

二酸化炭素濃度の移動測定およびその解析について About Mobile Measurement of CO₂ Concentration and its Analysis

向井 厚志・大原 荘司・藤原 昇
Atsushi Mukai, Soji Ohara, Noboru Fujiwara

1. はじめに

化石燃料の使用に伴い人為的に放出される二酸化炭素量は、2013年で36ギガトンと推定されている（[1] CDIAC, 2014）。その内の約50%が大気中に残留し、20世紀以降の2 ppm/yearにも達する急激な二酸化炭素濃度（以下、CO₂濃度）の上昇を引き起こしていると考えられている。残り50%の二酸化炭素（以下、CO₂）は海洋や陸上の生物圏に吸収され、大気中から除去される。現在、海洋には大気よりもやや多い900Pgもの炭素が蓄えられており、海洋は放出されたCO₂の約25%を吸収する重要な吸収源である。残り約25%のCO₂の吸収源は陸域であり、その大部分が北半球の中高緯度における陸域生態系で吸収されている。陸域には気候や土地利用状況によって様々な土壤環境が存在することから、局地性の大きな陸域におけるCO₂収支を解明することが重要な課題となっている。陸域におけるCO₂の吸収状況を調べるため、森林域においては観測タワーの上端でCO₂濃度変化や局地風を測定したり、土壌中の有機物の分解や植生の根呼吸による土壌炭素フラックスを測定したりする炭素フロー観測が実施されている（[2] 及川・山本編, 2013）。一方、市街地においては工場や交通網、住宅街での社会活動のため、森林域と比べてCO₂濃度は大きく変動することが予想される。

奈良産業大学（現・奈良学園大学）ではCO₂濃度測定装置（Vaisala社製CO₂プローブGMP343）を導入し、2010年2月以降、奈良県北西部に位置する生駒山系南東側の大学構内においてCO₂濃度変化の連続観測を実施してきた（[3] 藤原・大原, 2011）。本学は工場を含む市街地が広がる王寺町と生駒山の境界線に位置することから、市街地と森林の効果が混在する地域におけるCO₂の動態の解明に取り組んできた。その観測成果として、[4] 大原・藤原（2012）は、気象要素である湿度、風速、日射量とCO₂濃度変化とが高い相関を示すことを報告している。風速とCO₂濃度変化との相関に関しては、[5] 向井他（2012）が東風によって夜間のCO₂濃度の上昇が抑えられていることを明らかにした。その原因として、[6] 向井他（2013）は、生駒山系に阻まれたCO₂濃度の低い上層大気が地表へ流れ込んだ結果であると推察した。

以上のように、我々は市街地近傍において定点観測は実施してきた。本研究では、定点観測では得られない地域的なCO₂濃度の空間分布を調べることを目的として、三郷町を中心とした生駒山を挟む王寺町から柏原市までの地域において移動観測を試験的に実施した。移動観測では、工場や交通網などのCO₂放出源に近づくことによって局所的に大きなCO₂濃度の変化が観測されることが予想される。本研究では、CO₂濃度測定装置の応答特性を考慮した移動観測の解析方法を確立するとともに、移動観測および解析上の問題点を検討した。

2. CO₂濃度測定装置の応答特性

本研究で使用したCO₂濃度測定装置（Vaisala社製CO₂プローブGMP343）はオープンパス型の赤外分析計であり、CO₂が赤外線領域に吸収帯をもつことを利用して、赤外線強度の測定からCO₂濃度を決定する。オープンパス型の分析計は約10cmの赤外線経路が大気中に開放されているため、比較的高い応答速度でCO₂濃度を測定することが可能である。ただし、本研究で使用した測定装置は赤外線経路をフィルタで覆っており、その効果によって急激なCO₂濃度変化が抑えられている。

CO₂濃度測定装置の応答特性を調べるため、ステップ状のCO₂濃度変化を与えて10秒間隔で連続測定を実施した。図1の○印は、その際に得られたCO₂濃度測定値を示している。ステップ状のCO₂濃度変化は、CO₂放出源のある高CO₂濃度の部屋と外気に開放された低CO₂濃度の部屋を用意し、これらCO₂濃度が異なる2部屋の間を移動することによって与えることとした。いずれの部屋も約50m²の広い部屋であり、急激なCO₂濃度変化が生じにくくなっている。また、1回の測定は10分間程度と短時間であったことから、2部屋のCO₂濃度の差に対して、各部屋におけるCO₂濃度の時間的変化は無視できるほど小さいと考えられる。

