

CO₂ 及び N₂O の赤外吸収帯の吸収線強度と半値半幅
Line strengths and half-widths of the infrared absorption bands of CO₂ and N₂O

(気象研究所) ○ 深堀正志、青木忠生、(東レリサーチセンター) 渡辺 猛
(Meteorological Research Institute) Masashi FUKABORI, Tadao AOKI,
(Toray Research Center Inc.) Takeshi WATANABE

The objective of this study is to determine the accurate absorption line parameters, such as the line strength, the half-width, and their temperature dependence of trace gases required in the data analysis of ILAS-II through the laboratory measurements. The main targets of experiments are the infrared absorption bands of N₂O and CO₂ in the spectral region of CH.2 which is newly installed in ILAS-II.

【序】環境観測技術衛星 (ADEOS-II : みどり II) に搭載されている改良型大気周縁赤外分光計-II 型 (ILAS-II) には、4 個の観測波長域を観測する検知器が設置されている (Ch.1 : 6.21-11.76 μ m , Ch.2 : 3.0-5.7 μ m , Ch.3 : 12.78-12.85 μ m , Ch.4 : 753-784nm) 。これらの中で、Ch.2 と Ch.3 は ILAS-II で初めて設置されたものである。解析に用いる吸収線データベース (HITRAN データベース) に編集されている大気微量気体の吸収線強度や半値半幅などの吸収線パラメータには、不正確なものも少なくないのが現状であるため、これらの観測領域にある大気微量気体の吸収線データベースの検証が必要となった。本研究では、Ch.2 領域に存在する CO₂ の吸収帯 (4.3 μ m) と N₂O の吸収帯 (3.9 μ m , 4.5 μ m) に対して、室温及び低温下での吸収実験を行った。測定されたスペクトルから、線強度、半値半幅及びその温度依存性に関する吸収線パラメータを決定し、吸収線データベースの妥当性を検証した。

【実験】高分解フーリエ変換型分光計 (Bruker IFS 120HR) を用いて吸収スペクトルを測定した。検知器には InSb を用い、スペクトル分解を 0.01cm⁻¹ に設定した。室温スペクトルの測定には、光路長 10.16mm の吸収セル (窓板 : CaF₂) を用いた。低温スペクトルの測定には、成層圏と類似の低温下まで気体を冷却可能な吸収セル (窓板 : ZnSe, 光路長 : 11.68mm) を製作し、既存のクライオスタットと組み合わせて実験に用いた。試料温度は、298 $\pm$ 1K, 240 $\pm$ 1K, 180 $\pm$ 1K であった。

【解析】非線形最小自乗法を用いて、実験スペクトルと計算スペクトルが一致するように、線強度と半値半幅を同時に求めた。

半値半幅の温度依存性は、経験的に次式のように表され、一般にべき指数 n は、0.5 から 1.0 の間にある。

$$\gamma^0(T_2) = \gamma^0(T_1)(T_1/T_2)^n$$

本研究では、重み付き最小自乗法により指数 n を決定した。また線強度を吸収帯内の広い範囲で求め、その吸収帯内での分布から、分子の振動と回転の相互作用を表す Herman-Wallis 因子 (F-factor) も求めた。Herman-Wallis 因子の回転量子数依存性については、次式を採用した。

$$F(m)=[1+A_1*m+A_2*m^2]^2$$

ここで m は、R 枝と P 枝でそれぞれ、m=J''+1 と m=-J'' と表される (J'' は遷移に関わる下位の回転量子数) 。

【結果】CO₂ の 4.3 μ m 帯 [(00011-00001) 帯 : HITRAN データベースの表記法による] における HITRAN データベースの線強度は HITRAN92 で改訂されており、それ以降 HITRAN2K まで同じ値が格納されている。HITRAN86 と HITRAN92, 96, 2K の線強度には、R 枝で 4.4% もの相違があり、この相違は HITRAN92 以降の線強度が 1980 年代後半に行われた高分解実験の結果に基づいていることに起因している。図 1 に、m 数と遷移双極子モーメントの 2 乗の関係を示す。本実験による値は、実線で示された HITRAN2K の値と破線で示された HITRAN86 の値の中間に位置している。HITRAN86 の値は m 数に依存せず、Herman-Wallis 因子が考慮されていないのが分かる。本研究の

Herman-Wallis 因子の傾向は、HITRAN2K とほぼ同様であった。また Herman-Wallis 因子の係数 A_1 の値は、Watson によりなされた理論計算値とも実験誤差の範囲内で良く一致していた。図 2 に、本研究で得られた $\gamma^0(\text{CO}_2\text{-N}_2)$ と $\gamma^0(\text{CO}_2\text{-O}_2)$ を示す。 $\gamma^0(\text{CO}_2\text{-N}_2)$ は $\gamma^0(\text{CO}_2\text{-O}_2)$ より大きく、両者の比 ($\gamma^0(\text{CO}_2\text{-N}_2) / \gamma^0(\text{CO}_2\text{-O}_2)$) は吸収帯を平均すると 1.21 となり、 $|m|$ 数の増加に伴い半値半幅の比も 1.15 から 1.25 付近まで増加する傾向を示した。また R 枝と P 枝の半値半幅の値には、大きな差違は無かった。

