

アジア・オセアニア域における長寿命・短寿命気候影響物質の包括的長期観測

国立研究開発法人国立環境研究所

地球環境研究センター	地球大気化学研究室	谷本浩志
地球環境研究センター	炭素循環研究室	奈良英樹
地球環境研究センター	炭素循環研究室	向井人史
地球環境研究センター	エミッションインベントリ 連携研究グループ	野尻幸宏
地球環境研究センター	炭素循環研究室	寺尾有希夫
地球環境研究センター	地球大気化学研究室	杉田考史
地球環境研究センター	炭素循環研究室	梶田陽子
環境計測研究センター	動態化学研究室	遠嶋康徳

平成24～28年度合計予算額 111,802千円
 (うち、平成28年度当初予算額 17,110千円)

[要旨] 地球温暖化の原因物質として重要な二酸化炭素を含む長寿命温室効果ガスや、短寿命気候汚染物質について、西部太平洋および東南アジア海域を航行する船舶を観測利用することは、増大しつつあるアジア大陸発生源の全体的な傾向を広域観測する手法として有効である。特に、温室効果にかかわる二酸化炭素以外の長寿命気体成分や短寿命成分の時間変動や空間分布の、広域かつ系統的な理解は二酸化炭素と比較して進んでいない状況にある。また、短寿命成分の分布は地域差が大きく、放射強制力も地域規模においてより重要となる場合が多い。本課題では、長寿命気体成分に加えて短寿命微量成分についても、グローバルな分布とトレンドに加え、リージョナルな分布・変化を明らかにし、観測の空白域であるアジア・オセアニア域において系統的なデータを得ることを目的として5年間の観測をおこなった。

具体的には、日本ーオセアニア航路・日本ー東南アジア航路の両航路においてボトルによる大気採取・分析と、オゾン・一酸化炭素の連続観測を実施するとともに、キャビティリングダウン式分光計による二酸化炭素・メタンの高確度・高精度な連続観測も実施した。両航路における観測データの比較からメタンや亜酸化窒素について季節変化や長期変化が導出され、東南アジアの熱帯域における増大が明らかになった。また、メタンの連続観測からは、東南アジア地域で洋上のオイル・ガス掘削プラットフォームからメタンが放出されていることが明らかになり、全球規模での放出量への相対的な寄与率が考察された。さらに、泥炭火災からは二酸化炭素やメタンが放出されていることが分かり、排出係数の計算が行われて既存のインベントリと比較された。短寿命成分では、オゾンおよびPM_{2.5}について緯度勾配が求まるとともに、緯度帯別の季節変化や長期変化が導出され、温室効果ガス同様に東南アジアの熱帯域における増大が明らかになった。

[キーワード] 東南アジア、長寿命温室効果ガス、短寿命気候汚染物質、泥炭火災、油井

1. はじめに

産業革命以降から現在まで、人間活動が地球規模で急速に拡大してきたことによって、二酸化炭素をはじめとする温室効果ガスの大気中濃度は過去にない速さで増加してきた。これら温室効果ガスは、地球の温暖化を引き起こし、その影響は既に様々な地域で様々な現象に現れている。こうした温暖化が自然や社会へ及ぼす影響の大きさから、排出削減などの対策が国際的に急務となっており、気候変動は21世紀における深刻な地球環境問題として認識されている。

温室効果ガスのうち、最大の寄与を占める二酸化炭素と比較すると、その他の長寿命微量温室効果ガスや短寿命気候汚染物質の収支や気候影響メカニズムの定量的な解明は進んでいない。これまでのIPCC報告書によると、全球平均・大気上端でのメタン、亜酸化窒素、ハロカーボン、対流圏オゾン、ブラックカーボンからの放射強制力を合計すると、 1.52 W/m^2 にもなる。これは二酸化炭素 (CO_2) の放射強制力 (1.46 W/m^2) に匹敵する大きさとなり、これら非 CO_2 ガスやエアロゾルの濃度変化による地球温暖化への寄与は無視できず、対策の上でも重要な物質である。中でも温暖化への寄与推定の不確実性が大きい対流圏オゾン、ブラックカーボン、ハロカーボンの三種類について、不確実性を小さくするためのボトルネックは、空間分布・時間変動の不均一性（特に、短寿命成分のオゾン、ブラックカーボン）、発展途上国の人間活動や森林火災などからの放出インベントリの不確実性（特に、ハロカーボン（例えば、六フッ化硫黄 (SF_6) など）、ブラックカーボン）であると考えられている。

東アジア・東南アジアでは、現在、社会経済活動が急速に活発化しており、人間活動起源の温室効果ガス（代替フロン等）や微小粒子（ブラックカーボン等）の排出が急激に増加していると推定されている。アジアの熱帯から亜熱帯地域においては、森林による二酸化炭素の放出・吸収に加え、農耕地や湿地からのメタンや亜酸化窒素の放出が大きいことも知られており、温暖化やそれに伴う水循環変動により放出・吸収が変化する可能性がある。また、エルニーニョ時の乾燥化に誘引される森林火災では、多種の温室効果ガス、エアロゾル、オゾン前駆物質などの大きな放出・生成が起こる可能性も指摘されている。直接的に温室効果に寄与する物質以外にも、一酸化炭素などの反応性のガスは水酸 (OH) ラジカルとの反応を通じてメタンの大気中濃度に影響を与えることから、これらの物質について大気中濃度の空間分布や時間的推移を把握することは極めて重要である。

東南アジア域の微量温室効果ガス地上観測ステーションは、世界気象機関（World Meteorological Organization: WMO）が行っている全球大気監視計画（Global Atmospheric Watch: GAW）によるとインドネシアのブキット・コト・タバンの一カ所以外にはなく、データの空白域となっている。この地域の重要性に鑑み、米国海洋大気庁（National Oceanic and Atmospheric Administration: NOAA）が香港－シンガポール間の商船で大気のボトルサンプリングを実施していたが、現在は休止中で再開の目処が立っていない。また、途上国でフロン類からの転換が進み放出が急増していると推定されている代替フロン類や、不完全燃焼起源のブラックカーボンを例にとると、東南アジアのルーラル・リモート地域では、集中観測等の一時的な観測データさえ存在しない。

東アジア・東南アジア地域には急速な発展を遂げつつある国が複数存在しており、人口の増加、産業・経済の発展に伴う当該物質（直接・間接温室効果ガス、粒子状物質）の発生量の増加、あるいは土地利用の変化による発生源そのものの変化が懸念されている。燃料使用統計や単位燃料

あたりの物質放出ファクターに基づく排出量推定（ボトムアップ型エミッションインベントリ）は、最も広く行われている温室効果ガスおよび大気汚染物質の排出推計手法であるが、その推定値には非常に大きな不確実性があるといわれている。また、先進国と比較して推計年度も古く、最新の推計値が得られないといった問題も存在する。特に東アジア・東南アジア域の発展途上諸国からの排出量については、排出統計に反映することが難しい小規模な人為発生源の存在が大きな誤差につながっていると考えられている。この不確実性をより小さくするための有効な手法の一つとして、大気中濃度の観測データから逆推計する手法（インバースモデル）を用いて排出量を推定する手法がある。この手法にはモデルの精度を上げるためにできるだけ多くの観測データが必要とされるが、アジア・オセアニア地域における物質の観測は極めて限られている。より高い精度で排出量推定を行うためには、これらの物質の濃度を地域的規模でモニタリングする観測網の整備が急務である。

