

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 30 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340140

研究課題名(和文)近赤外光スペクトラムアナライザによる温室効果ガスカラム濃度の高精度計測手法の開発

研究課題名(英文)Development of a measuring system of column-averaged mixing ratio of greenhouse gases with an optical spectrum analyzer operated in near infrared region

研究代表者

長濱 智生(NAGAHAMA, Tomoo)

名古屋大学・太陽地球環境研究所・准教授

研究者番号：70377779

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,800,000円、(間接経費) 4,740,000円

研究成果の概要(和文)：多地点に展開可能な小型近赤外光スペクトラムアナライザによる温室効果ガスカラム平均濃度観測手法の開発を行った。観測システムの分光特性評価を行ったところ、スリット付き光ファイバを使うことで所望の波長分解能を達成することがわかった。また、観測スペクトルからカラム濃度を解析するソフトを開発し、二酸化炭素に対しては、SN比が500のスペクトルから精度1%以下でカラム濃度が得られるようになった。また、本観測システムと高分解能FTIRとの同時比較観測を行い、本観測システムではスリットの回転の影響によりスペクトル強度が約3%ゆらぎ、測定精度が十分でないことがわかった。今後、固定式スリットへの変更等を検討する。

研究成果の概要(英文)：We have newly developed a measuring system of column-averaged mixing ratio of carbon dioxide and methane with an optical spectrum analyzer operated in near infrared region. We made an evaluation of the instrumental parameters such as a resolution in wavelength and sensitivity, and have found that the estimated resolution was achieved to an expected value if we used an optical fiber with a slit at the edge. Next, we developed a program to retrieve a column-averaged mixing ratio from an observed spectrum. Simulation results showed that we can retrieve the mixing ratio within an accuracy of 1% from the spectrum whose signal-to-noise ratio is 500. We had made a comparison between the mixing ratio obtained with our system and a high-resolution FTIR system, and have found that fluctuation of the intensity obtained with our system was estimated to be about 3%, which is not achieved to the expected value. We will improve a mount mechanism of the fiber and slit system to resolve this problem.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、気象・海洋物理・陸水学

キーワード：地球環境システム 温室効果ガス 地球観測 リモートセンシング

## 1. 研究開始当初の背景

大気中の温室効果ガス濃度上昇が引き起こす地球温暖化の問題は、緊急に対応すべき全人類の課題である。大気中の温室効果ガス濃度は、大気中に排出された温室効果ガスが海洋・陸域等で吸収・分配され、最終的にどれだけ大気中に滞留したかというバランスによって決まる。すなわち、大気中の温室効果ガス濃度のデータは、温室効果ガスの大気への排出量と大気からの吸収量の差を最も反映したキーパラメータであり、地球温暖化の進行度とその原因に関する情報を最もよく示した基礎データである。したがって、これらの地球全体での分布を正確に把握することが極めて重要である。

このような立場から、近年、大気中の温室効果ガスの分布観測データに基づいて、温室効果ガスの排出・吸収量分布を評価するための様々な試みが世界で進められている。例えば、従来から行われている清浄な場所での観測タワーを使ったサンプリング観測では、観測点が世界で 10 数カ所と限定的ではあるものの、温室効果ガス濃度を 0.1%以下の精度でモニタリングしており、これらは温室効果ガスの排出・吸収の評価のための基礎データとして広く用いられている。また、2009 年に日本が打ち上げた温室効果気体観測技術衛星「いぶき」(GOSAT)は全球の二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)及びメタン(CH<sub>4</sub>)定常観測を実現し、地球全体の温室効果ガス分布のモニタリングを進めている。