ステップ状のCO₂濃度変化が生じた直後、CO₂濃度測定装置はほとんど応答せず、緩やかな立ち上がりが記録された。その後、経過時間1～3分の間にS字カーブを描きながらCO₂濃度の急激な変化が測定され、その環境におけるCO₂濃度へと収束していった。低CO₂濃度への変化に伴う計6回の測定（図1(a)～(f)）、およびその逆の変化に伴う計4回の測定（図1(g)～(j)）のいずれにおいても、ステップ状のCO₂濃度変化が生じてから5分後には約9割のCO₂濃度変化が完了している。

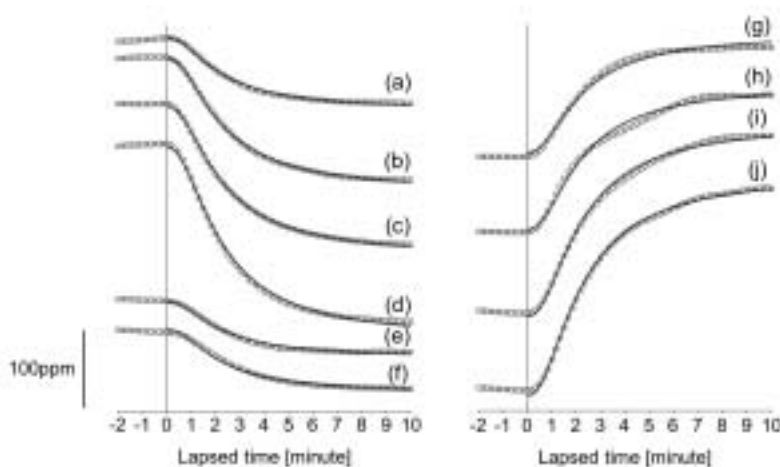


図1 CO₂濃度測定装置の応答特性

ステップ状のCO₂濃度変化を与えたときにCO₂濃度測定装置で得られた測定値（○印）およびそれに当てはめた応答関数（実線）。横軸の経過時間は、ステップ状の変化が生じた時点を中心とする。 (a)～(f) は低CO₂濃度環境下への移動時の記録、(g)～(j) はその逆の環境下への移動時の記録である。各測定値のグラフは縦軸方向にずらして描いている。

図1にみられるようなステップ状のCO₂濃度変化に対する応答を表す関数として、次式が考えられる。

$$f(t) = a^{(t+b)^{-c}} \quad (1)$$

ここで、 t はステップ状のCO₂濃度変化が生じてからの経過時間であり、 a 、 b および c は係数を表す。(1)式で表される応答関数は、係数 c が正值のとき、時間経過とともに1に収束する。

図2は、この応答関数の係数依存性を示している。係数aは収束の速さを表すパラメータであり、その値が大きいかほど、応答関数は短時間で1に収束する。係数cは収束の変化率を制御しており、その値が大きいかほど、初期段階の立ち上がりが緩やかとなり、その後、急速に収束していくグラフが得られる。係数bは、グラフを時間軸方向に移動させる効果がある。

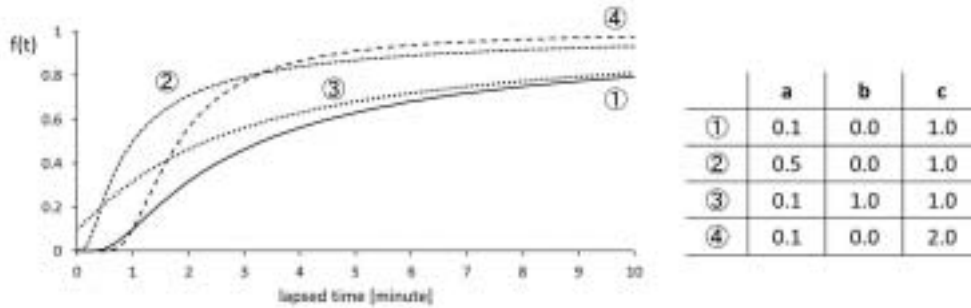


図2 応答関数の係数依存性

図右の表で示した係数a、bおよびcの組み合わせを用いて描かれた応答関数(1)式のグラフを示す。

CO₂濃度測定装置の応答特性を表す最適な応答関数は、係数a、bおよびcの値を0.0001間隔で変化させながら、次式を最小とする係数の組み合わせを調べることによって決定した。

$$\sum_{k=1}^{10} \sum_{n=0}^{60} \{A_k f(n \Delta t, a, b, c) + B_k - d_k(n \Delta t)\}^2 \tag{2}$$