本研究では、西部太平洋上の日本－東南アジア航路、日本－オセアニア航路を航行する2隻の定期貨物船を用いて洋上大気中の微量温室効果ガスの連続観測を行うことにより、観測データに乏しいアジア・オセアニア地域におけるデータを取得する。定期貨物船を用いた観測は、限られた地点の観測を行う観測ステーションに対して広範囲を系統的に網羅できることが利点であり、ステーションを多数設けるよりもコスト、効率の面において有利である。日本－東南アジア航路貨物船の観測では陸域に近い位置を航行することから、陸域から洋上域に輸送される汚染空気を捕らえるのに適している。これに対し、日本－オセアニア航路の貨物船観測では陸域から離れたバックグラウンド的な大気観測が可能であり、2隻の特徴的な船舶観測を対比させるによって東アジア・東南アジア域からの放出の影響をより良く理解することができる。

2. 研究目的

長寿命温室効果ガスとしては、二酸化炭素、メタン、亜酸化窒素、六フッ化硫黄を主な対象として、貨物船でのボトルサンプリングによる持ち帰り分析で、洋上大気濃度を計測する。国立環境研究所地球環境研究センターのモニタリング事業で維持してきた他の太平洋域の貨物船観測と合わせて、トータルで北緯40度から南緯40度におよぶ広域の観測データとし、全球規模の分布と時系列トレンドの把握を行う。加えて、アジア大陸の沿海を航行する東南アジア航路で同様な観測を行い、大気分布から大陸発生源からの影響を把握する。

一方、より短寿命のガス成分であるオゾンや一酸化炭素は、全球分布が比較的均一な長寿命温室効果ガスと異なり、その短い大気中寿命のために、地域規模の特徴的な空間分布を生じる。特に、一酸化炭素は不完全燃焼からの放出による寄与として、生物燃料利用やバイオマスバーニングが大きな発生源であり、東アジア・東南アジア域からの排出量が大きいと考えられている。エアロゾルとして存在するブラックカーボンも同様である。貨物船利用観測においても、一酸化炭素とオゾン、ブラックカーボンについては、連続計測で高密度な観測を行って、その広域の濃度分布、季節変化を明らかにするだけでなく、より地域的な発生源の寄与を明らかにすることを目的とする。

3. 研究方法

(1) アジア・オセアニア航路を運行する船舶プラットフォーム

アジア航路 (M/V Fujitrans world, FTW)

オセアニア航路 (M/V Transfuture 5, TF5)



図1 アジア・オセアニア航路における典型的な観測ルート

図1 にアジア・オセアニア航路の典型的な航路を示す。本課題では、東南アジア航路を定期的に航行する貨物船であるFUJITRANS WORLD 号(株鹿児島船舶所属)を利用した大気観測を行っている。FUJITRANS WORLD 号(図2)は、東シナ海と南シナ海にわたるアジア沿海域を航行する自動車運搬船であり、日本、中国、タイ、マレーシア、シンガポール、インドネシア、およびフィリピンの各港に寄港し、4週間で一周する定期運行を行っている。南シナ海(タイ・フィリピン間)は、ボルネオ島に近い航路と遠い航路が見られるが、航行時の天候に応じて変更されるもので、通常はより距離の短い陸から遠い航路をとる。

東南アジア航路に加えて、オセアニア航路を航行するTRANSFUTURE 5号(トヨフジ海運所有)を利用した大気観測も継続している。TRANSFUTURE 5号は、南北両半球にわたる西部太平洋とタスマン海を航行する自動車運搬船であり、日本、オーストラリア、ニュージーランドの各港の寄港し、6週間で一周する定期運行を行っている。この2隻が本課題の主要な観測プラットフォームである。以下では、例としてアジア航路における設備について述べる。



図2 FUJITRANS WORLD 号の外観と、ガス採取口および観測室の場所

(2) アジア航路 (FUJITRANS WORLD 号) における大気サンプリング設備

FUJITRANS WORLD 号における大気観測設備は、2002 年から2005 年のオセアニア航路就航時に協力を得て行っていた大気観測設備を利用した。二酸化炭素とオゾンの連続計、ボトルによる大気自動採取装置は、従来使用していたものと同じ、あるいは同様な装置を設置した。また、必要な関連データの取得には、GPS 測位装置、各装置で取得したデータを保存するサーバーPC、測定データとグラフを表示するPC などを利用している。また、船の操舵室上のコンパスデッキに設置されている大気採取口、日射計、温湿度計なども整備されている。

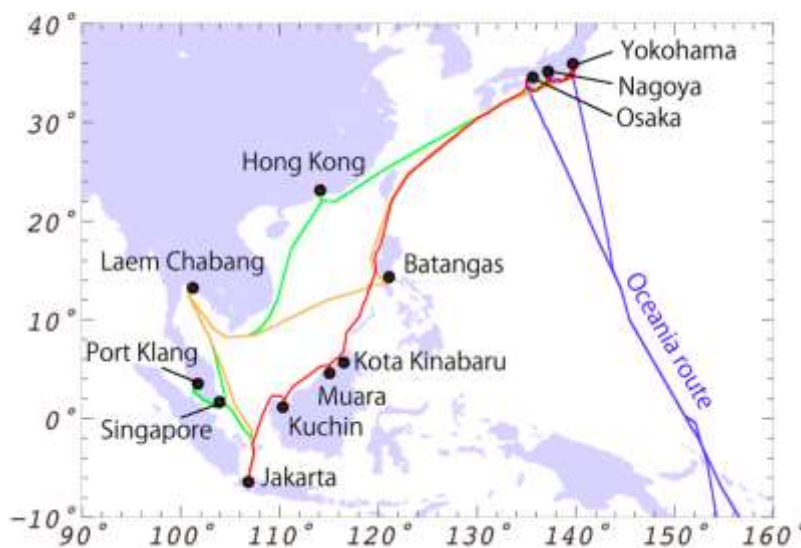


図3 東南アジアを航行するルート。マレー半島航路とボルネオ島航路の2パターンがある。



図4 東南アジア航路での大気採取装置

東南アジア航路におけるFUJITRANS WORLD 号の観測によって、これまで継続実施してきた日本-オセアニア間航路でのサンプリング観測に加え、東南アジア域に大気サンプリング観測の範囲が拡大した。FUJITRANS WORLD 号ではガラスボトルによる採取とし、微量温室効果ガスと関連物質として、メタン、亜酸化窒素、一酸化炭素、水素、六フッ化硫黄を実験室に持ち帰り分析する。東南アジア航路でのサンプリングについては、進行方向が単純な緯度・経度方向ではないため、自動サンプリングのためのプログラミングが容易ではない。そこでマラッカ海峡での採取を可能にするためにソフトウェアの改良を行い、特定の緯度-経度を横切った時に採取されるようにしている。図3に東南アジア航路の詳細な航行ルートを示した。マレー半島の沿岸を航行するルートとボルネオ島の沿岸を航行するルートの2パターンがある。図4には船舶における大気サンプリング装置の写真を示した。ボトルによる大気採取システムはGPS測位と連動して、指定した緯度で採取される。大気は船の最も高い位置にあるコンパスデッキに取り付けた採取口からメタルベローズポンプで吸引され、低温除湿器を通った後、2.5Lガラス容器内に約1.5気圧に加圧充てんされる。試料は日本帰港時に回収して研究所に持ち帰り、水素炎イオン検出器付きガスクロマトグラフ (FID-GC)、電子捕獲型検出器付きガスクロマトグラフ (ECD-GC) で分析される。

