

# つくばにおけるオゾン濃度計更新時の新旧比較観測について

工藤 美華子\*・馬場 広年\*

## Comparative Observation for Replacing the Ozone Monitor at Tsukuba Station

Mikako KUDO and Hirotooshi BABA

### 要旨

高層気象台では1977年5月に地上オゾン濃度の観測を開始し、その後約6年間の休止があり、観測装置や観測場所の変更などを経て、1988年8月から現在の観測環境で観測を継続している。地上オゾン濃度観測に使用しているオゾン濃度計は、整備後15年を経過し観測データの不安定化が懸念されたため2006年4月にオゾン濃度計の更新を行った。更新に当たっては、気象庁が大気バックグラウンド汚染観測で使用しているものと同様の機能(オゾン濃度計内部にある測定セル内の温度と圧力を用いて標準状態(0℃, 1気圧)でのオゾン濃度を求める)を有したオゾン濃度計を導入した。オゾン濃度計の更新に伴い、2006年4月から2008年3月まで新旧オゾン濃度計の相互比較を行った結果、新オゾン濃度計の旧オゾン濃度計に対する特性差が明らかになった。この特性比較結果から、新旧両オゾン濃度計のデータの接続手法について検討を行い、補正機能がなかった旧オゾン濃度計の観測データを標準偏差1.2ppb(比較期間の平均濃度25.5ppbの約5%)で補正できる補正式を提案する。

### 1. はじめに

高層気象台では、オゾンの紫外線吸収特性を利用したオゾン濃度計 EG-2001F(荏原実業(株), 以下旧器という)を用い地上オゾン濃度の観測を1988年8月から継続している(上野・馬場:2006)。観測されたデータは、気象庁が運営するGAW(Global Atmosphere Watch)計画の温室効果ガス世界資料センター(WDCGG)を通じて世界に提

供されている。

2003年、気象庁はWMO/GAWの観測基準と合わせるため、GAWの基準器と同様の温度・圧力補正機能を有する較正装置を導入すると共に(観測部環境気象課:2004)、オゾン濃度計 EG-2001FTP(荏原実業(株), 以下新器という)を導入し、2005年1月から綾里で、2006年1月から南鳥島でこの新器による観測を行っている。新器は、測定オゾン濃度を標準状態(0℃, 1気圧)での濃度に補正する。

高層気象台の旧器は、導入してから15年以上が経過しており、老朽化に伴う観測値の不安定が懸念されていた。そのため、2006年4月に気象庁と同型のオゾン濃度計を導入し、新器の特性調査および新器・旧器で得られた地上オゾンデータの連続性を図るための調査を2006年から行った。本稿では、新たに導入したオゾン濃度計の特徴について紹介すると共に新旧濃度計の比較観測結果の概要について報告する。

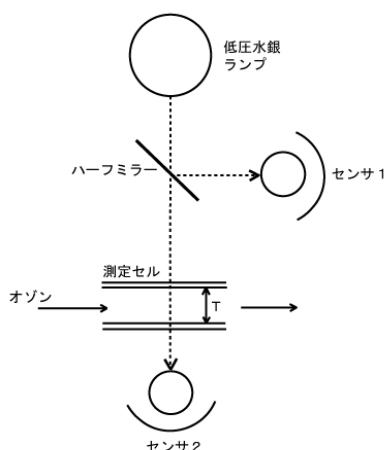


図1 測定原理図(荏原実業(株)(2001)より)

### 2. 新型オゾン濃度計について

新器と旧器の測定部分は同仕様である。新器は図1にある測定セル内の温度と圧力を測定し、その値を基に標準温度(0℃)、標準大気圧(1013.25hPa)時の濃度指示値に換算されその値を観測値として表示している。以下に温度圧力補正式を示す。

\* 高層気象台 観測第一課

$$C' = C \times \frac{273.15 + t}{273.15 + t_0} \times \frac{P_0}{P} \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 $C'$  : 温度圧力補正後の濃度指示値 [g/m<sup>3</sup>(N)]  
 $C$  : 温度  $t$ , 圧力  $P$  時の濃度指示値 [g/m<sup>3</sup>]  
 $t$  : 試料ガス温度 [°C]  
 $t_0$  : 標準温度 [0°C]  
 $P$  : 試料ガス圧力 [hPa]  
 $P_0$  : 標準大気圧 [1013.25hPa]