しかしながら、このような手法による温室効果ガスの排出・吸収量の分布に関する知見は、未だに十分ではない。大気の観測データに基づく温室効果ガスの排出・吸収量の分布評価では、一般には大気輸送モデルを利用した逆問題として推定を行う。この推定においては、観測地点の分布とガスの測定精度が排出・吸収量推定の精度を決める重要なパラメータである(例えば、Olsen & Randerson, 2004)。例えば、「いぶき」衛星では CO<sub>2</sub>と CH<sub>4</sub>の気柱(カラム)平均濃度を 1%の精度で約 100 km 四方ごとに観測し、亜大陸スケール(1000 km 程度)での温室効果ガスの排出・吸収量の評価を目指している。また、従来のサンプリング観測における観測地点の少なさを補い、地上観測網による排出・吸収量の精度の良い推定を長期にわたって行うことを目的として、大型の高分解能フーリエ変換型赤外分光器(Fourier Transform InfraRed spectroscopy: FTIR)を用いた世界的な温室効果ガス観測ネットワーク(Total Carbon Column Observing Network: TCCON)が形成され、統一した標準的な観測・解析手法により世界約 10 カ所上空の CO<sub>2</sub>及び CH<sub>4</sub>カラム平均濃度のモニタリングが行われている。申請者も現在、名古屋大学太陽地球環境研究所母子観測所の高分解能 FTIR を用いた定常観測を進めており、観測データは世界の関連研究者に活用されている。

しかし、現在の地上観測網は、衛星観測と比較して観測地点の絶対数が不足しており、また分布に大きな偏りがある。現在唯一の衛星観測を補完し、長期にわたり温室効果ガスの排出・吸収量の変化をモニタリングしていくためには、早急に多様な地点に地上観測網を整備することが強く望まれるが、サンプリングや高分解能 FTIR 観測は測定装置が高価で、設置場所に多くの制約があり、新たに観測地点を作るには現時点では困難が多い。このような状況で、多様な環境下の観測地点に展開可能な小型・可搬型で、かつ必要な観測精度が保証された大気中の温室効果ガスの地上測器が世界で強く求められている。

そのような条件を満たしうる観測装置の一つに、小型の近赤外光スペクトラムアナライザ(Optical Spectrum Analyzer: OSA)がある。OSA は回折格子を用いた可視・赤外分光装置で、光通信分野において汎用の測定器である。OSA の大きさは 50 cm 立方程度と小型で価格も高分解能 FTIR の 1/10 程度であり、数多く展開するのに都合がよい。OSA を用いた太陽光吸収スペクトル観測による CO<sub>2</sub>及び CH<sub>4</sub>カラム平均濃度測定は、これまでに京都大学と共同して観測実験を進めており、短期間ではあるものの、母子観測所において高分解能 FTIR との同時比較観測実験を行ってきた(Kobayashi et al. 2010)。本研究ではこれまでの成果を踏まえ、さらに従来の高分解能 FTIR による観測ネットワークを OSA により補完することを目指して、OSA と高分解能 FTIR との長期にわたる同時比較観測実験やガスセル等を用いた OSA の波長方向の精度補償技術の開発等を行って、安価で可搬性に優れた高精度な温室効果ガス測定装置として完成させる。それにより、従来困難とされた多様な場所に観測地点を展開できるようになり、衛星観測と並ぶ精度での温室効果ガスの排出・吸収量の推定を地上ネットワーク観測で長期にわたって実現することに貢献する。

## 2. 研究の目的

本研究は、小型の近赤外光スペクトラムアナライザ(OSA)を用いて大気中の温室効果ガスのカラム平均濃度を高い精度で測定する手法の確立することを目的とする。地球上の多様な場所に展開可能な、小型・可搬型で精度保証された温室効果ガスカラム平均濃度計測装置は、地上観測網により大陸スケール程度で温室効果ガスの排出・吸収量を把握するために必要不可欠なものであり、実現が最も渴望されているものである。本研究では、二酸化炭素及びメタンについて、大気中のカラム平均濃度を 1%以下の精度での測定を赤外光スペクトラムアナライザにより実現するために、波長分解能の実時間補償手法や OSA 観測スペクトルに特化したカラム平均濃度解析手法の開発、既存地上測器との長期同時観測による検証実験や多様な環境下での