(3) アジア航路 (FUJITRANS WORLD 号) における大気連続測定装置

東南アジア航路のFUJITRANS WORLD 号の観測室には、二酸化炭素、オゾン、一酸化炭素、ブラックカーボン、メタンの連続計測装置が設置されている。一酸化炭素とメタンの大気採取口はボトルサンプリングと同じコンパスデッキに設置され、ステンレス管で配管されている。オゾンとブラックカーボンの大気採取口は、サンプリング中における消失を避けるため、観測室に近いEデッキに設置されており、採取口から観測室までテフロン管 (オゾン) またはブレードホース (ブラックカーボン) で配管されている。図5に大気採取口と屋外配管を示す。試料大気は通常、配管内で結露した水蒸気を除去するためにミストトラップを経由して除湿ユニットに導入さ



図5 連続測定器の大気採取口と屋外配管

れる。図6はオゾン、一酸化炭素、ブラックカーボン等の連続測定装置の写真である。

貨物船を用いた連続観測には地上観測ステーションとは異なる悪条件があり、技術的にもチャレンジングである。例えば、船舶が広域を航行するので気温の変化が大きい上、波浪に起因する船体の動揺と船舶自身が発生する（長・短期）振動が存在する。可能な限り測定装置を無人で運転することから、保守のために充てることができる時間は、船舶が日本に寄港するわずかな時間のみに限られる。貨物船を利用するため、測定装置を設置するためのスペースと安全面から、使用可能な装置、それに付随する機材の制約があり、測定システムは制約条件を満たすように設計・製作する必要があった。以下では、個々の装置の詳細を述べる。



図6 連続測定装置の写真（左：オゾン、一酸化炭素； 右：ブラックカーボン）

①紫外吸収法によるオゾン測定器

オゾンの測定には、紫外吸収法に基づく自動連続測定装置が市販され広く用いられており、本研究ではオゾンモニター（紀本電子工業株式会社、OA681またはOA683）を用いた。紫外吸収法はオゾンが紫外領域に強い吸収を持つことを利用した測定法であり、測定精度や時間分解能が良く感度が長期間安定している上、他の気体成分による干渉も少ないという長所を有する。紫外光源には波長253.7 nmの輝線を発する低圧水銀ランプが用いられ、253.7 nm の波長における吸光度が測定されてLambert-Beerの法則から試料ガス中のオゾン濃度が決定される。大気中の埃や微粒子が混入することを避けるために最前段にテフロン製フィルターを設置した。測定精度は100 ppb以下で約2%以内である。配管やフィルターなど接ガス部の材質には不活性なテフロンを使用し、試料採取口から測定器までの配管はできるだけ短くした。

②非分散式赤外吸収法による一酸化炭素測定器

一酸化炭素の測定には、非分散赤外線式ガス相関法（Gas Filter Correlation: GFC）を採用した連続測定器（日本サーモ社、Model 48Cまたは48i）を用いた。GFC は一酸化炭素に特有な赤外吸収波長帯である4.6 μm を利用しており、次の3つの特徴がある。(a) サンプル光とリファレンス光が同一セルを通過するため、CO₂、N₂O や水分の干渉が極めて小さく、セルが汚れても感度が変わらない。(b) 干渉ガスの影響が小さいために半導体検出器が使用可能であり、固定光学

系を合わせて使用することによって振動に強くなる。(c) ガスクロマトグラフ、チューナブルダイオードレーザー、および共鳴蛍光法などの高感度な一酸化炭素測定器に感度は劣るものの、多重反射セルが使用できるので、通常の非分散赤外線吸収法に対して1桁から2桁高感度となる。上記の特性から、GFCは長期にわたって比較的少ないメンテナンス頻度で安定な運転が可能という長所を持つ。可燃性ガスや高温の炉を用いることもないので、安全面も優れており、GFCは過酷な測定環境である貨物船船上での観測に適しているといえる。

一酸化炭素の連続計測システムはGFCに加えて、除湿ユニットおよびガス導入コントロールユニットから構成されている。除湿ユニットでは、試料大気の除湿が電子除湿機とパーマピュアドライヤーを用いて2段階で行われる。試料大気は、電子除湿機を4.5 L/minの流量で通過するが、パーマピュアドライヤーでは導入される4.5L/minの流量の内、3.0 L/minがパージガスとしてスプリットされ、残り1.5 L/minが露点-30度以下にまで除湿されてパーマピュアドライヤーを通過し、コントロールユニットへと導入される。コントロールユニットは、試料大気、標準ガス、およびユニット内で生成される一酸化炭素を含まないゼロ空気を自動的に切り替えてGFCに導入することができるようにタイムプログラムされている。各種ガスは、マスフローコントローラーによって制御され、800 mL/minの一定流量でGFCへ導入される。ここでは、一酸化炭素を含まないゼロガスと濃度既知の標準ガスを一定時間ごとに導入することによって、GFCのゼロ点ドリフトと検出感度を補正しているが、ゼロガスとして一酸化炭素を含まないボンベガスを使用する代わりに、一酸化炭素除去触媒 (Molecular Products, SOFNOCAT 514) に環境大気を通じることによってゼロガスを生成する。また、標準ガスとしては、47L容量の一酸化炭素を約1.1 ppm含有するエアバランスのガスを用いている。標準ガスは、船舶への搭載前後に国立環境研究所で濃度検定を行っている。標準ガスは1日1回、ゼロガスは60分に1回の頻度でGFCに導入される。これらの値を用いて、大気一酸化炭素濃度を、1時間平均値として算出する。



図7 船舶観測室に設置したキャビティリングダウン式分光計 (右) とガスインジェクションユニット (左)

③キャビティリングダウン式分光計による二酸化炭素・メタン連続測定器

航空機や船舶に計測機器を搭載して二酸化炭素・メタンを連続計測した報告例は今までに多数ある。二酸化炭素やメタンを計測するための機器には NDIR（非分散式赤外分光計）や GC（ガスクロマトグラフ）などが代表例として挙げられるが、振動や温度等の環境の変化に弱いものが多く、環境の変化に対して一定の性能を保つことができるものでも十分な測定精度が得られないことがある。また、可燃性のガスを用いる等、無人運転を行うには安全面の問題を伴うものもあり、特にメタンの観測例は研究観測船や航空機観測を用いた大規模観測などに限られていた。さらに、1 回あたりの測定時間が長く、定期的な観測が行われなことから時間的・空間的な分解能が低いことも従来の課題であった。

キャビティリングダウン分光法（Cavity Ring-down Spectroscopy, CRDS）は 2 枚の高反射率ミラーで光学キャビティを構成し、キャビティ内にパルスレーザーを閉じ込め、キャビティから出てくるレーザー光の一部の強度減衰を観測することでキャビティ内の分子の数密度を計測することができる方法である。レーザー光を利用した分光法には様々あるが、キャビティリングダウン分光法は比較的高い圧力の下でも計測が可能であり、導入したレーザーパルス光の減衰量を計測するので、導入するパルス光の強度変動の影響を受けないという点で他の計測手法と大きく異なる。これにより、他機器よりも使用用途が格段に広がり、安全かつ簡便に長期に渡って安定した計測を行うことが可能となる。