オゾン濃度計は 15 秒間隔でオゾン濃度を計測しており、その測定値は RS-232C ケーブルを介してデータ処理装置 (WindowsPC)に取り込まれ、日時を付加してディスプレイに表示されると共に、ローデータファイルとしてハードディスクに保存される。このローデータファイルは、測定値をリアルタイムに収録するファイルで、CSV 形式で作成される。

## 2.1 新旧オゾン濃度計の測定項目

図 2 はデータ処理装置の新器の表示画面である。15 秒間隔でオゾン濃度・セル圧力・セル温度・図 1 のセンサ 1 の光量(S1)及びセンサ 2 の光量(S2)の値が表示されている。旧器の表示画面に切り替えるとオゾン濃度の測定値に加え、セル圧力・セル温度・光量(S1)・光量(S2)の測定値が図 2 のように表示される。旧器も光量(S1)・光量(S2)は測定しており、その測定値はオゾン濃度計本体で確認はできるが、オゾン濃度値以外は保存されない。

## 2.2 新旧オゾン濃度計の比較観測

### 2.2.1 新旧オゾン濃度計の並行運用

比較観測のため 2006 年 4 月から 2008 年 3 月まで並行運用を行った。運用情報と濃度計の基礎情報を表 1 に、並行運用期間中における新旧濃度計の接続を図 3 に示す。大気取入れ口は先端に虫除け用ネットをかぶせてあり、大気導入用テフロン管(内径 4mm:外径 6mm)は観測室壁面のパイプ(地上高 2m)を通して屋内に導かれている。屋外よりテフロン管で導かれた大気はフィルタエレメントでほこり等が取り除かれ、オゾン濃度計に送られる。今回の比較観測では、テフロン管の長さの違いから生じる誤差をできるだけ少なくするために、フィルタエレメントからオゾン濃度計に至るテフロン管をテフロン樹脂製の T 字継手で分配し、ほぼ同じ長さのテフロン管で新器と旧器に大気を送り込むように配置した。

| 《オゾン測定情報》     |            |          |             |    |                |       |         |         |      |
|---------------|------------|----------|-------------|----|----------------|-------|---------|---------|------|
| No.           | 日付         | 時刻       | ○3          | 状態 | セル圧力           | セル温度  | 光量(S1)  | 光量(S2)  |      |
|               |            |          | [ppb]       |    | [hPa]          | [℃]   |         |         |      |
| 03860         | 2008/02/13 | 16:04:45 | 35.810      | 00 | 952.817        | 23.31 | 279.115 | 249.243 |      |
| 03859         | 2008/02/13 | 16:04:30 | 35.850      | 00 | 953.176        | 23.30 | 279.112 | 249.238 |      |
| 03858         | 2008/02/13 | 16:04:15 | 35.780      | 00 | 952.997        | 23.29 | 279.108 | 249.235 |      |
| 03857         | 2008/02/13 | 16:04:00 | 35.750      | 00 | 952.982        | 23.28 | 279.101 | 249.227 |      |
| 03856         | 2008/02/13 | 16:03:45 | 35.680      | 00 | 952.772        | 23.26 | 279.095 | 249.222 |      |
| 03855         | 2008/02/13 | 16:03:30 | 35.420      | 00 | 952.937        | 23.32 | 279.089 | 249.217 |      |
| 03854         | 2008/02/13 | 16:03:15 | 35.410      | 00 | 953.131        | 23.29 | 279.086 | 249.214 |      |
| 03853         | 2008/02/13 | 16:03:00 | 35.720      | 00 | 952.967        | 23.31 | 279.082 | 249.209 |      |
| 03852         | 2008/02/13 | 16:02:45 | 35.790      | 00 | 952.997        | 23.25 | 279.078 | 249.206 |      |
| 03851         | 2008/02/13 | 16:02:30 | 35.200      | 00 | 953.011        | 23.26 | 279.072 | 249.203 |      |