観測を通じて確立する。

### 3. 研究の方法

(1)本研究においては、小型で可搬性に優れた OSA を用いた、太陽光吸収法による温室効果ガスのカラム平均濃度の高精度測定を実現する。そのために、本研究期間では次の 4 つの課題を達成することを目標とする。

環境変化や時間変化に伴う OSA の分光特性の変化を理解し、さらにその変動を実時間で評価・フィードバックする手法を開発することで、多様な環境における装置特性の維持を実現する。

OSA による観測スペクトルの解析に特化した、精度 1% 以下でカラム平均濃度を求めるリトリバル解析手法を開発する。

CO<sub>2</sub> 及び CH<sub>4</sub> カラム平均濃度が季節を通じて必要な観測精度で観測されることを検証する。

遠隔地に観測装置を設置して温室効果ガスを長期間実測して測器としての信頼性を実証する。

(2)これらの目標を達成するために具体的には次のことを行う。

波長 1.6-1.8 μm の CO<sub>2</sub> 及び CH<sub>4</sub> の吸収帯域において、太陽光及びガスセルによる吸収の同時計測による OSA の分光特性(波長分解能、波長確度等)の実時間評価法を確立する。

OSA による観測スペクトルの解析に特化した装置の特性等の解析パラメータを組み込んだ新しいカラム平均濃度解析手法の開発を行い、OSA においても精度 1% 以下でカラム平均濃度を求めることを実現する。

OSA による観測から CO<sub>2</sub> 及び CH<sub>4</sub> カラム平均濃度が季節を通じて、様々な環境下において十分な観測精度で観測されることを高分解能 FTIR 等との同時観測によって検証することを行う。

OSA を遠隔地に移設して、多様な環境下における測器の信頼性を検証する。

### 4. 研究成果

(1)温度等の外部環境の変化や装置の経時変化による OSA の分光特性の変化を把握するため、波長・波長分解能準実時間測定システムの開発を行った。温室効果ガス観測中にも準実時間で自動的に OSA の分光特性を測定するために、OSA や光パワーメータ等を GPIB によって接続し、制御パソコンによって自動で分光特性の計測を行うプログラムを作成した。本システムを実験室でテストしたところ所望の分光特性データを取得できることが確認できた。さらに取得した分光データから強度や波長分解能といった装置特性データを得ることができるようになった。

(2)開発した OSA 分光特性測定システムを用いて観測波長帯における OSA の分光特性の評価を行った。連続光としてハロゲン光源、ス

ペクトル光源としてホローカソードランプの光をコア径や伝送特性の異なる 3 種類の光ファイバを用いて OSA に入射し、光強度や波長分解能等を測定した。その結果、観測に使用する予定のコア径 62.5 μm のマルチモードファイバを通して OSA に光を入射した場合、スペクトルの線幅がコア径 9.5 μm のシングルモードファイバのときと比較して約 30% 広がることが明らかとなった。さらに、OSA で受光される光強度が想定される強度の約半分しかないこともわかった。原因を調査したところ、使用する OSA の入射側にスリットが備えていないことによることがわかった。グレーティングを用いた分光器ではその入射側と出射側の両端にスリットを置いてその幅で波長分解能を調整するが、この OSA では入射側にはスリットはなく光ファイバのコア径がそのままスリット幅となるため、コア径が大きなファイバを用いると波長分解能が低下する。さらに広いスリット幅の影響で OSA 内部での迷光となり受光強度が低下していることがわかった。対策として、新たにコア径 800 μm のマルチモードファイバの射出側に幅 20 μm のスリットを備えた光ファイバケーブルを試作した。幅の細いスリットを入射側に挿入することで波数分解能と受光強度の向上が期待できる。この光ファイバを用いて以前と同様の測定を行ったところ、想定していた入射光強度と波長分解能 0.05 nm が実現できていることがわかった。これにより、当初想定していた性能が達成された。この OSA 観測システムを用いて太陽光の CO<sub>2</sub> 吸収スペクトルを測定したところ、放射伝達シミュレーション(後述)による結果とほぼ同程度の波長分解能による吸収スペクトルが取得できた。これにより OSA 観測システムとして正しく動作しており観測に使用できることが確認された。