当該船舶の観測室に設置されたキャビティリングダウン式分光器を用いた大気メタン計測システムの写真を図 7 に示す。キャビティリングダウン式分光計は船自体から生じる短波長の微振動の影響を避けるために α ゲルを使用した除振台の上に設置されており、船舶の供給電源の電圧低下やサージ等の電圧変動や電気ノイズから装置を保護するため、無停電電源（UPS）を通じて給電を行っている。大気試料は船舶トップデッキに設置した大気採取口から観測室に設置されたダイアフラムポンプを用いて吸引され、観測室にあるガラス製のマニホールドから排気される。このマニホールドから試料大気は CRDS に内蔵されたポンプを用いて約 180 mL/min の流量で除塵フィルター、ガスインジェクションユニットを経由してキャビティリングダウン式分光計へと導入される。インジェクションユニットは、試料大気と標準ガスの導入を分けることが可能である。試料大気は 3 方ソレノイドバルブを経由してキャビティリングダウン式分光計へと導入されるが、このソレノイドバルブを切り替えることで試料大気を含めた複数のガスを導入することが可能である。インジェクションユニット内にはマニホールドが設置されており、ソレノイドバルブを制御することで 3 種の標準ガスを選択的に導入することが可能である。各種標準ガスはマスフローコントローラーを用いて 350 mL/min の流量に制御されてマニホールドへと導入される。マニホールドへ導入されたガスはキャビティリングダウン式分光計に内蔵されているポンプによって 3 方ソレノイドバルブを経由してキャビティリングダウン式分光計へと導入されるが、余剰のガスはオーバーフローとして装置外へと排気される。キャビティリングダウン式分光計に試料大気が導入されている際、インジェクションユニット内のマニホールドには外気の混入を避けるためのパージ用の乾燥ガスが流される。各種ソレノイドバルブの開閉はキャビティリングダウン式分光計のバルブシーケンサーで制御されており、1 日に一回、各種標準ガスをそれぞれ 10 分間キャビティリングダウン式分光計に導入するようにプログラムされている。

④反射型光散乱検出方式によるブラックカーボン測定器

本観測では大気中の浮遊粒子状物質の計測にベータ線吸収方式浮遊粒子状物質自動計測器（紀本電子工業株式会社、SPM-613D）を用いた。本装置はPM_{2.5}、PM₁₀、およびブラックカーบอนを連続で計測する機器である。ろ紙上に捕集した試料粒子にベータ線を当て、その時の吸収量からPM_{2.5}とPM₁₀を、同様に、赤外光を当てた際の反射強度からブラックカーบอนの質量濃度を計測することが可能である（反射型光散乱検出方式）。他社から市販されている同様の粒子状物質計測機器の計測サイクルが数時間であるのに対し、本観測で用いている当該装置は1時間サイクルでの計測を可能としており、陸域発生源からの汚染空気塊を捉える事を主眼とした本観測に適切

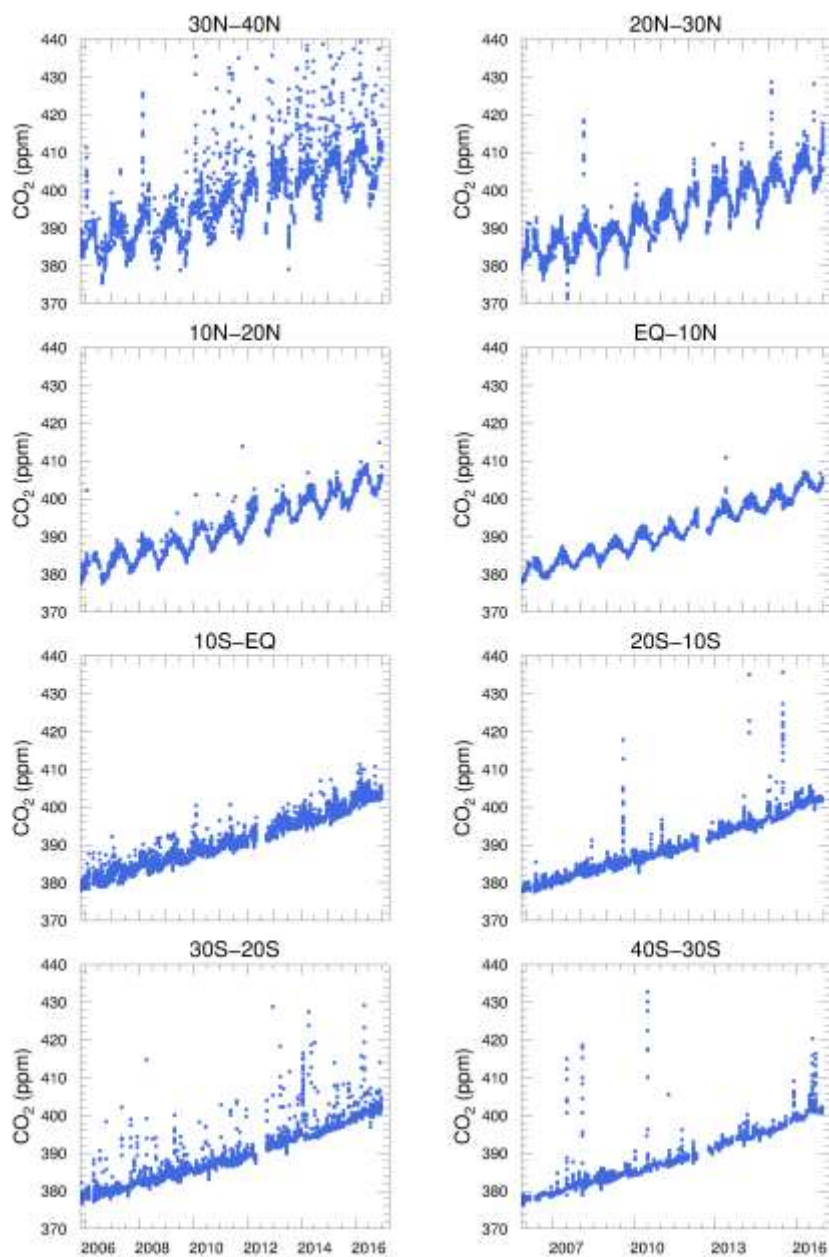


図 8 オセアニア航路における CO₂ の緯度別時系列変化（南北半球）

な能力を備えている。浮遊粒子状物質は観測室よりも一階層高いEデッキに設置した大気採取装置より採取される。大気試料は採取口からサイクロンを経由して観測室内に設置されたSPM計まで吸引される。サイクロンからSPM計はブレードホースで配管されている。

