

された第五世代の一次標準ガス濃度と、NOAA/CMDLで値付けされた第四世代の一次標準を用いて測定された濃度を比較してみた。表-3に示す通り、両者の濃度値の違いは最大0.18ppmで、全体の平均としては0.09ppmの違いがあることがわかった。ポンベの濃度が320ppmから400ppmの範囲では両者の違いは比較的小さかったのに対して、これらの濃度範囲を外れるポンベについては違いが大きかった。今後、これら標準ガス濃度値のずれを補正して、より厳密に標準ガススケールの統一を計っていくことが課題となるであろう。

3-5 第3章のまとめ

これまで気象庁において実施された標準ガスの検定データを詳細に再解析した結果、以下のような事柄が明らかになった。

- 1) 一次標準ガスについて自己検定法による解析を行った結果、第一世代の標準ガスは濃度ドリフトを起こしていたことが強く示唆されたが、第二世代以降の一次標準ガスはいずれも安定した濃度が保たれていたことがわかった。
- 2) 第一世代の一次標準ガスについて濃度ドリフトを評価した結果、すべてのポンベが濃度上昇を起こしていたことがわかった。また、使用期間中の濃度上昇速度は+0.09ppm/yrから+0.29ppm/yrの範囲にあり、ポンベによってドリフトの程度が異なっていたことが確認された。
- 3) 第二世代以降における世代間の較差を補正することによって気象研究所ポンベの検定値を見直した結果、補正前の違いが大きく解消されて±0.1ppm以内で良く一致した。これらの結果から世代間の較差が有意に存在することが確認された。
- 4) 一次標準ガスの組み合わせによる検定値の違いを調べた結果、測定誤差を上回る差が生じる場合があることがわかった。

以上の結果から、第一世代の濃度ドリフト補正並びに世代間の較差補正によって、過去の検定濃度を同じスケールでほぼ統一できることがわかった。

4. 検定結果のデータベース化

今後、過去16年間の検定結果をさらに詳細に解析・評価し、これに基づいた観測データの補正を行うためには、検定の際に得られた測定データに戻って再計算をやり直していく必要がある。そのために、すべての測定データをデータベース化して、系統的に整理しておかなければならない。なお、ここで言う測定データとは、毎回の検定におけるNDIRによる計測結果を収録したデータファイルのことで、ファイルには検定の年月日、測定した標準ガスの番号並びにそれらのNDIR計測の出力値などが記録されている。これら過去の測定データの形式を統一してデータベース化しておくことは、今後も蓄積される検定結果と合わせて、将来の再解析に利用していくためにも重要である。

気象庁の検定システムは1986年から稼働を開始したが、1997年に大幅なシステムの更新が行われた。これに伴って、データ処理装置とそのソフトウェアが更新されたために、測定データの保管・管理の様式が大きく変わった。1997年の検定システム更新以降は測定データの保管・管理体制が整えられてデータベース化が容易な状況にあったが、更新前の旧システムではその管理体制が十分とは言えない状況にあった。たとえば、測定データの形式が異なっていたり、そのデータファイルが一括管理されていないなど、多くの問題が1997年以前の測定データにあることが予備調査でわかった。

合同調査・研究チームでは、まず1997年以前の旧検定システムで得られた測定データのデータベース化に取り組んだ。これらの測定データは新検定システムのデータ処理装置に移管されていたものもあったが、それら以外にも異

なるメディアに収録されて離散していることがわかった。そこで、検定計算結果の記録簿を基に、計算に利用された測定データを収集する作業を行った。次に、収集されたデータはバイナリ形式で収録されていたために、テキスト形式のファイルに変換した後、すべてのデータファイルについてその収録データが読み込み可能かどうかの検査を行った。また、ファイルの中に手入力された検定年月日やボンベ番号のデータに関して、検定計算結果の記録簿と照合させながら入力データの誤りを修正していった。これらのデータベース化の作業を通して、1986年11月から1997年8月までの間の旧検定システムで得られた測定データファイルのリストとその内容をまとめることができた。その結果が表-4に示してある。一方、表-5は、1997年8月から2002年12月までの新検定システムで得られた測定データについて同様なリストを作成した結果である。

表-4及び表-5のリストに挙げられたすべての測定データファイルはCDに収録された。このデータベースは、これまで断片的にしか解析できなかつた標準ガスの履歴を今後再評価していく上で有効に活用されていくことが大いに期待される。また、その再評価に基づいて個々の測定データの最終的な値付けが可能となる。なお、CDに収録されたデータは未だ完成されたものではなく、現在もその修正・修復の作業が行われており、今後さらに完成度の高い改訂版として改められていく予定である。