ここで、dは図1の○印で示したCO₂濃度測定値、fは(1)式で表された応答関数である。AおよびBは、最小二乗的に応答関数を測定値に当てはめたときに得られる係数を表す。Δtは測定間隔の10秒であり、nΔtは経過時間を示す。本計算では、ステップ状のCO₂濃度変化が生じてから10分間の測定値を用いたことから、nの最大値は60となる。添え字kは、図1(a)~(j)で示した計10種類の測定値を表している。当てはめ係数AおよびBの値は測定値ごとに決定したが、応答関数の係数a、bおよびcは全測定値で共通する値として求められた。

上記の計算の結果、係数a、bおよびcの最適値は0.0009、1.9571および1.0219と推定された。このとき、当てはめ誤差の標準偏差は2.8ppmであった。これら最適な係数を用いた応答関数のグラフを図3(a)に示す。この応答関数は収束値の90%に達するのに約7分半の時間を要する。図3(b)には、10秒間の応答関数の変化量が描かれている。ステップ状のCO₂濃度変化が生じてから、1~2分後に最も大きな変化が記録されることになる。図1には、この応答関数を測定値に当てはめた結果が図示されており、測定値の大部分が説明できていることがわかる。

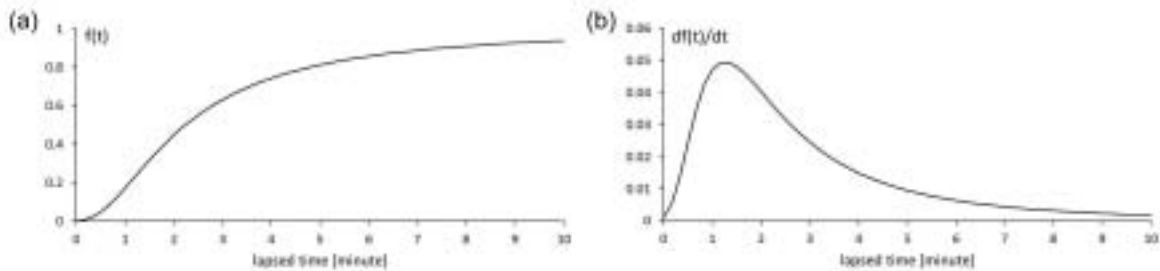


図3 最適な応答関数とその変化率

(a) 最適な係数a、bおよびcの値を用いた応答関数のグラフ。(b) その変化率として、10秒間の時間変化量を描いたグラフ。

3. 測定装置の応答特性を考慮したCO₂濃度変化の推定

CO₂濃度測定装置は図3(a)に示された応答特性を有するため、実際のCO₂濃度変化とは異なる時間的な変化が測定されることになる。測定装置の周辺でCO₂濃度変化D(t)が生じたときに得られる測定値d(t)は、次式を用いて計算することができる。

$$d(n\Delta t) = \sum_{k=0}^{\infty} F(k\Delta t)D((n-k)\Delta t) \quad (3)$$

ここで、F(t)は応答関数f(t)を用いて次式で表される。ただし、F(0)はf(0)とする。

$$F(k\Delta t) \equiv f(k\Delta t) - f((k-1)\Delta t) \quad (4)$$

図4は、矩形波、三角波、スパイク状のCO₂濃度変化に(3)式を当てはめて計算された模擬的な測定値を示している。この計算では、(3)式のkの最大値として1440を使用し、それ以降の項を無視した。図3(b)はF(t)のグラフを示しており、F(t)の値は経過時間が1~2分(k=6~12)の間で最大となり、それ以降、0へと減衰していく。F(t)の値はk>1440で 2×10^{-7} 弱であり、k=1441~∞の項の効果は全効果の高々0.015%にすぎない。

図4(a)および(b)は、それぞれ周期42.7分および21.3分の矩形波で表されるCO₂濃度変化を入力値として、測定装置からの出力をシミュレーションした結果である。また、図4(c)および(d)は、それぞれ周期42.7分および21.3分の三角波で表されるCO₂濃度変化を入力値として、測定装置からの出力をシミュレーションした結果である。図4(e)の入力値はスパイク状のCO₂濃度変化である。

