

レーザーによる大気中の気体濃度分布遠隔計測

Laser Remote Sensing of Gas Concentration Distribution in the Atmosphere

阿保 真

東京都立大学 システムデザイン研究科

論文要旨

地球温暖化や大気汚染といった大気環境問題が世界的に注目されている。また、地球温暖化が進むにつれて局地的大雨などの気象災害の発生頻度が増加しているが、このような大気現象には大気中の水蒸気濃度が大きく関わっている。本稿ではレーザーにより大気中の気体濃度分布を遠隔から視線方向に距離分解して高精度に計測できる、差分吸収ライダーの原理を説明するとともに、我々が開発した差分吸収ライダーによる実際の二酸化炭素と水蒸気の連続観測例を紹介する。

Atmospheric environmental problems such as global warming and air pollution are attracting worldwide attention. Furthermore, atmospheric water vapor plays a major role in meteorological disasters such as localized heavy rainfall. This paper explains the principle of the differential absorption lidar, which can remotely measure the distribution of gas concentration in the line-of-sight direction using lasers, and introduces examples of continuous observations of CO₂ and water vapor.

キーワード：地球温暖化、差分吸収ライダー、吸収分光法

1. はじめに

地球温暖化や大気汚染といった大気環境問題が世界的な枠組みで取り上げられている。大気中に放出された化合物のうち、二酸化硫黄など直接人体に有毒なものは局地的な大気汚染として問題となるが、それらの多くは反応性が高く比較的短時間に大気から除去される。一方人体に直接有害ではなくても、大気からの除去過程がないフロンガスや、大気の除去過程の容量を上回って放出される二酸化炭素などの大気中濃度は、グローバルに増加する。また、地球温暖化が進むにつれて局地的大雨などの気象災害の発生頻度が増加しているが、このような大気現象には大気中の水蒸気濃度が大きく関わっている。短期的な気象予測や長期的な気候予測のためには、スーパーコンピュータを用いた数値予測モデルが活用されているが、これらの計算精度や分解能が上がっても、実際の測定データがなければ正しい予測は不可能である。

地球温暖化、大気汚染、気象現象の予測には各気体成分の時空間分布測定が不可欠であるが、地球大気が対流し循環するという性質上、気象衛星などによる面的な測定では高度方向の情報が不十分である。我々はレーザーを用いた大気中の各種気体濃度の遠隔分布計測装置の開発と観測を行っており、その一端を紹介する。

2. 大気中の気体

主な大気現象は高度約8~15km以下の対流圏と呼ばれる領域で起こる。その上の高度50km付近までは成層圏と呼ばれ、オゾン層が存在し、太陽からの有害な紫外線を吸収し生物を守っている。地球大気は多くの気体分子の混合ガスである。窒素と酸素の大気化学反応はあまり活発では無く、その比率が他の気体に比べて圧倒的に大きいので、その混合比は場所や時間に寄らずほぼ一定である。希ガスと呼ばれる成分は他の原子とほとんど反応しないため、同様にその混合比は場所や時間によらずほぼ一定である。それに対して最も混合比の変動が大きいのは水蒸気である。水蒸気は地球大気が存在する気温や気圧条件下で他の分子がほとん

ど気体の状態であるのに対して、固体（氷）、液体（水）、気体（水蒸気）の三相の間を相転移する。この変化が実際の大気現象には大きな影響を与えている。

水蒸気を除く主要成分の窒素、酸素、アルゴンを乾燥大気と呼び、それ以外の気体のことを微量気体と呼ぶ。温室効果ガスのうち二酸化炭素、メタン、一酸化二窒素は大気中での反応性が低く寿命が長いため、主に発生源や消失先の空間的分布や輸送と拡散の影響を受ける。オゾンは大気化学反応も起こすため、大気中で生成・消滅反応を繰り返すと同時に、大気運動による輸送の影響も受けるため、日々や季節変動が大きい。微量気体は混合比こそ小さいが、二酸化炭素などの温室効果ガスは赤外線を良く吸収するため気候変動へ寄与し、水蒸気は大気現象に大きく関わる。さらに空間分布や時間変動もあるため、その実態を正確に計測することが、地球全体の動態を把握するうえで重要である。