(3)OSA による観測で得られる太陽光吸収スペクトルから CO<sub>2</sub> 及び CH<sub>4</sub> のカラム平均濃度(それぞれ XCO<sub>2</sub> 及び XCH<sub>4</sub>)を推定する手法について開発を行った。本研究では、地上からの大気微量成分観測に用いられる、リトリバル法を用いた。これは、放射伝達モデルによって大気微量分子による太陽直達光の吸収スペクトルを求めたもの(計算値)と、観測されたスペクトル(観測値)との差が小さくなるように繰り返し計算によって微量分子の分布を最適化して推定値を得る手法である。本研究では放射伝達モデルの計算コードとして、Atmospheric & Environmental Research による Line-By-Line Radiative Transfer Model (LBLRTM) を用いた (<http://rtweb.aer.com/main.html>)。LBLRTM を用いて計算値を求める際には、OSA の実効的な波数分解能(0.05 nm)よりも 10 倍程度細かい波数間隔で吸収スペクトル計算を行うようにした。このときに、太陽フランフォーファー線の吸収パラメータとして

別途最新データベースの値を用いて太陽光スペクトルを計算できるように改良し、これを背景光源として利用することでより正確に実際の観測時における温室効果ガスによる吸収スペクトルを求めることができるようになった。また、分布推定の最適化を行うプログラムは既存のミリ波スペクトルデータリトリバルプログラム (Nagahama et al. 1999) を基に修正を加えて作成した。開発したソフトを用いて、CO<sub>2</sub> 高度分布を与えて疑似観測スペクトルを作成し、それに S/N=1500 となる大きさの雑音を加えてリトリバルを行ったところ、1 ppmv の誤差で XCO<sub>2</sub> を推定できることがわかった。またこれにより、実際の観測においては、少なくとも 1% (4 ppmv) の XCO<sub>2</sub> 測定精度が求められることから、S/N=500 程度以上のスペクトルを取得する必要があることがわかった。

(4) 開発した OSA 観測システムと高分解能 FTIR との同時比較観測による OSA データの精度検証を行った。平成 24 年度に名古屋大学太陽地球環境研究所母子観測所に OSA 観測システムを設置し、秋季約 3 ヶ月間、同観測所設置の高分解能 FTIR との同時観測を行った。その後、FTIR の太陽追尾装置の不具合により観測が中断したため、平成 25 年度秋に OSA を陸別観測所に移設して同施設内に設置されている国立環境研究所の高分解能 FTIR との比較観測を始めた。平成 24 年度の比較観測ではコア径 62.5 μm のマルチモードファイバを通して OSA に光を入射していたが、陸別観測所に移設したときに、その後の室内実験の結果を踏まえ (前述(2)) 使用する光ファイバを受光望遠鏡側にコア径 400 μm のファイバ、OSA 入射側にコア径 800 μm で射出側に幅 20 μm のスリットを備えたマルチモードファイバを途中で連結したものに变更して比較観測を行った。陸別移設後、約 2 ヶ月間の観測スペクトルデータを解析したところスペクトルの強度ゆらぎが約 3% あり、リトリバル解析を行うと XCO<sub>2</sub> の精度で約 30 ppmv の精度しかないことがわかった。この値は母子里で比較観測を行った時よりも約 10 倍悪化していた。この原因を調査したところ、ファイバ端の射出スリットの向きが観測期間中に回転し、最適な方向からずれたことによることがわかった。射出スリットの調整には調整用レーザーを用いて微調する必要があるが、現時点ではいったん調整しても向きを保持できる時間が数日と短いことから、現在の方法はフィールドでの観測には十分でないことがわかった。