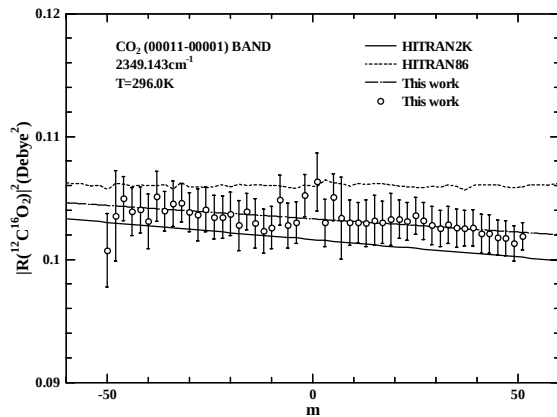


図1 CO_2 の(00011-00001)帯における回転量子数と遷移双極子モーメントの 2 乗の関係。

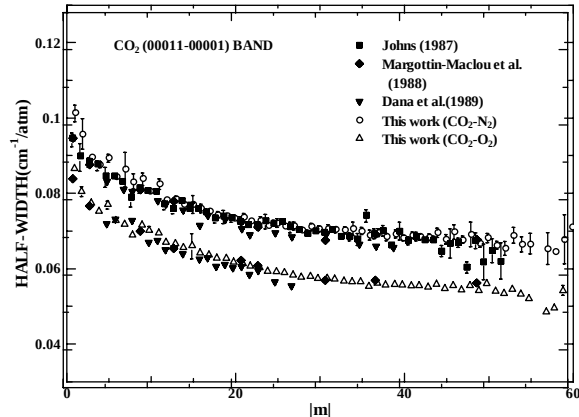


図2 $\gamma^0(\text{CO}_2\text{-N}_2)$ と $\gamma^0(\text{CO}_2\text{-O}_2)$ に対する本研究の値と他研究者の値との比較。

N_2O の $3.9\mu\text{m}$ 帯[(2000-0000)帯]及び $4.5\mu\text{m}$ 帯[(0001-0000)帯]の吸収スペクトルを測定した。得られた吸収スペクトルから線強度と半値半幅を決定し、半値半幅の温度依存性に重点を置いて解析した。各温度について、 $\gamma^0(\text{N}_2\text{O-N}_2)$ は $\gamma^0(\text{N}_2\text{O-O}_2)$ よりも約 20% 大きい傾向を示した。図 3 に、(0001-0000)帯 R 枝における m 数とべき指数 n の関係を示す。 $\gamma^0(\text{N}_2\text{O-N}_2)$ と $\gamma^0(\text{N}_2\text{O-O}_2)$ に対するべき指数は、実験誤差の範囲内で一致していた。また、それらの値は 0.65 から 0.9 の範囲にあった。この値は HITRAN データベースの基礎データとなった Lacome et al. の値の中間的な値であった。 $\gamma^0(\text{N}_2\text{O-N}_2)$ と $\gamma^0(\text{N}_2\text{O-O}_2)$ に対するべき指数の比(R)は、1 から 1.05 の範囲にあり、Lacome et al. による結果 ($R \sim 1.2$) とは異なっていたが、Henry et al. や Nemtchinov et al. による結果 ($R \sim 1$) とは同様の傾向を示した。べき指数はわずかな回転量子数依存性を示したが、今後理論との比較検討が必要である。同様の傾向は図 4 に示した(2000-0000)帯の R 枝の指数 n についても見られた。このような傾向は、我々が N_2O の $2.9\mu\text{m}$ 帯[(1001-0000)帯]で得た結果とほぼ同様の結果である。

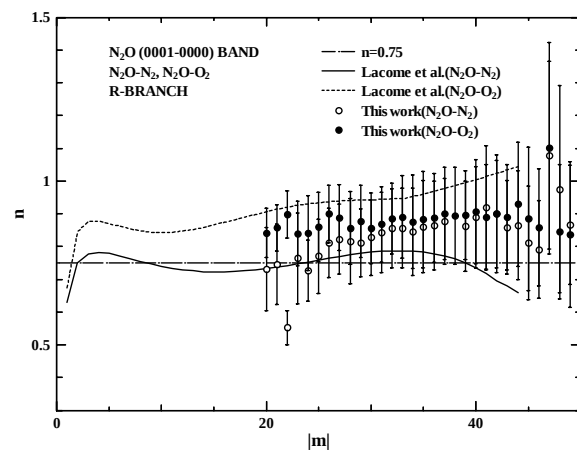


図3 N_2O の(0001-0000)帯 R 枝における m 数と指数 n の関係。

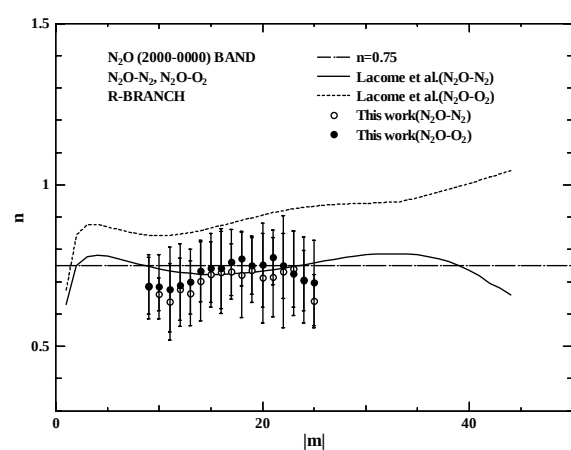


図4 N_2O の(2000-0000)帯 R 枝における m 数と指数 n の関係。