3. 気体濃度の遠隔計測手法

微量気体の濃度を遠隔測定する手法としては光吸収を利用した計測法が広く用いられている。気体にはその分子特有の分子振動・回転吸収スペクトルが主に赤外域にあり、この波長の光の吸収を測定することにより、気体濃度の計測が可能である。この方式は吸収分光法と呼ばれ、近年はほとんどがレーザーを光源としているためレーザー吸収分光法（LAS：Laser absorption spectroscopy）と呼ばれている¹⁾。

光の透過率 T と気体濃度 N の間にはランベルト・ベールの法則が成り立ち、次式で表せる。

$$T = I/I_0 = \exp(-\sigma NL) \quad (1)$$

ここで、 I_0 、 I はそれぞれ入射光、透過光強度、 σ は吸収断面積、 L は光の透過する気体層の長さである。光による気体濃度の計測は、ある長さ区間における透過率を測定することにより可能となる。

レーザーを利用した能動的吸収分光法に、連続的に分布しているエアロゾルなどの弱い散乱光を利用した差分吸収ライダー（DIAL: Differential absorption lidar）がある。DIAL は散乱信号が得られる区間の連続的な気体濃度分布を得ることができ、測定方向に制約が少ないので、鉛直測定やスキャン観測に適している。

気体濃度を測定する DIAL 以外のライダーとして、気体分子固有の波長シフトをもたらす振動ラマン散乱を利用したラマンライダーがある²⁾。ラマンライダーは分子の吸収線を利用する DIAL に比べると、レーザーの絶対波長やその線幅、安定性への要求が低いことから利用しやすいシステムであるが、ラマン散乱強度が弱いことから装置が大型になる。

4. 差分吸収ライダー（DIAL）

DIAL は吸収分光法をライダーに適用し距離分解能をもたせた気体濃度の遠隔測定手法である。エアロゾルや大気分子による散乱と、レーザー光が散乱される場所までを往復する間に受ける測定対象分子の吸収を利用し、測定対象の吸収の強い on 波長 (λ_{on}) と吸収の弱い off 波長 (λ_{off}) のレーザー光を交互に照射する。図 1 に DIAL の原理図と模式的な on 波長と off 波長の信号を示す。On 波長の受信信号は off 波長の受信信号に比べ減衰が大きく、この 2 波長の信号の違いを解析することによって測定対象分子の濃度分布が求められる。ラマンライダーに比べて散乱強度が強いため小型の装置での運用が可能である。

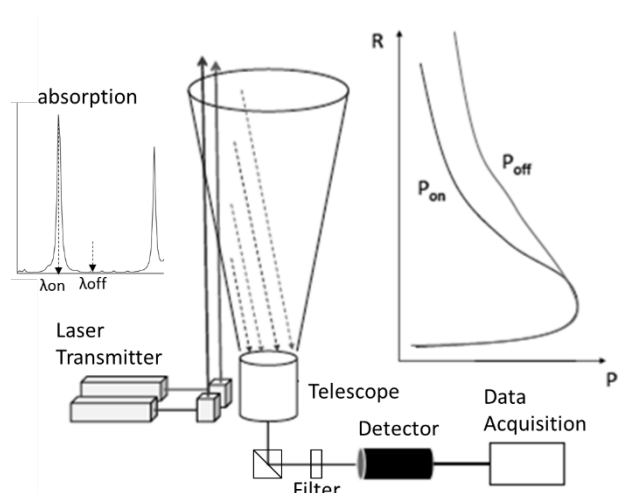


図 1 差分吸収ライダー(DIAL)の原理図

On 波長と off 波長に対する距離 R からの受信信号強度は次の式で表せる³⁾。

$$P_{\text{on/off}}(R) = C_{\text{on/off}} \frac{\beta_{\text{on/off}}(R)}{R^2} \exp \left[-2 \int_0^R \{n(r)\sigma_{\text{on/off}}(r) + \alpha_{\text{on/off}}(r)\} dr \right] \quad (2)$$

ここで、添字 **on** と **off** はそれぞれ on 波長と off 波長に対する量を表し、 P は受信エネルギー、 C は装置定数、 β は後方散乱係数、 n は測定気体の分子数密度、 σ は吸収断面積、 α は大気の消散係数である。