| 03850         | 2008/02/13 | 16:02:15 | 34.540      | 00 | 953.041        | 23.23 | 279.066 | 249.195 |      |
| 03849         | 2008/02/13 | 16:02:00 | 34.510      | 00 | 953.026        | 23.21 | 279.060 | 249.190 |      |
| 03848         | 2008/02/13 | 16:01:45 | 34.410      | 00 | 953.041        | 23.23 | 279.056 | 249.187 |      |
| 03847         | 2008/02/13 | 16:01:30 | 34.190      | 00 | 952.922        | 23.23 | 279.052 | 249.184 |      |
| 03846         | 2008/02/13 | 16:01:15 | 34.210      | 00 | 952.817        | 23.22 | 279.049 | 249.182 |      |
| 03845         | 2008/02/13 | 16:01:00 | 34.290      | 00 | 952.907        | 23.23 | 279.049 | 249.179 |      |
| 03844         | 2008/02/13 | 16:00:45 | 34.320      | 00 | 952.892        | 23.21 | 279.051 | 249.181 |      |
| 03843         | 2008/02/13 | 16:00:30 | 34.420      | 00 | 952.937        | 23.24 | 279.047 | 249.175 |      |
| 03842         | 2008/02/13 | 16:00:15 | 34.180      | 00 | 952.967        | 23.22 | 279.046 | 249.173 |      |
| 03841         | 2008/02/13 | 16:00:00 | 33.670      | 00 | 953.116        | 23.21 | 279.052 | 249.178 |      |
| 03840         | 2008/02/13 | 15:59:45 | 33.810      | 00 | 953.236        | 23.26 | 279.043 | 249.170 |      |
| 03839         | 2008/02/13 | 15:59:30 | 34.040      | 00 | 952.907        | 23.26 | 279.038 | 249.166 |      |
| 03838         | 2008/02/13 | 15:59:15 | 33.700      | 15 | 953.026        | 23.22 | 279.032 | 249.161 |      |
| 03837         | 2008/02/13 | 15:59:00 | 33.700      | 00 | 953.026        | 23.22 | 279.032 | 249.161 |      |
| 03836         | 2008/02/13 | 15:58:45 | 33.360      | 00 | 952.892        | 23.19 | 279.030 | 249.158 |      |
| 03835         | 2008/02/13 | 15:58:30 | 32.930      | 00 | 952.997        | 23.23 | 279.027 | 249.156 |      |
| 03834         | 2008/02/13 | 15:58:15 | 32.320      | 00 | 952.817        | 23.21 | 279.020 | 249.150 |      |
| 03833         | 2008/02/13 | 15:58:00 | 32.260      | 00 | 952.982        | 23.24 | 279.016 | 249.146 |      |
| 03832         | 2008/02/13 | 15:57:45 | 32.220      | 00 | 953.221        | 23.24 | 279.010 | 249.138 |      |
| 03831         | 2008/02/13 | 15:57:30 | 32.070      | 00 | 953.071        | 23.25 | 279.006 | 249.134 |      |
| DATA          |            |          | C:\OzonData |    | 69.0 [GB] free | MO    | C:\MMO  |         | 69.0 |
| スタート Logmain2 |            |          |             |    |                |       |         |         |      |