4. 結果・考察

(1) アジア・オセアニア地域における長寿命温室効果ガスの変動と分布の特徴

① アジア・オセアニア航路における二酸化炭素のトレンド

日本ーオセアニア航路および日本ー東南アジア航路で測定された二酸化炭素濃度を 10 度毎に平均してその緯度帯の代表濃度として時系列を作成した。

図 8 にオセアニア航路で観測された二酸化炭素濃度の経年変化を示す。全ての緯度帯において明瞭な増加傾向が観測された。北緯 30 度から 40 度では、日本の沿岸を航行しているため、発生源の影響を直接的に受けて高濃度イベントを多く検出しているが、南に行くに伴って陸域からも遠ざかり、増加トレンドの中に季節変化が明瞭にみられてくる。一方、赤道を超えて南半球に入ると、北半球で見られた明瞭な季節変化は見られず、南半球では陸上生態系による二酸化炭素の

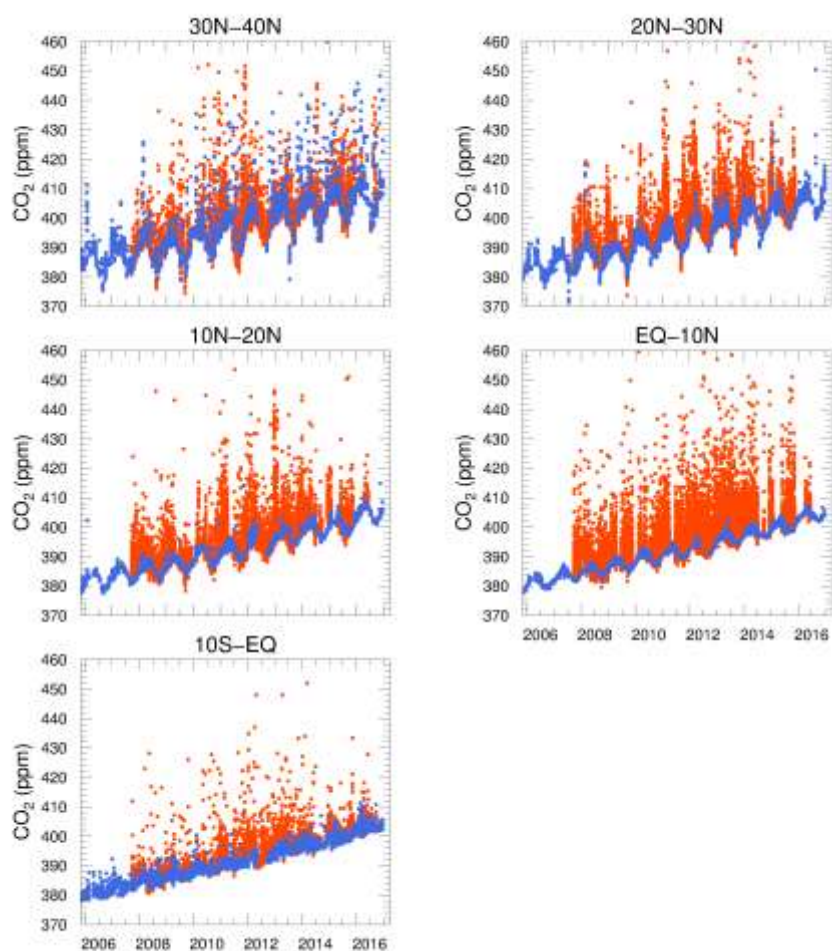


図 9 オセアニア航路（青色）とアジア航路（赤色）における CO₂ 濃度の比較

吸収が少ないといった影響が見て取れる。

図 9 にはオセアニア航路と東南アジア航路で観測された二酸化炭素濃度の比較を示す。北緯 30 度から 40 度では、両航路の船舶とも同じ領域を航行するため、データに目立った差は見られない。しかしながら、より南方に向かうに伴い、東南アジア航路ではアジア大陸により近い海域を航行するため、大陸からの排出の影響をより強く受けていることが見て取れる。また、その影響は非常に強く、ベースラインと比較して 20 ppm 以上もの増大をもたらしていた。特に、赤道から北緯 10 度の緯度帯でもっとも強い影響が見られ、またその頻度も多いことが分かる。

②アジア・オセアニア航路におけるメタン・亜酸化窒素などの分布と変動の特徴

図 10 および図 11 に、東南アジア航路およびオセアニア航路でのボトルサンプリングで 2017 年 2 月までに得られた CH_4 および CO ならびに N_2O および SF_6 の大気中濃度の時系列を示す。データを 4 つの緯度帯 (10–16°N, 5–10°N, 0–5°N, 5–0°S) に分けて時系列解析を行った。

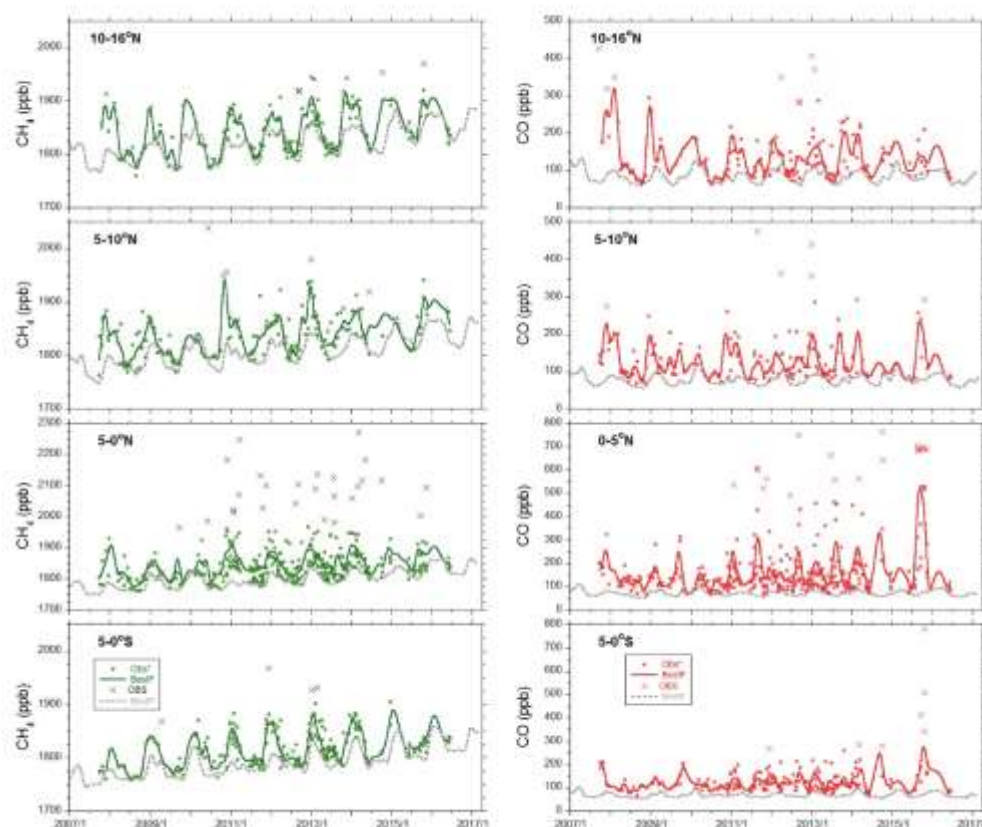


図 10 2017 年 2 月までに観測された日本–東南アジア航路および日本–オセアニア航路によるボトルサンプリングによって得られた (左) CH_4 および (右) CO の時系列。実線および破線は時系列解析によって求められた東南アジア航路およびオセアニア航路に対するベストフィット曲線をそれぞれ表す。黒丸は東南アジア航路での測定値、バツ印は時系列解析の際に異常値 ($>3\sigma$) として解析から除いた測定値を表す。