P_{on} と P_{off} の比の対数をとって r で微分し $n(r)$ について解くと、次式が得られる。

$$n(r) = -\frac{1}{2\Delta\sigma(r)} \frac{d}{dr} \ln \frac{P_{\text{on}}(r)}{P_{\text{off}}(r)} + \frac{1}{2\Delta\sigma(r)} \frac{d}{dr} \ln \frac{\beta_{\text{on}}(r)}{\beta_{\text{off}}(r)} - \frac{\Delta\alpha(r)}{\Delta\sigma(r)} \quad (3)$$

ここで各パラメータの Δ は on 波長と off 波長の差を表している。第 2 項と第 3 項はそれぞれ後方散乱係数/消散係数に起因する補正項と呼ぶが、これらが無視できる場合、微分を単純な差分に置き換えることにより任意の 2 点間の平均気体濃度が測定できる。また (3) 式は、装置定数 C を含んでいないため、on 波長と off 波長の吸収断面積 σ が既知であれば、校正をすることなく気体密度の絶対値測定が可能になる。

気体分子の吸収断面積 σ は Voigt プロファイルと呼ばれる関数を用い、吸収線パラメータと気温、気圧を与えることにより求めることができる。主な大気中の気体 (H_2O , CO_2 , O_3 , N_2O , CO , CH_4 , O_2 , NO , SO_2 , NO_2 , NH_3 , HNO_3 , OH など) の吸収線パラメータは HITRAN と呼ばれるデータベースが整備されている。図 2 に HITRAN のデータを用いた水蒸気の吸収断面積の計算例を示す。

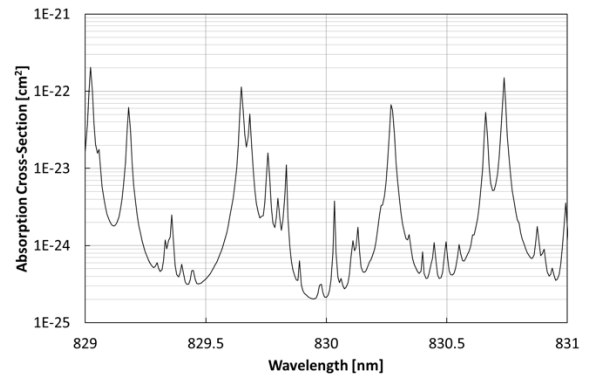


図 2 水蒸気の吸収スペクトルの例

5. DIAL に用いるレーザ装置

レーザは DIAL の心臓部である。DIAL では測定対象の吸収波長に正確に一致した波長のパルスレーザ光が必要であり、このため主に波長可変レーザが用いられる。紫外から可視域の波長可変レーザとしては色素レーザが古くから用いられているが、色素をアルコールなどの溶媒に溶かして使用し色素に寿命があるため、色素の交換などのメンテナンスに手間がかかるのが難点である。色素レーザに代わり、各種波長可変固体レーザが開発され、Nd:YAG レーザ励起 Ti:sapphire レーザやアレキサンドライトレーザが DIAL に用いられているが、色素レーザほどカバーする波長域は広くないため、測定対象が水蒸気などに限られている。

一方、二酸化炭素測定に適した $1.6 \mu\text{m}$ 付近の赤外波長については実用的な波長可変レーザがなかったため、我々は周期分極反転擬似位相整合デバイス (PP-QPM: Periodically Poled Quasi-Phase-Matching) と呼ばれる結晶を用いた光パラメトリック光発生器 (OPG: Optical Parametric Generator) を開発した。DIAL では on 波長と off 波長を切り替えながら観測する必要があるが、1 台のパルスレーザにシーダ光と呼ばれる低いパワーの連続光を注入するインジェクションシーディング技術を用いて高速波長切替を実現している⁴⁾。OPG は OPO (Optical Parametric Oscillator) と異なり共振器を持たない方式のため、波長切替毎の共振器制御が不要である。シーダ光は参照ガスセルを用いて高安定に波長が制御されている。

赤外域では OPG 又は OPO などのパラメトリック発振を利用した光源が多く用いられているが、それ以外の光源として、扱いやすい半導体レーザや光ファイバレーザや増幅器も用いられている。これらは 1 パルスのエネルギーは大きくないが、高繰り返しのパルス出力が可能である。

6. 実際の DIAL による観測例

6.1 二酸化炭素 (CO₂)