図2 データ処理装置の表示画面

表 1 運用情報と濃度計の基礎情報

| 年     | 運用期間       |         | 濃度計番号      |
|-------|------------|---------|------------|
|       | 較正日        | 較正值のスパン |            |
| 2006年 | 4/13以前     | 旧器単独運用  | S/N:806349 |
|       | 4/14~10/28 | 新・旧並行運用 |            |
| 2007年 | 10/29~3/14 | 新器単独運用  |            |
|       | 3/15~11/7  | 新・旧並行運用 | S/N:543310 |
| 2008年 | 11/8~1/9   | 旧器単独運用  |            |
|       | 1/10~2/29  | 新・旧並行運用 |            |
| 年     | 較正日        | 較正值のスパン | オフセット      |
| 旧器    | 2005/10/17 | 1.053   | -1.2       |
|       | 2007/3/3   | 1.040   | -0.7       |
| 新器    | 2006/4/4   | 0.953   | -0.6       |
|       | 2007/12/19 | 0.953   | -0.6       |

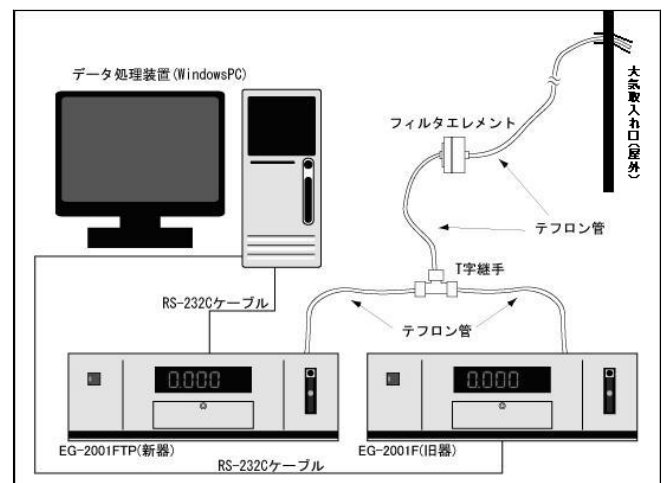


図3 比較観測における新旧測器の接続形態

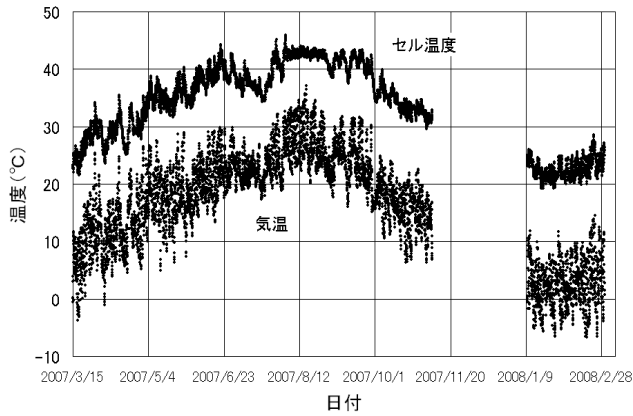


図4 比較期間中の気温とセル温度の時系列

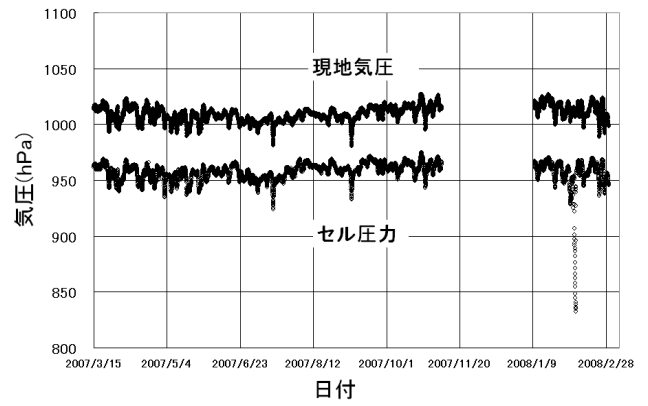


図6 現地気圧とセル圧力の時系列

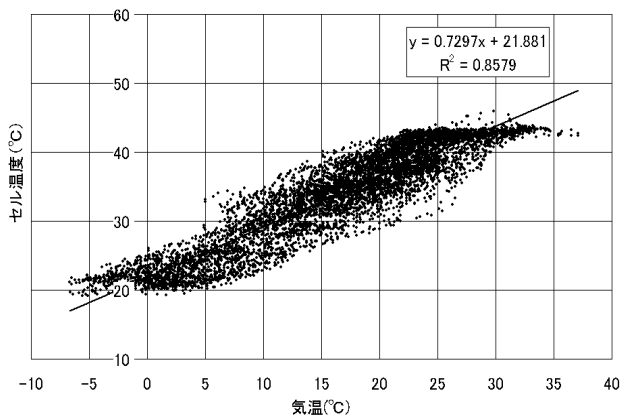


図5 気温とセル温度の関係

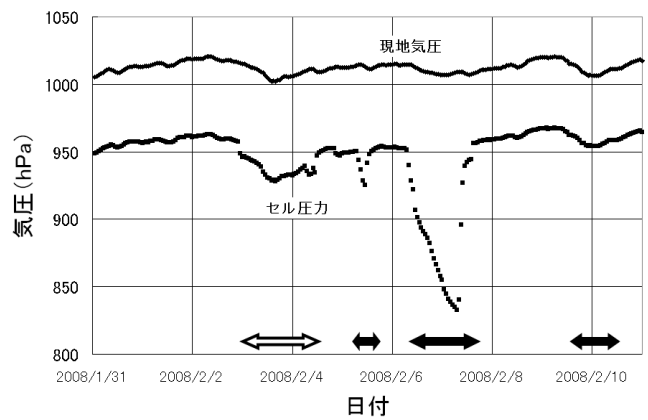


図7 現地気圧とセル圧力の時間拡大図  
(比較期間のうち2008年1月31日～2月11日の期間を示す)

### 2.2.2 オゾン濃度計のセル温度

比較期間中に得られたデータのうち、1時間平均値を用いてオゾン濃度計の特性について調査した。オゾン濃度計を設置している部屋は、エアコンで常に28℃に保たれている。図4は、比較観測中の高層気象台で観測している気温とセル温度の時系列を示す。セル温度は周囲の気温より約15℃高い温度となっている。これは、オゾン濃度計内部の部品からの熱によるものである。

また、図5は気温とセル温度との関係を示す。図5から、オゾン濃度計のセル温度はほぼ試料大気の温度に比例して高くなるが、下限、上限はそれぞれ20℃と45℃前後になっている。