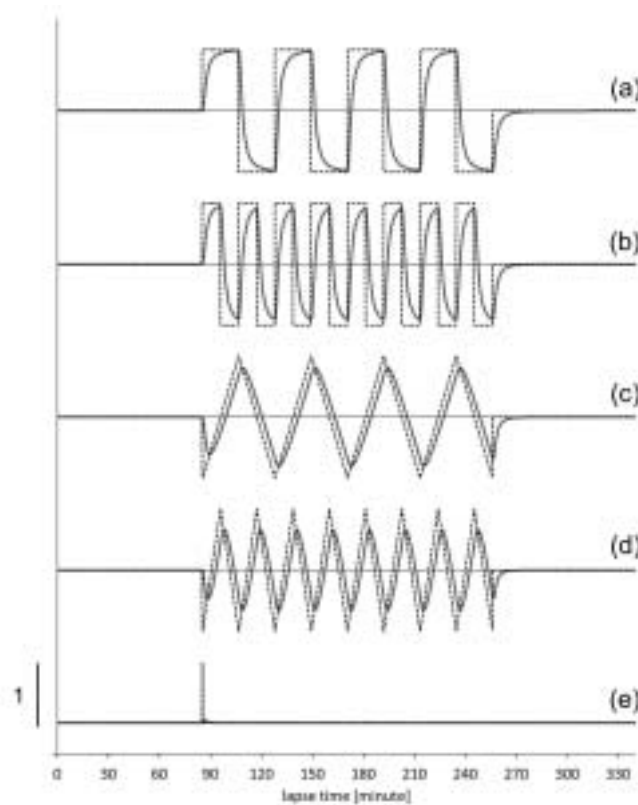


図4 CO₂濃度測定装置による測定シミュレーション

点線は、測定装置への入力値である(a)周期42.7分の矩形波、(b)周期21.3分の矩形波、(c)周期42.7分の三角波、(d)周期21.3分の三角波、および(e)スパイク状のCO₂濃度変化である。実線は、各入力値に対する測定値をシミュレーションした結果である。各波形は縦軸方向にずらして表示している。

図4にみられるように、入力であるCO₂濃度変化に対して、出力の測定値はローパス・フィルタに通した後のような滑らかな波形となる。ただし、矩形波の場合に顕著なように、ローパス・フィルタとは異なり、時間経過に対して非対称な波形が現れる。三角波の場合、入力と出力の波形でピーク位置にずれが生じ、出力波形は入力波形に対して約2分の位相の遅れが認められる。この位相の遅れは入力波形の周期が短いほど、小さくなる傾向がみられる。同様な位相の遅れはスパイク波の場合にも現れ、約1分の位相の遅れが生じている。

実際のCO₂濃度変化D(t) およびその測定値d(t) は、フーリエ展開することによって次式のように様々な周波数成分の重ね合せとして表すことができる。

$$D(n \Delta t) = \sum_{j=0}^{N/2} \{ A_c(j) \cos(2 \pi j n / N) + A_s(j) \sin(2 \pi j n / N) \} \quad (5)$$

$$d(n \Delta t) = \sum_{j=0}^{N/2} \{ a_c(j) \cos(2 \pi j n / N) + a_s(j) \sin(2 \pi j n / N) \} \quad (6)$$

ここで、Nは時系列のデータ数、jは各周波数成分に対応する番号であり、周期はNΔt/jで表される。A_c、A_s、a_cおよびa_sはフーリエ係数を表す。

これら(5)式および(6)式を(3)式に当てはめたとき、実際のCO₂濃度変化D(t)のフーリエ係数A_cおよびA_sは、測定値のフーリエ係数a_cおよびa_sを用いて次式で表すことができる。

$$A_c(j) = \{ \alpha(j) a_c(j) + \beta(j) a_s(j) \} / \{ \alpha^2(j) + \beta^2(j) \} \quad (7)$$

$$A_s(j) = \{ \alpha(j) a_s(j) - \beta(j) a_c(j) \} / \{ \alpha^2(j) + \beta^2(j) \} \quad (8)$$

ここで、αおよびβは次式で表される値である。

$$\alpha(j) = \sum_{k=0}^{\infty} F(k \Delta t) \cos(2 \pi j k / N) \quad (9)$$

$$\beta(j) = \sum_{k=0}^{\infty} F(k \Delta t) \sin(2 \pi j k / N) \quad (10)$$

(7)式および(8)式は、測定されたCO₂濃度変化をフーリエ展開し、そのフーリエ係数を(5)式に適用することによって実際のCO₂濃度変化を推定することができることを示している。

この推定方法の有効性を検証するため、図4に示されたCO₂濃度測定装置による測定値の模擬データを用いて、オリジナルである元のCO₂濃度変化を推定した(図5)。その際、測定値のフーリエ展開にはFFTを用い、測定値のデータ数は8192(=2¹³)とした。そのうち、測定値の前部約1/4および尾部約1/4は、安定したフーリエ展開を得るために0を設定した。