高い空間および時間分解能で下層大気中の CO₂ 濃度分布を測定することにより、森林、耕作地や都市域など、ローカルな領域での CO₂ フラックスを詳細に分析することが可能となる。下層大気中の二酸化炭素濃度鉛直分布を高精度に測定する小型 DIAL で測定した東京都立大学・日野キャンパス（東京都日野市）上空の CO₂ 濃度鉛直分布の連続観測例を図 3 に示す。高度分解能 300m、時間分解能 1 時間である。夜間には CO₂ の増加、昼間には CO₂ の減少が高度 2km まで観測された。

今まで測定手段が無かった大気境界層内の CO₂ 濃度の鉛直分布の時間変化が、DIAL により初めて高精度で測定できるようになった。近くに特別な発生源のない屋外環境の CO₂ 濃度の変動幅は約 400ppm に対して 10% 程度であるため、求められる測定精度は 1% 以下であるが、これを十分実現している。現在観測結果と大気モデルシミュレーションを組合せた CO₂ 増減のソース（発生源）の推定を行っている。

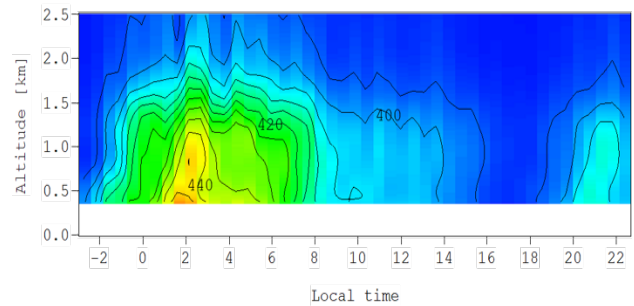


図 3 DIAL による CO₂ 濃度の連続観測例

6.2 水蒸気

気候変動の影響により、日本では線状降水帯による豪雨の発生や台風の大型化による自然災害の頻発化や激甚化が防災面から大きな社会問題となっている。これらの災害は事前の予測精度を上げることにより減災が可能であるが、これらの現象予測には、特に下部対流圏の水蒸気分布情報が重要であることが指摘されている。

DIAL による水蒸気の測定は古くから行われているが、研究ベースの装置が主で気象業務での利用は実現されていない。図 4 に我々が開発した小型 DIAL による水蒸気濃度の連続観測例を示す。この装置はレーザパルスエネルギーは 7 μ J と小さいながらも、10kHz という高繰り返し半導体テーパーアンプを用いており、線状降水帯発生域への設置や船舶搭載などの実用化を目指している⁵⁾。

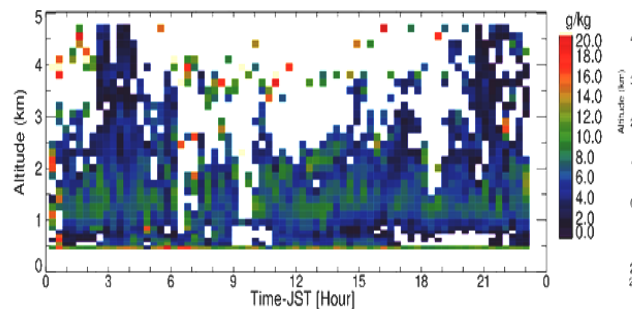


図 4 DIAL による水蒸気濃度の連続観測例

7. まとめと今後の展望

大気中の気体濃度分布を遠隔から視線方向に距離分解して高精度に計測できる、DIAL の原理と測定事例について述べた。DIAL による気体観測は従来大学や研究所で行われるキャンペーン観測が主で、長期間行われた観測は成層圏オゾン観測のみであった。近年水蒸気観測については小型化、自動化が図られ実用的な装置の開発が進められており、気象観測用に多数の DIAL が設置されるのもそう遠くない。また、火山ガスのモニターやインフラの監視などへの応用も進んでおり、今後のさらなる発展が期待できる。

参考文献

- 1) Jinyi Li et al.: Remote Sens. 12 (2020) 2771.
- 2) U. Panne: Trends Analyt. Chem. 17 (1998) 491.
- 3) 中里真久他: 気象研究ノート 299 (2014) 133.
- 4) Y. Shibata, et al.: Appl. Opt. 56 (2017) 1194.
- 5) Phong Pham Le Hoai, M. Abo and T. Sakai: EPJ Web Conf. 119 (2016) 05011.