### 2.2.3 オゾン濃度計のセル圧力

図6は、比較期間の現地気圧とセル圧力の時系列を示している。セル圧力は現地気圧(周囲大気)の変化に対応して変動しており、現地気圧より約50hPa低くなっている。これは、オゾン濃度計内部のポンプで大気を吸引していることが起因する。注目すべきは、2月初旬に見られた約

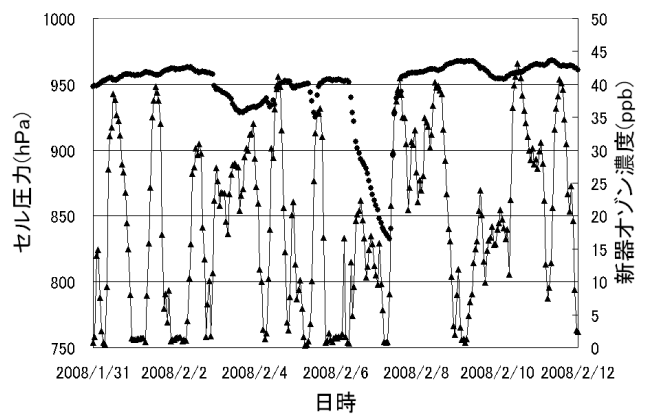


図8 セル圧力と新器オゾン濃度の時系列

850hPaと異常に低い下向きのピークである。このパルス状に変化している2008年2月6日早朝から2月7日昼頃までを中心に表示したものが図7である。図の下矢印は、この期間に降水や霧が観測されたか、または気温と露点温度からこの2つの現象が推測された期間を表し、特に黒塗

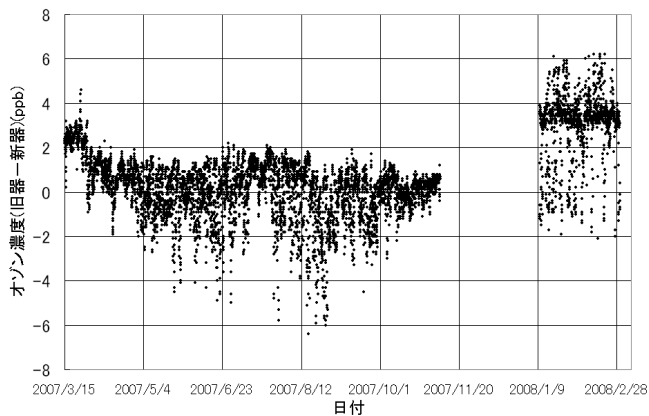


図9 新器と旧器のオゾン濃度の差の時系列

表2 オゾン濃度月平均値表

|          | 旧器<br>(ppb) | 新器<br>(ppb) | (旧器-新器)<br>(ppb) | (旧器-新器)/<br>新器×100(%) |
|----------|-------------|-------------|------------------|-----------------------|
| 2007年3月  | 33.7        | 31.6        | 2.1              | 6.6                   |
| 2007年4月  | 36.6        | 35.9        | 0.7              | 1.9                   |
| 2007年5月  | 35.6        | 35.9        | -0.3             | -0.8                  |
| 2007年6月  | 28.3        | 28.6        | -0.3             | -1.0                  |
| 2007年7月  | 21.2        | 20.8        | 0.4              | 1.9                   |
| 2007年8月  | 26.2        | 26.8        | -0.6             | -2.2                  |
| 2007年9月  | 20.5        | 21.0        | -0.5             | -2.4                  |
| 2007年10月 | 19.8        | 19.8        | 0.0              | 0.0                   |
| 2007年11月 | 14.5        | 14.1        | 0.4              | 2.8                   |
| 2008年1月  | 16.5        | 13.7        | 2.8              | 20.4                  |
| 2008年2月  | 24.5        | 21.4        | 3.1              | 14.5                  |

りの矢印はこの期間の気温が0℃以下か0℃に近い値であった期間を示す。その時の配管等の状況を目視で確認していないが、空気取り入れの管路内に着氷し、管路内の空気の流入を阻害したか、通りにくくした可能性が高い。

図8はセル圧力の低下がオゾン濃度測定に影響があるかどうかを調べるため、図7と同一期間のセル圧力と新器の濃度を比較したものである。2月6日から7日のセル圧力の低下に伴いオゾン濃度が低下しているように見えるが、1事例のみなので今後の精査が必要である。セル圧力のモニターの追加は、オゾン濃度測定データの品質向上のための管理情報として利用できる可能性がある。今後新器の運用・監視を行いながらデータチェック方法の一つとして検討していく必要がある。