図5にみられるように、推定されたCO₂濃度変化はオリジナルである元の時間的変化とほぼ一致しており、オリジナルのCO₂濃度変化の大部分を再現することができた。このことは、上記のCO₂濃度変化の推定方法が有効であることを示している。しかし、ステップやスパイクなど、短時間で大きく変化する箇所において、推定されたCO₂濃度変化にオリジナルには見られない短周期の振動成分が現れているのがわかる。その振動成分は測定間隔の4倍を周期とする振動であり、高周波成分を十分に再現できないフーリエ解析の限界に起因する。この誤差は、測定間隔を短くすることによって、意味のある長周期のCO₂濃度変化と分離することが容易となる。その際、測定値を内挿することによって、見かけ上の測定間隔を短くすることによっても同様な効果が得られると推察される。

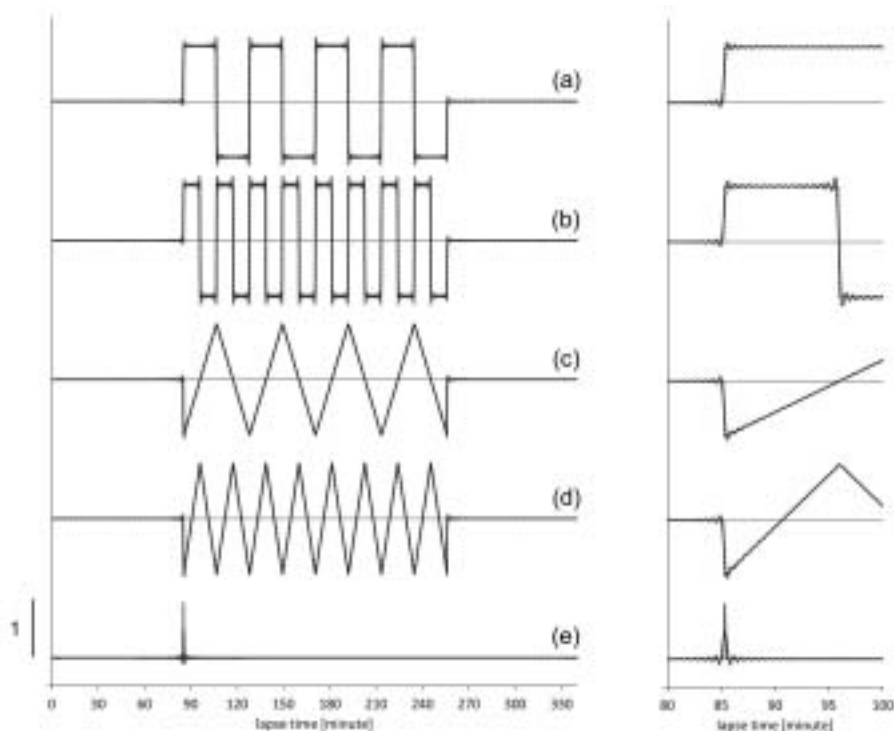


図5 オリジナルのCO₂濃度変化と推定値の比較

点線は図4に示したオリジナルのCO₂濃度変化であり、実線は図4の模擬的な測定値に第3節の推定方法を当てはめて再現したCO₂濃度変化を示す。(a)～(e)は、それぞれ図4の(a)～(e)に対応する。右図は左図の一部を拡大して示したものである。各波形は縦軸方向にずらして表示している。

4. 二酸化炭素濃度の空間分布の移動測定

CO₂濃度の空間分布を調べるため、CO₂濃度測定装置を乗用車のフロントガラス外側に設置し、三郷町・王寺町・柏原市においてCO₂濃度の移動測定を実施した。図6は移動経路を示しており、その東部の王寺町や西部の柏原市などの市街地から、中央に位置する生駒山の森林地域まで、様々な自然環境を含んでいる。

CO₂濃度の移動測定は2014年2月19日に実施し、10時40分に奈良産業大学1号館(図6の測定点01)を出発した後、まず王寺町役場(測定点06)との間を往復した。その後、再び奈良産業大学1号館を出発し、生駒山を越える環状の経路を反時計回りに移動した。図6の移動経路上に示された測定点01～15では、路肩や駐車場等で約5分間停車し、エンジンを切った静止状態でCO₂濃度の連続観測を実施した。測定点の座標および停車した時間帯を表1に示す。測定点の座標は移動測定時にGPSを用いて決定した。移動経路上で最も標高が低い測定点は柏原市役所(測定点13)、最も標高が高い測定点は生駒山中にある「のどか村」(測定点09)であり、最大の標高差は316mとなった。