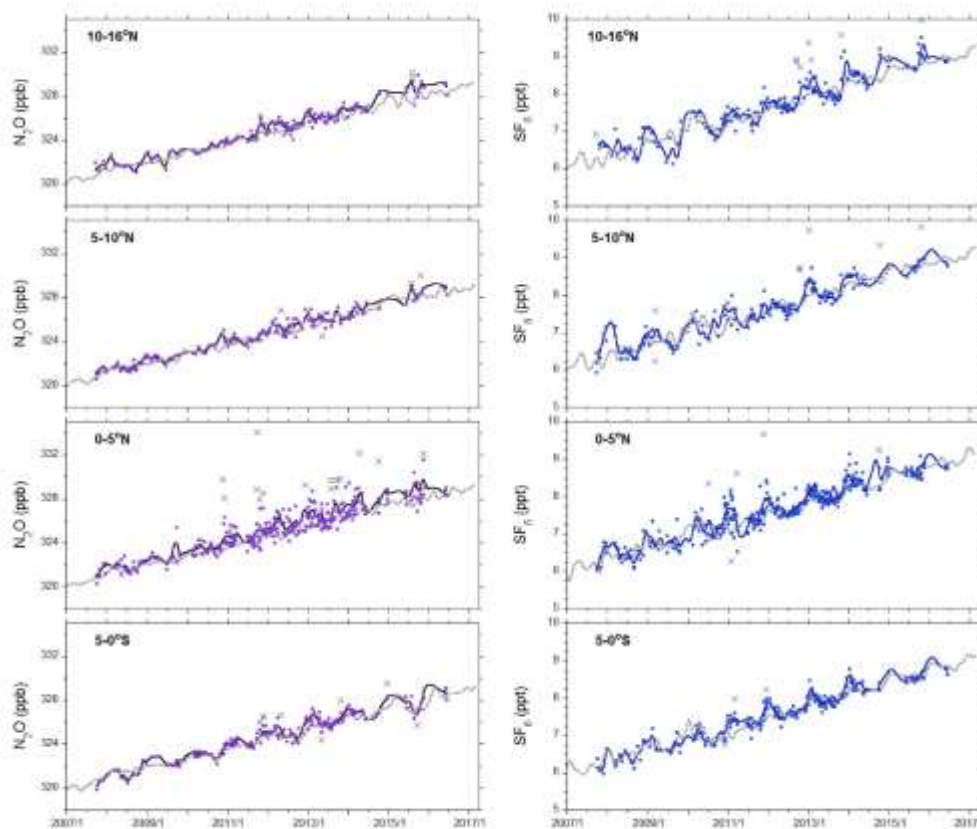


図 1.1 2017 年 2 月までに観測された日本－東南アジア航路および日本－オセアニア航路によるボトルサンプリングによって得られた（左） N_2O および（右） SF_6 の時系列。実線および破線は時系列解析によって求められた東南アジア航路およびオセアニア航路に対するベストフィット曲線をそれぞれ表す。黒丸は東南アジア航路での測定値、バツ印は時系列解析の際に異常値 ($>3\sigma$) として解析から除いた測定値を表す。

CH_4 の時系列（図 1.0）を見ると、いずれの緯度帯においても増加トレンドが観測され、2007 年以降の平均増加率を求めると、オセアニア航路で 7.1 ± 0.1 ppb/yr、東南アジア航路で 6.9 ± 0.2 ppb/yr であった。東南アジア航路とオセアニア航路で観測された濃度を比較すると、いずれの緯度帯でも東南アジア航路で高濃度となり、特に緯度帯 $0-5^\circ\text{N}$ の東南アジア航路で非常に高濃度の CH_4 が観測されたことが分かる。また、この緯度帯は時系列解析で異常値と判定された観測値が最も多い。後述するように、本研究における船上での CH_4 連続測定から、これらの緯度帯に位置するカリマンタン島北西沿岸やマレー半島南東沿岸の沖合で洋上油田・ガス田からの CH_4 の放出が多数捕らえられていることから、これらの高濃度 CH_4 の起源は天然ガスの漏出の影響である可能性がある。また、森林火災の影響によると見られる CH_4 濃度の高まりも観測されることから、バイオマス燃焼起源の寄与もあるかもしれない。

東南アジア航路とオセアニア航路での通年での濃度の違いを詳しく見るために、各緯度帯における平均的な季節変動成分を図 1.2 にプロットした。オセアニア航路の結果を見ると、 CH_4 濃度

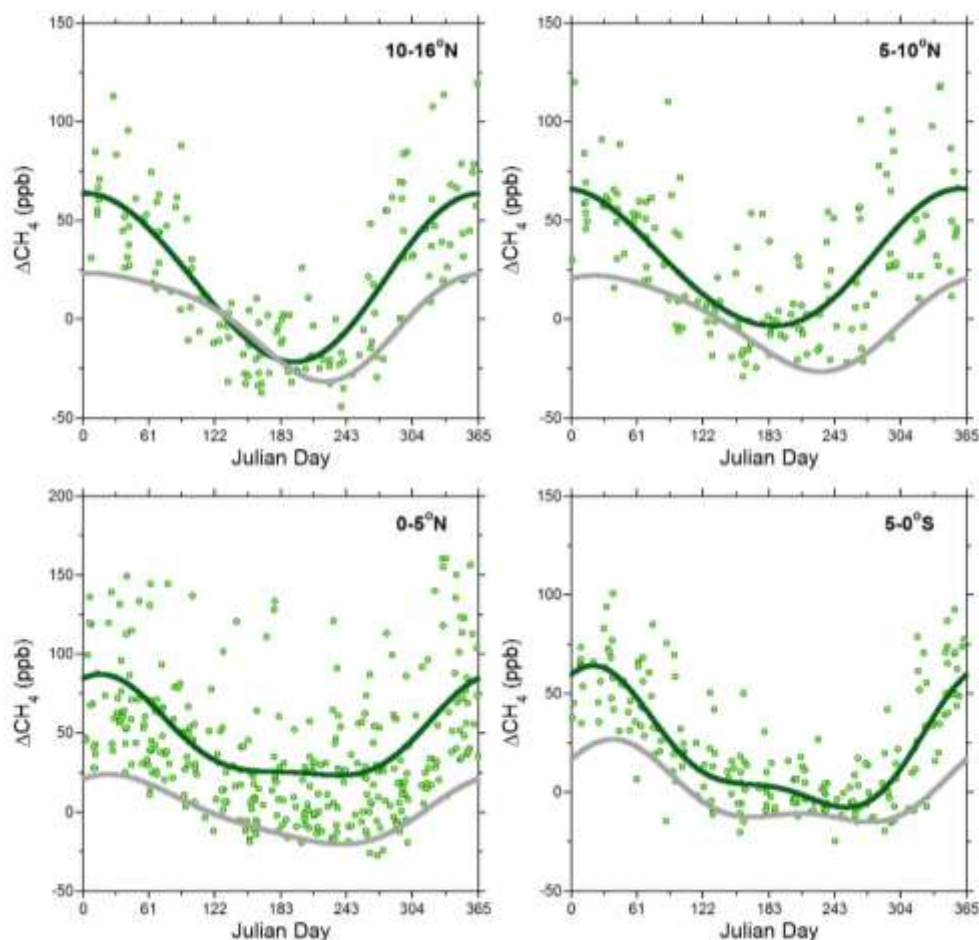


図 1 2 東南アジア航路とオセアニア航路の各緯度帯 (5-0°S 0-5°N 5-10°N 10-16°N) における CH₄ 濃度の平均的な季節変動成分の比較。緑および灰色実線は東南アジア航路とオセアニア航路における平均的な季節変動成分を表す。また、東南アジア航路での観測結果を各年の 1 月 1 日からの日数 (ユリウス日) に対して緑丸印でプロットした。なお、図 1 2 ~ 図 1 5 の各図においては、オセアニア航路側のトレンド成分が除かれた結果がプロットされている。