### 3. 新旧オゾン濃度計のオゾン濃度比較結果

#### 3.1 1時間平均値と月平均値の比較

旧器と新器のオゾン濃度の1時間平均値の差の時系列を図9に示す。比較データは、2007年3月15日から11月8日までを取得し、その後メーカーによる点検調整および気象庁による較正が行われた後の2008年1月10日から2月29

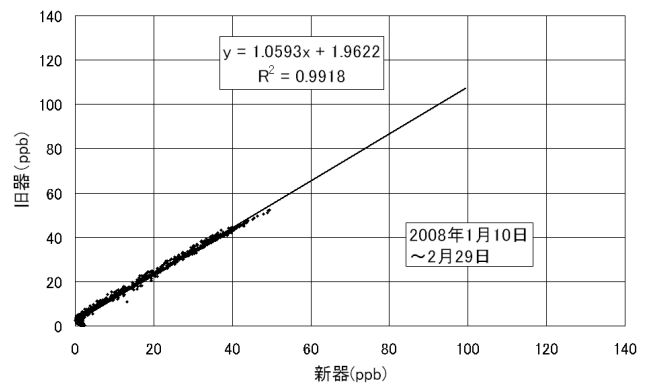
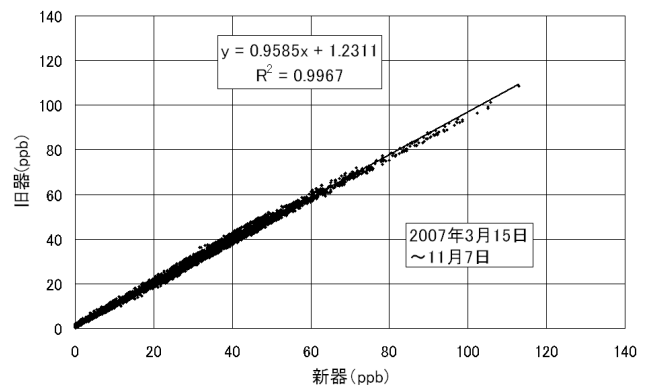
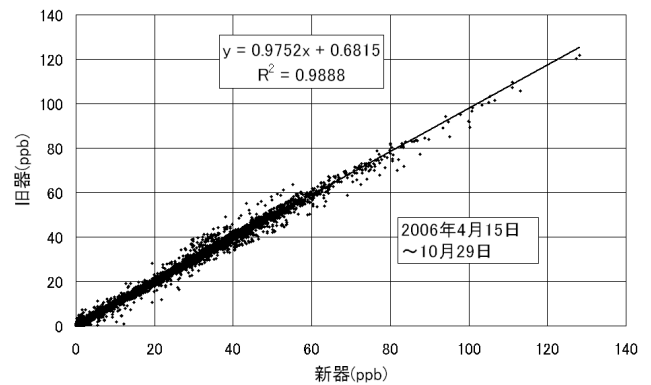


図10 新器と旧器のオゾン濃度比較

(上図：2006年，中図：2007年，下図：2008年)

日までのデータである。11月までのデータを見ると、3月頃は旧器が新器より約2ppb大きい、その後4月頃から旧器と新器との差はほぼ等しく、日によっては新器が約6ppb大きい場合があった。点検・較正後の2008年1月9からは旧器の方が約3ppb大きくなっている。