図7は、移動測定によって得られたCO₂濃度変化の測定値を図示している。図中の測定点番号は、各測定点を出発した時刻を示している。測定値にはCO₂濃度の急激な上昇が繰り返し現れているが、その多くが測定点を出発した後に現れている。特に前半の13:00過ぎまでは交通量の多い市街地を移動したため、他の乗用車等の排気ガスによって高CO₂濃度の大气にさらされたことが起因したと考えられる。市街地の測定点では交通量の多い道路から外れた場所に停車したこと、停車時間帯に測定されたCO₂濃度は緩やかな時間的低下を示す場合が多い。

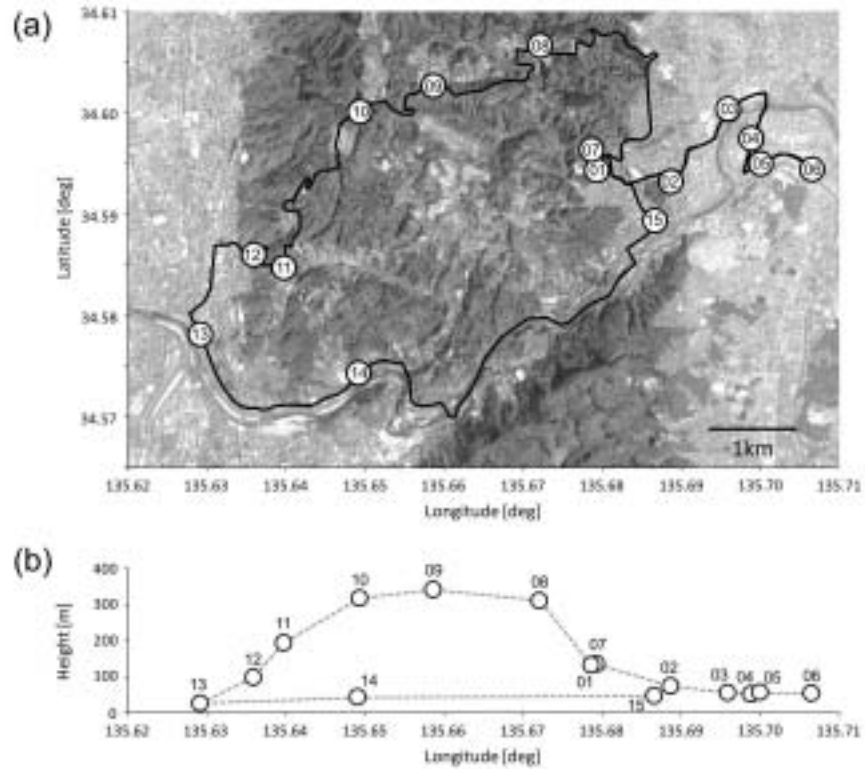


図6 CO₂濃度の移動測定

(a) 移動測定の経路。図中の○印は約5分間停車した測定点を示す。(b) 横軸を経度として測定点の標高を示す。

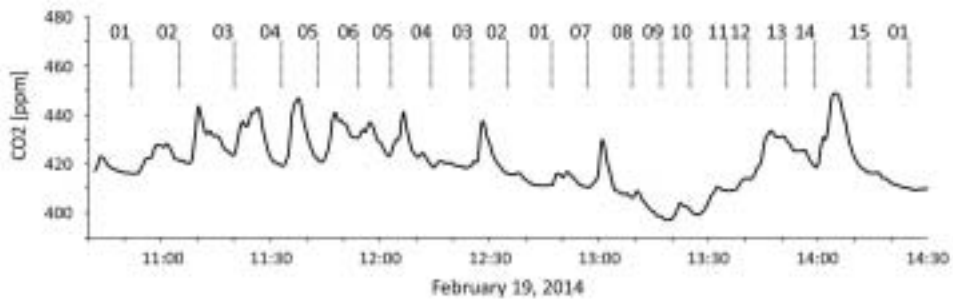


図7 移動測定によって得られたCO₂濃度変化

図中上端の01~15は図6の測定点番号を表しており、縦の点線で各測定点を出発した時刻を示す。

数10分以上の長周期のCO₂濃度変化には、市街地と森林地域との差異が明確に現れている。王寺町の測定点04~06および柏原市の測定点13は交通量の多い市街地に位置しており、高いCO₂濃度を示す一方、森林に囲まれた生駒山中の測定点08~10は、すれ違う乗用車もほとんどなく、市街地よりも10ppm以上低いCO₂濃度となっている。