は 1-2 月頃に極大値を、8-9 月頃に極小値となる明瞭な季節変動が認められた。この季節変動は、北半球における CH₄ の季節変化とほぼ一致する。一方、東南アジア航路の季節変動はオセアニア航路での季節変動を下限としてそれよりも常に濃度が高くなっている。特に緯度帯 0-5°N では年間を通じて 50 ppb 以上高濃度となっているが、それ以外の緯度帯では 12-1 月に濃度差が広がり 5-8 月は濃度差が小さくなるのが分かる。特に、緯度帯 5-10°N と 10-16°N では 5-6 月に濃度差がなくなり、東南アジア航路でもバックグラウンド濃度に近い値になっていることが分かる。このような変動は観測領域付近の CH₄ 発生量や大気輸送の季節変動と密接な関連があると予想され、今後、モデルによる解析を進める必要がある。

CO の時系列 (図 1 0) を見るといずれの緯度帯においても明瞭な増加・減少トレンドは認められなかった。また、東南アジア航路では極端に高い濃度がしばしば観測された。CH₄ の場合と同様に、東南アジア航路とオセアニア航路での通年での濃度の違いを詳しく見るために、各緯度

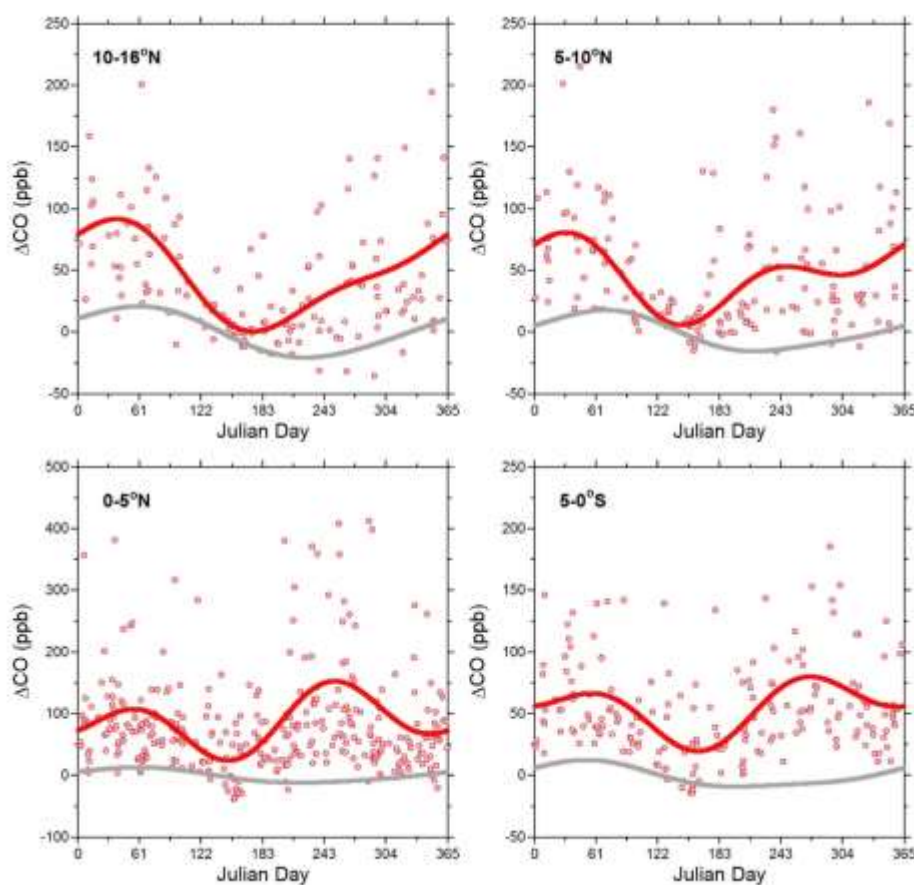


図 1.3 東南アジア航路とオセアニア航路の各緯度帯（5-0°S 0-5°N 5-10°N 10-16°N）における CO 濃度の平均的な季節変動成分の比較。

帯における平均的な季節変動成分を図 1.3 にプロットした。オセアニア航路の結果を見ると、CO 濃度は 2-3 月頃に極大値、7-8 月頃に極小値となる季節変動が認められたが、赤道付近（5°S - 5°N）では季節変動の振幅は非常に小さい。一方、東南アジア航路の季節変化は、CH₄ の場合と同じように、オセアニア航路の季節変動を下限としてそれより常に濃度が高くなっていることが分かる。特に緯度帯 0-5°N では平均値でも 100 ppb 以上高濃度となる場合もある。CO は主に不完全燃焼過程で発生することから、バイオマス燃焼や油田・ガス田からのフレアリングからの放出が緯度帯 0-5°N で多いことを示唆している可能性がある。ただし、CO は船舶の排気ガスにも含まれることから自船の影響も排除できないため、今後観測データを精査する必要がある。しかし、いずれの緯度帯でも 5-6 月に濃度差が小さくなり、緯度帯 5-10°N と 10-16°N では両航路での濃度差がほぼゼロになることが分かる。

N₂O の時系列（図 1.1）も明瞭な増加トレンドが認められ、4 つの緯度帯における 2007 年以降の平均増加率は、オセアニア航路で 0.89 ± 0.01 ppb/yr、東南アジア航路で 0.95 ± 0.02 ppb/yr と、東南アジア航路で若干高め増加率となった。東南アジア航路とオセアニア航路の各緯度帯における平均的な季節変動成分を見ると（図 1.4）、N₂O 濃度は 1-2 月頃に極大値、7-8 月頃に極小値となる季節変動が認められた、いずれの緯度帯でも季節変動の振幅は非常に小さい。東南ア