値に大きく外れるものがあるのはノイズも含まれているためと思われるが、今回の報告では対応できないため、今後の課題としたい。

表2はオゾン濃度の月平均値をまとめて表にしたものである。月平均値は1時間平均値から求めている。表中、

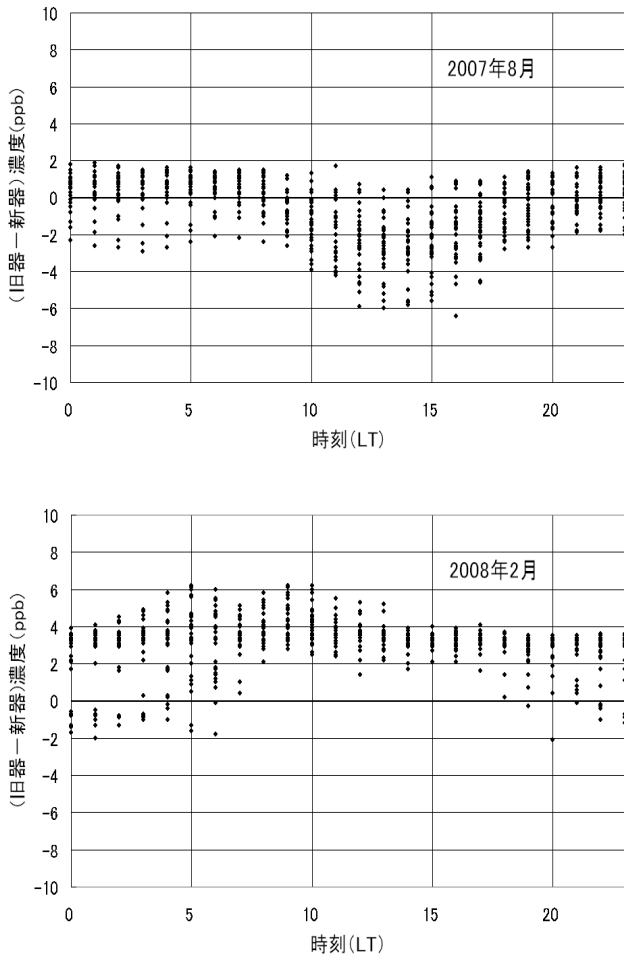


図11 旧器－新器の時間変化  
(上図：2007年8月，下図：2008年2月)

新器・旧器共に2007年3月は15日間，2007年11月は7日間，2008年1月は22日間の平均である．2007年3月から11月までは新旧両器の差はほぼ0.1と小さかったが，調整・較正後の2008年1月10日からの差の平均を見ると，3.0ppbとなっている．較正を受けた後から次の較正を受けるまでの期間別の新器と旧器の関係を図10に示す．

本庁による較正は，旧器が2007年3月に行われており，新器は購入直後の2006年4月と2007年12月に行われている．

新器の較正後に両器に差が見られた理由として①旧器の特性の変化，②新器の特性の変化，③本庁での較正基準の変化が考えられるが，較正時の状況については今後精査したい．

### 3.2 新器と旧器の特性の違い(気温影響の観点から)

図9を見ると旧器と新器の差は季節変化に加え，小さな周期の変動が見られる．図11は，夏の日変化の代表として

表3 補正方法の検討

|       | 補正の概要(補正後の濃度をCm(ppb)とする)<br>新器と旧器の比較より得られた近似式を適用する．                                                                                                                            | 新器との偏差の標準偏差(ppb) |
|-------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|
| 補正方法1 | $C_m = \text{旧器の濃度} / 0.96 - 1.23 (\text{ppb})$                                                                                                                                | 1.6              |
| 補正方法2 | 新器と旧器の比較によって得られた偏差と気温の関係式を求め，気温によって偏差を補正する．<br>$C_m = \text{旧器の濃度} - (-0.11513 \times \text{気温} (^{\circ}\text{C}) + 3.06)$                                                    | 1.2              |
| 補正方法3 | 新器の濃度を従属変数，旧器の濃度，気温，気圧を独立変数とした回帰式を求めその係数を適用する．<br>$C_m = \text{旧器の濃度} \times 1.019 + \text{気温} (^{\circ}\text{C}) \times 0.131 + \text{気圧} (\text{hPa}) \times 0.00905 - 12.4$ | 1.2              |

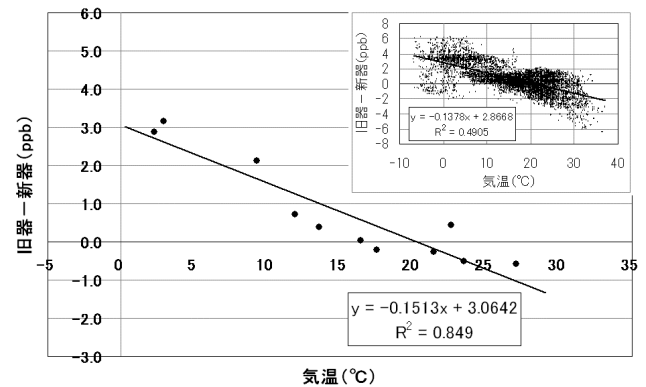


図12 月平均気温と月平均濃度の差(旧器－新器)との関係(右上図：毎正時の気温と濃度差の関係)

2007年8月と冬の代表として2008年2月を選択，1時間平均値における新器と旧器の濃度差をプロットしたものである．2007年8月には昼に負のピークが現れ，2008年2月には明け方に正のピークが現れる傾向がある．これは温度補正の有無によるものと考えられる．