5. 謝辞

本報告をまとめるに当たり、過去の情報に関してご協力及びご助言を頂きました、伊藤朋之、永田洋二、廣田道夫、渡部文雄の諸氏に感謝の意を表します。また、本報告に対して数多くの有益なコメントを頂きました、緑川貴氏に感謝の意を表します。

6. 参考文献

- 青木周司・川口貞男(1990) 大気中のメタン濃度高精度連続観測システムの開発。南極資料、34, 263-278.
- Inoue, H.Y., H. Matsueda, T. Midorikawa and Y. Sugimura (1991) Atmospheric CO₂ and CH₄ observed during the flight of International Strato/Tropospheric Air Chemistry I. *Papers in Meteorology and Geophysics*, **42**, 3-10.
- Inoue, H.Y., H. Matsueda, M. Ishii, K. Fushimi, M. Hirota, I. Asanuma and Y. Takasugi (1995) Long-term trend of the partial pressure of carbon dioxide (pCO₂) in surface waters of the western North Pacific, 1984-1993. *Tellus*, **47B**, 391-413.
- Inoue, H.Y. and H. Matsueda (1996) Variations in atmospheric CO₂ at the meteorological Research Institute, Tsukuba, Japan. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **23**, 137-161.
- Inoue, H.Y. and H. Matsueda (2001) Measurements of atmospheric CO₂ from a meteorological tower at Tsukuba, Japan. *Tellus*, **53B**, 205-219.
- 観測部測候課(1994) 気象庁による大気バックグラウンド汚染観測について。測候時報、61, 145-179.
- Masarie, K.A., R.L. Langenfelds, C.E. Allison, T.J. Conway, E.J. Dlugokencky, R.J. Francey, P.C. Novelli, L.P. Steele, P.P. Tans, B. Vaughn and C. White (2001) NOAA/CSIRO flask air intercomparison experiment: A strategy for directly assessing consistency among atmospheric measurements made by independent laboratories. *Journal of Geophysical Research*, **106**, 20445-20464.
- Matsueda, H. (1993) Intercalibration experiment of methane standard gas scale between NOAA/CMDL and MRI/GRL. *Papers in Meteorology and Geophysics*, **44**, 45-56.
- Matsueda, H. and H.Y. Inoue (1996) Measurements of atmospheric CO₂ and CH₄ using a commercial airliner from 1993 to 1994.

- Atmospheric Environment*, **30**, 1647-1655.
- Matsueda, H. and H.Y. Inoue (1999) Aircraft measurements of trace gases between Japan and Singapore in October of 1993, 1996, and 1997. *Geophysical Research Letters*, **26**, 2413-2416.
- Matsueda, H., H.Y. Inoue and M. Ishii (2002a) Aircraft observation of carbon dioxide at 8-13 km altitude over the western Pacific from 1993 to 1999. *Tellus*, **54B**, 1-21.
- Matsueda, H., S. Taguchi, H.Y. Inoue and M. Ishii (2002b) A large impact of tropical biomass burning on CO and CO₂ in the upper troposphere. *Science in China (Series C)*, **45 Supp.**, 116-125.
- 田中正之・中澤高清・青木周司(1987) 大気中の二酸化炭素濃度の精密計測法。気象研究ノート、160, 1-16.
- Tans, P.P., P.S. Bakwin, L. Bruhwiler, T.J. Conway, E.J. Dlugokencky, D.W. Guenther, D.R. Kritis, P.M. Lang, K.A. Masarie, J.B. Miller, P.C. Novelli, K.W. Thoning, M. Trudeau, B.H. Vaughn, J.W.C. White and C. Zhao (2001) 2. Carbon Cycle, Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory Summary Report No. 25 1998-1999, 25, 24-46.
- Watanabe, F., O. Uchino, Y. Joo, M. Aono, K. Higashijima, Y. Hirano, K. Tsuboi and K. Suda (2000) Interannual variation of growth rate of atmospheric carbon dioxide concentration observed at the JMA's three monitoring stations: Large increase in concentration of atmospheric carbon dioxide in 1998. *Journal of Meteorological Society of Japan*, **78**, 673-682.
- WMO (2000) Guide on Sampling and Analysis Techniques for Chemical Constituents and Physical Properties in Air and Precipitation as Applied at Stations of the Global Atmosphere Watch, PART 1: Carbon Dioxide. *WMO/GAW No. 134 (WMO TD No. 980)*.
- WMO (2001) Strategy for the Implementation of the Global Atmosphere Watch Programme (2001- 2007), *WMO/GAW No. 142 (WMO TD No. 1077)*.
- WMO (2003) Report of the Eleventh WMO/IAEA Meeting of Experts on Carbon Dioxide Concentration and Related Tracer Measurement Techniques (Tokyo, Japan 25-28 September 2001). *WMO/GAW No. 148, (WMO TD No. 1138)*.