(5) 本研究期間終了時点で、OSA による観測システムには精度向上のために必要な課題が残っている。今後、OSA の入射口に固定式スリットの設置を検討する。これにより、フィールドで安定してスペクトルが取得できる見込みである。また、これまで取得されたデ

ータに対しては、スリット変動の影響を補正するアルゴリズムを解析プログラムに加え、たとえスリットの向きに不具合があった場合にも XCO<sub>2</sub> の解析精度を確保する方策を検討し、温室効果ガス測定装置としての性能向上を引き続き図る予定である。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

T. Tanaka, Y. Miyamoto, I. Morino, T. Machida, T. Nagahama, Y. Sawa, H. Matsueda, D. Wunch, S. Kawakami, O. Uchino, Aircraft measurements of carbon dioxide and methane for the calibration of ground-based highresolution Fourier Transform Spectrometers and a comparison to GOSAT data measured over Tsukuba and Moshiri, Atmospheric Measurement Techniques, 査読有, 5, pp.2003-2012, doi:10.5194/amt-5-2003-2012, 2012.

[学会発表] (計 7 件)

Nagahama, T., Mizuno, A., Matsumi, Y., Site report on Moshiri and Rikubetsu, NDACC-IRWG/TCCON meeting 2013, 2013 年 06 月 10 日、網走湖荘(北海道網走市)。草苺 聡、長濱 智生、荻野 竜樹、光スペクトラムアナライザを使った大気中の二酸化炭素測定法の高精度化、日本地球惑星科学連合 2012 年大会、2012 年 05 月 22 日、幕張メッセ国際会議場 (千葉県)。I. Murata, H. Nakajima, I. Morino, The vertical profiles of CH<sub>4</sub> observed at Tsukuba with a Fourier transform spectrometer, The 2011 NDACC Symposium, 2011 年 11 月 8 日、Reunion Island (France)。

村田 功、中島 英彰、森野 勇、つくばにおけるフーリエ変換型分光計を用いたメタン高度分布観測、第 17 回大気化学討論会、2011 年 10 月 18 日、京都大学化学研究所 (京都府)。

草苺 聡、長濱 智生、荻野 龍樹、光スペクトラムアナライザを使った大気中の CO<sub>2</sub> の高精度測定法の開発・実用化、2011 年 10 月 18 日、京都大学化学研究所 (京都府)。

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

出願状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

[http://skx1.stelab.nagoya-u.ac.jp/research\\_GHGs.html](http://skx1.stelab.nagoya-u.ac.jp/research_GHGs.html)

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

長濱 智生 (NAGAHAMA, Tomoo)  
名古屋大学・太陽地球環境研究所・准教授  
研究者番号：70377779

(2)研究分担者

水野 亮 (MIZUNO, Akira)  
名古屋大学・太陽地球環境研究所・教授  
研究者番号：80212231

(3)連携研究者

前澤 裕之 (MAEZAWA, Hiroyuki)  
大阪府立大学理学系研究科・准教授  
研究者番号：00377780

村田 功 (MURATA, Isao)  
東北大学大学院環境科学研究科・准教授  
研究者番号：00291245

(4)研究協力者

棚田 遼 (TANADA, Ryo)  
名古屋大学大学院理学研究科・大学院生  
(平成23年度)

八嶋 信平 (YASHIMA, Shimpei)  
名古屋大学大学院理学研究科・大学院生  
(平成23年度)

草苅 聡 (KUSAKARI, Satoshi)  
名古屋大学大学院工学研究科・大学院生  
(平成23-24年度)

藤森 隆彰 (FUJIMORI, Takaaki)  
名古屋大学全学技術センター・技術職員  
(平成25年度)

伊吹 紀男 (IBUKI, Norio)  
京都教育大学・名誉教授  
(平成25年度)