### 3.3 旧器データの補正方法の検討

旧器と新器のデータを比較するためにはセル圧力とセル温度を知ることが必要であるが旧器(EG-2001F)にはセル圧力やセル温度を測定する装備が備わっていない．したがって，旧器と新器のデータの連続性を確保するためには既存のデータを用いた旧器の補正方法を考える必要がある．図10の新器と旧器の比較で得られた2007年3月15日から11月7日までと2008年1月10日から2月29日までの全時別値と地上気象観測データを用いて，新器データと旧器データを用いた補正式の検討を行った．そのいくつかを表3に示す．

#### 3.3.1 補正方法1

新器と旧器の比較を行い，両者の関係式を求め，この式から旧器のデータを新器に整合する値を求める．新器

では、セル圧力とセル温度から $0^{\circ}\text{C}$ 、1気圧に補正しているが、この補正式では考慮していないことから、周囲気温や気圧の大きな変化があった時には対応できないが、高層気象台の観測データに対してのみ適用できる可能性が高い。だが、補正方法1の近似式を適用すると、新器との濃度差の標準偏差は1.6ppbとなる。

### 3.3.2 補正方法2

3.2の検討から、旧器の濃度補正には気温との関係が示唆される。

図12は、月平均気温と新器と旧器の濃度の差(旧器－新器)の関係を示す。図中右上の図は毎正時の気温と濃度差の関係を示す。図12の月平均値から求められた近似直線の関係を使用し補正する。濃度差の標準偏差が1.2ppbと多少の改善が見られたのは、気温を考慮した効果が現れたものと推定される。

### 3.3.3 補正方法3

新器のオゾン濃度を求める時に(1)式を用いて補正していることから、2007年3月15日から11月7日までと2008年1月10日から2月29日までの全時別値から、新器の濃度を従属変数、旧器の濃度、気温、現地気圧を独立変数として近似式を求め補正する。濃度差の標準偏差は1.2ppbとなり気圧を考慮に入れたが補正方法2より有意な結果は導けなかった。

### 3.3.4 補正方法4

気温とセル温度、現地気圧とセル圧力の関係式を求め、セル温度を気温で、またセル圧力を気圧で代表させ、(1)式に直接代入して旧器の濃度を補正しようと試みたが良い結果とはならなかった。

## 4. まとめ

新旧のオゾン濃度計を並行運用することによって、新旧の特性差や新濃度計の利点が明らかになった。データユーザーに対し、旧オゾン濃度計と新オゾン濃度計の観測結果の連続性がどの程度確保できるかの情報を提供するため、旧オゾン濃度計データの補正方法について検討した。その結果は、以下の通り。

- (1) 気温とセル温度、現地気圧とセル圧力に一定の関係があることがわかった。

- (2) 新オゾン濃度の利点

新オゾン濃度計に付加された測定セル内の温度及び圧力補正機能は、得られたオゾンデータの観測所間の相互比較可能性の確保に貢献するのみならず、今回の比較観測中にたまたま起こったセル圧力の監視結果から、外気を取り込む管路の閉塞状況等の監視に有効なことがわかった。セル圧力の監視データを活用し、データの品質管理に役立てたい。

- (3) 新オゾン濃度計の観測データと連続性を確保するための旧オゾン濃度計の観測データの補正方法(補正值) 4つを検討した。気温と濃度の関係により補正した結果が、最も適していると考えられた。今後は新濃度計のデータ蓄積を待って再検討したい。

当台は、GAW観測網の地上オゾン観測所として登録されている。当台で実施しているオゾン、日射・放射、高層気象観測データなどとともに世界に発信され活用されている。今後とも、国際的な技術動向を把握し、それらに合わせながら観測を継続していく。観測手法等を見直した場合には、観測データの連続性を確保するため、データの補正等を検討する必要がある。

## 謝 辞

本稿を草するに際し、環境気象管理官の担当者の皆様にはオゾン濃度計の較正に関しアドバイスを頂いた。観測第一課長と観測第二課の皆様には多大な助言を頂いた。

査読者には本稿の内容の品質向上に有益なアドバイスを頂いた。

最後に、松原廣司高層気象台長には原稿作成途上で大変お世話になった。

これらの方々に厚く御礼申し上げます。

## 引用文献

荏原実業株式会社(2001):オゾンモニタ EG-2001F 仕様書。

荏原実業(株)オゾン事業部, 9pp.

観測部環境気象課(2004):地上オゾン較正装置のGAW基準への準拠と基準変更に伴う観測濃度の補正について。測候時報, 71, 4-6.

上野丈夫・馬場広年(2006):つくばの地上オゾンデータの補正と経年変化。高層気象台彙報, 66, 1-8.