測定されたCO₂濃度変化には、地域的なCO₂濃度の差異とともに時間的な変化成分が含まれている。移動測定と並行して、奈良産業大学1号館ではCO₂濃度変化の定点観測が続けられている。移動測定が実施された時間帯には、この定点観測点で高々5ppmのCO₂濃度変化が現れたにすぎず、時間的な変化は小さかった。CO₂濃度の時間変動にも地域的な差異が存在することも考慮して、本研究では同一測定点に存在するCO₂濃度の時間的な変化は無視することとした。

移動測定によって得られたCO₂濃度測定値に前節の解析手法を適用して、実際のCO₂濃度変化を推定した。図8

は推定されたCO₂濃度変化を示す。CO₂濃度の測定値と比べて、推定値は激しく変化するステップ状の時間的变化が現れている。測定値はCO₂濃度測定装置のフィルタ効果によって実際のCO₂濃度変化に対して緩やかに追従することから、推定値が測定値よりも激しく変化する時系列となることは想定される。こうしたステップ状の大きな変化は市街地に位置する測定点を離れた直後に見られ、道路上の排気ガス等によって引き起こされたものと推察される。一方、測定点を離れる直前には、変化の乏しいフラットな測定値が得られている場合が多く見られる。このことは、停車した静止状態において測定がなされたことを反映している。ただし、停車時間帯においても、約2分間の周期をもつ短周期の振動が認められる。この短周期振動は奈良産業大学における定点観測にも見られ、表層大気の擾乱に起因する可能性が考えられる。移動測定によるCO₂濃度の空間分布を調べる際の誤差源となることから、その原因および除去方法を検討する必要がある。

表1 測定点の座標およびそのCO₂濃度

表中のCO₂濃度は、測定値から実際のCO₂濃度変化を推定した後、測定時刻内の平均値を求めた結果である。括弧内の数値はその標準偏差を示す。

#	緯度 [°]	経度 [°]	標高 [m]	測定時刻	CO ₂ 濃度	
					測定値	推定値
01	34.5943	135.6793	134	10:47~10:52 12:41~12:46 14:20~14:25	413.1 (0.4)	411.6 (0.4)
02	34.5933	135.6887	071	11:02~11:06 12:30~12:35	422.5 (2.1)	417.9 (3.0)
03	34.6003	135.6959	049	11:15~11:19 12:20~12:25	424.0 (1.4)	420.7 (2.9)
04	34.5974	135.6988	043	11:28~11:33 12:09~12:14	422.9 (2.0)	417.9 (3.0)
05	34.5950	135.7000	057	11:38~11:43 11:57~12:02	430.2 (4.2)	419.9 (2.1)
06	34.5944	135.7065	053	11:49~11:54	433.4 (2.7)	430.8 (5.7)
07	34.5964	135.6786	131	12:52~12:56	413.5 (2.1)	409.7 (1.4)
08	34.6066	135.6721	310	13:04~13:08	408.0 (0.9)	406.2 (3.8)
09	34.6026	135.6586	341	13:12~13:17	401.0 (2.0)	396.4 (2.7)
10	34.6001	135.6494	317	13:22~13:25	401.8 (1.8)	402.3 (6.0)
11	34.5847	135.6397	193	13:32~13:35	408.9 (1.5)	410.7 (3.1)
12	34.5860	135.6359	097	13:38~13:41	411.8 (2.0)	415.0 (2.8)
13	34.5782	135.6292	025	13:47~13:51	431.7 (0.9)	430.3 (5.1)
14	34.5743	135.6491	042	13:56~13:59	423.5 (2.3)	419.0 (5.6)
15	34.5894	135.6867	046	14:09~14:14	419.7 (2.7)	414.2 (1.0)

表1には、各測定点のCO₂濃度測定値および推定値を停車時間内において平均した結果がまとめられている。多くの測定点において、測定値よりも推定値が低い値を示している。これは、CO₂濃度測定装置の応答特性に起因するものであり、交通量の多い道路上を移動する際にCO₂濃度測定装置が排気ガスにさらされ、その高いCO₂濃度の影響が測定値に残っているためである。逆にCO₂濃度の低い生駒山中から柏原市街地に下る際には、測定点10~12

でみられるように測定値が推定値よりも低い値を示した。これらのことから、測定装置の応答特性を考慮して測定値から実際のCO₂濃度を推定する必要があることが示唆される。

