度に及ぼす初期高度分布の影響, 第11回大気化学シンポジウム集録, 44-47, 2001

村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭: FT-IR観測によるつくば上空大気微量成分の変動, 第11回大気化学シンポジウム集録, 48-51, 2001

村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: SFIT2を用いた地上赤外分光観測からの大気微量成分高度分布の導出, 第12回大気化学シンポジウム集録, 55-56, 2001

Zhao Y., Strong K., Kondo Y., Koike M., Matsumi Y., Irie H., Rinsland C. P., Jones N. B., Suzuki K., Nakajima H., Nakane H., Murata I.: Spectroscopic measurements of tropospheric CO, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, and HCN in northern Japan, *J. Geophys. Res.* **107** (D18), 4343, doi:10.1029/2001JD000748, 2001

村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: フーリエ分光計を用いた赤外分光観測による大気微量成分高度分布観測, 国立極地研究所平成13年度公開シンポジウムプロシーディング, 74-75, 2002

小林展隆, 村田 功, 福西 浩, 中根英昭: 赤外分光観測による大気微量成分全量導出の高精度化, 第16回大気圏シンポジウム集録, 107-110, 2002

升井幸男, 小池 真, 近藤 豊, 松見 豊, 瀬良正幸, Jones N. B., Palmer P. I., Jacob D. J., 中根英昭, 村田 功, 梶井克純, 加藤俊吾: FTIRによって観測された対流圏一酸化炭素の季節変化, 第13回大気化学シンポジウム集録, 140-143, 2003

村田 功, 福西 浩, 中根英昭, 中島英彰: 地上赤外分光観測より導出したオゾン高度分布の精度, 第13回大気化学シンポジウム集録, 41, 2003

中根英昭: 成層圏大気微量成分の分光観測, *KAST Report* (カストレポート), **14** (2), 24-29, 2003

---



## 2 口頭発表

---

発表者・題目・学会等名称・開催都市名・年月

---

Murata I., Kobayashi N., Fukunishi H., Nakane H., Zhao Y.: Accuracy of the column amounts of ozone and some trace species observed with Fourier Transform Spectrometer, Network Detect. Stratospheric Change 2001 Symp., Arcachon, 2001. 9.

村田 功, 小林展隆, 福西 浩, 中根英昭, 近藤 豊, 小池 真, 松見 豊: つくばおよび陸別FT-IR観測に見られる極渦の影響, 日本気象学会2001年秋季大会, 岐阜, 2001. 9

長浜智生, 中根英昭: SEASCRAPEを用いたつくばFTIRデータの解析による対流圏・成層圏微量分子の鉛直分布, 日本気象学会2002年秋季大会, 札幌, 2002. 10

長浜智生, 中根英昭, 井上 元: 地上FTIRを用いた太陽光吸収スペクトル観測によるCO<sub>2</sub>カラム平均濃度の解析, 日本気象学会2003年秋季大会, 仙台, 2003. 10

---



REPORT OF SPECIAL RESEARCH FROM  
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

国立環境研究所特別研究報告  
SR-52-2003

---

平成15年 9月30日発行

編 集 国立環境研究所 編集委員会

発 行 独立行政法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川16番2  
電話 029-850-2343 (ダイヤルイン)

---

印 刷 アサヒビジネス株式会社

〒300-0066 茨城県土浦市虫掛3317-2

Published by the National Institute for Environmental Studies

16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan

September 2003

---

無断転載を禁じます