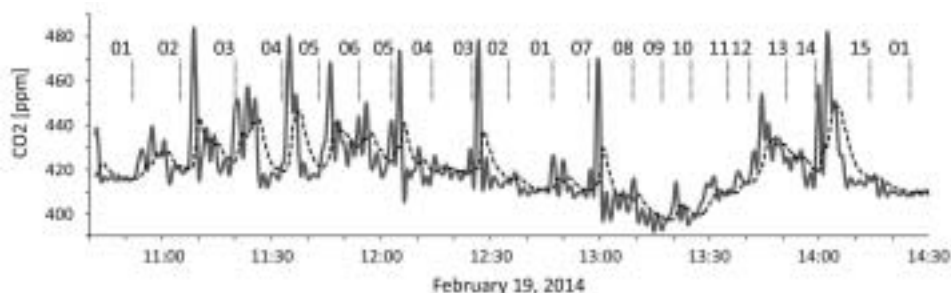


図8 推定されたCO₂濃度変化

実線は、CO₂濃度測定装置の応答特性に基づいて実際のCO₂濃度変化を推定した結果を示す。破線は図7に示した測定値であり、縦の点線で各測定点を出発した時刻を示す。

5. まとめ

CO₂濃度測定装置（Vaisala社製CO₂プローブGMP343）を用いてCO₂濃度の空間分布を測定するための前段階として、測定装置の応答特性を調べた。同測定装置はオープンパス型の赤外分析計であるが、赤外線経路がフィルタで覆われていることから、急激なCO₂濃度変化は測定することができない。測定装置にステップ状のCO₂濃度変化を与えることによって、数分程度の間にはS字カーブを描きながら一定の値に収束していく応答特性が得られた。この応答特性はべき関数で近似することができる。

こうした応答特性によって、測定装置で得られたCO₂濃度測定値は実際のCO₂濃度変化からずれた値となっている。そのため、1台の測定装置を用いて移動測定する際には、応答特性を考慮して測定値から実際のCO₂濃度を再現する必要がある。本研究では、測定値のフーリエ係数と応答関数を用いて、実際のCO₂濃度変化のフーリエ係数を推定する解析方法を採用した。矩形波や三角波、スパイクを入力信号として測定装置による測定値をシミュレーションし、それを用いて本研究の解析方法の有効性を検証したところ、大部分の入力信号を再現できることが示された。ただし、測定間隔に近い高周波成分を十分に表現できない離散データの問題のため、ステップ状に大きく変化する付近で、測定間隔の4倍の時間長を周期とする振動が誤差として生じることに注意する必要がある。

本研究では試験的な移動測定として、乗用車に測定装置を搭載し、三郷町・王寺町・柏原市におけるCO₂濃度の空間分布の測定を実施した。移動経路には交通量の多い市街地から生駒山山中の森林地帯まで含まれている。移動測定では適宜5分間程度駐車し、その場のCO₂濃度の測定を行なった。測定装置による測定値の段階では、駐車中においても緩やかなCO₂濃度の時間的変化が記録された場合が多くみられた。これは、交通量の多い道路上を移動する際に高CO₂濃度の大気にさらされた結果であり、測定装置の応答特性のために、道路から離れた場所に駐車しても数分程度の短時間では測定値がその場のCO₂濃度に収束しないことに起因する。こうした場合においても、本研究の解析方法を適用することによって、駐車中の時間的なトレンドが小さなCO₂濃度を推定することが可能となり、短時間の測定または移動しながらの測定で周辺環境のCO₂濃度を調べることが示された。ただし、推定されたCO₂濃度変化には2分程度の周期をもつ振動が現れており、これが自然現象としての大気擾乱に起因するものか、解析方法に起因する見かけの振動なのか詳しく調べる必要がある。

参考文献

- [1] CDIAC Carbon Dioxide Information Analysis Center (2014): 2013 Global Carbon Project, <http://cdiac.ornl.gov/GCP/carbonbudget/2013/>
- [2] 及川武久・山本晋編 (2013) : 陸域生態系の炭素動態、京都大学学術出版会、414pp.
- [3] 藤原昇・大原荘司 (2011) : 奈良周辺の二酸化炭素濃度、奈良産業大学地域公共学総合研究所年報、第1集、3-11.
- [4] 大原荘司・藤原昇 (2012) : 二酸化炭素濃度の時間変化、奈良産業大学地域公共学総合研究所年報、第2集、11-21.
- [5] 向井厚志・大原荘司・藤原昇 (2012) : 奈良産業大学構内で測定された二酸化炭素濃度変化の特徴、奈良産業大学紀要、28、141-150
- [6] 向井厚志・大原荘司・藤原昇 (2013) : 二酸化炭素濃度の日変化の風向および風速依存性、情報学フォーラム紀要 (奈良産業大学)、8、109-116