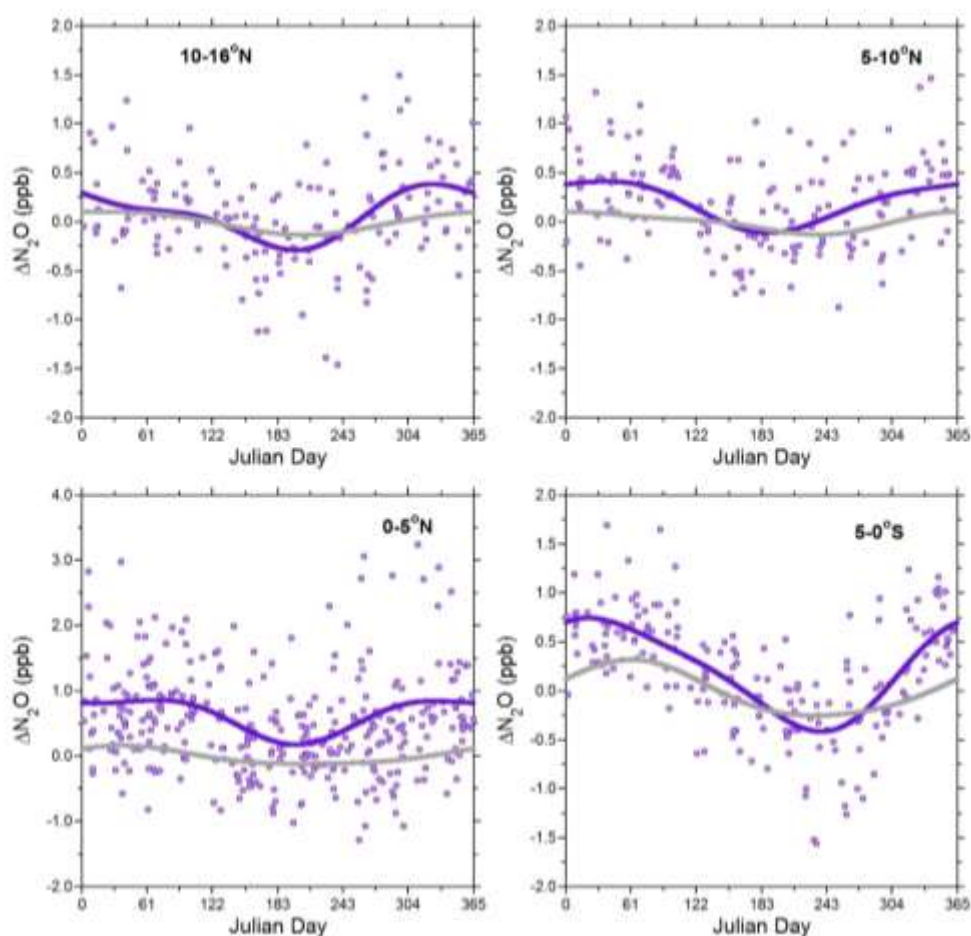


図 1 4 東南アジア航路とオセアニア航路の各緯度帯 (5-0°S 0-5°N 5-10°N 10-16°N) における N_2O 濃度の平均的な季節変動成分の比較。

ジア航路の緯度帯 0-5°N では年間を通じてオセアニア航路よりも高濃度となっており、この緯度帯に N_2O の発生源の存在を示唆している可能性がある。それ以外の緯度帯では、濃度の極大時に東南アジア航路で高濃度となるが、極小時には東南アジアとオセアニア航路で濃度差はゼロになる。

SF_6 の時系列 (図 1 1) 明瞭な増加トレンドを示し、4 つの緯度帯における 2007 年以降の平均増加率は、オセアニア航路で 0.31 ± 0.01 ppb/yr、東南アジア航路で 0.32 ± 0.01 ppb/yr とほぼ同じであった。一方、季節変動を見ると (図 1 5)、1-2 月頃に極大値、8-10 月頃に極小値となるが、 N_2O と同様にあまり明瞭ではない。東南アジア航路とオセアニア航路の季節変化を比較すると、極大時には東南アジア航路で高濃度となったが、それ以外では両者の差はほとんど見られなかった。 CH_4 や CO 、 N_2O の場合、東南アジア航路の緯度帯 0-5°N でオセアニア航路よりも特に高濃度となる傾向が見られたが、 SF_6 の場合は特にそのような傾向は確認できなかった。この結果は、 SF_6 は電気絶縁体や半導体製造で使用されるものからのリークといった人為的な発生源しかないことから、東南アジア域における SF_6 の放出量がそれほど大きくないことと整合的な結果となった。

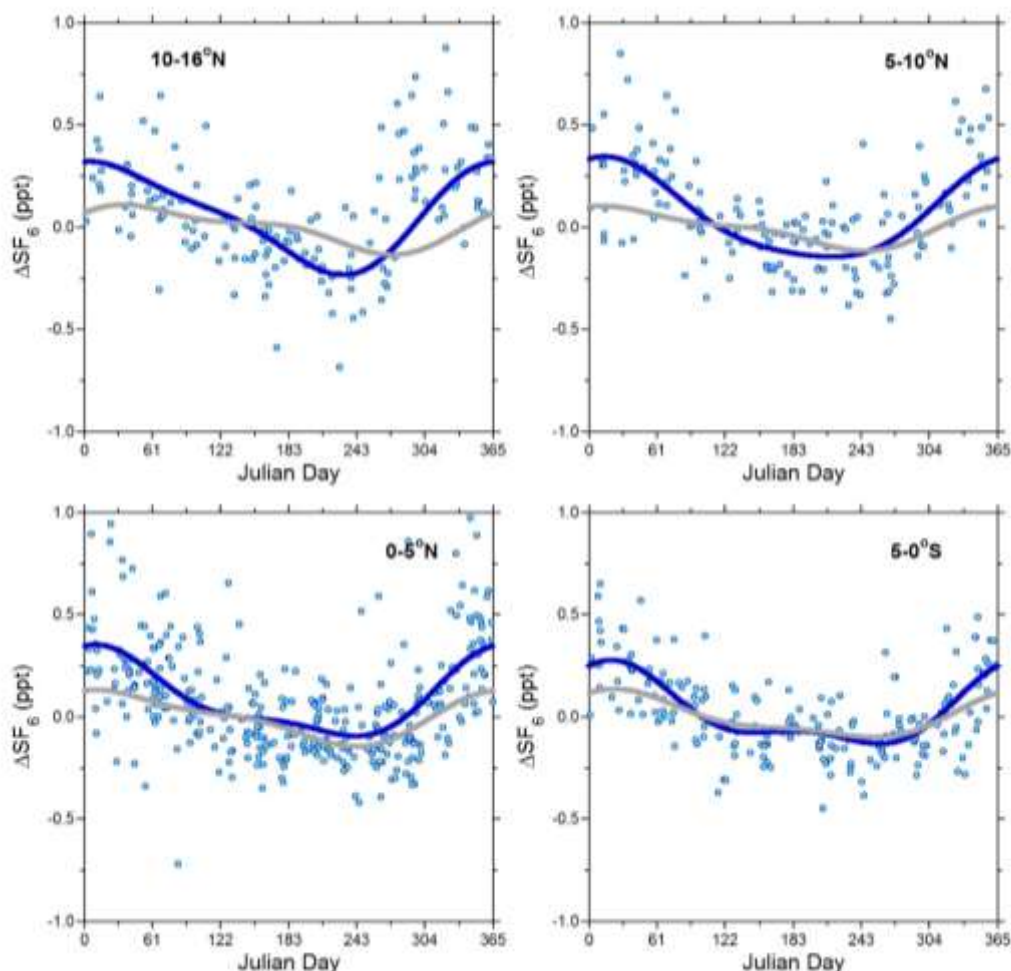


図 1 5 東南アジア航路とオセアニア航路の各緯度帯（5-0°S 0-5°N 5-10°N 10-16°N）における SF₆濃度の平均的な季節変動成分の比較。

（2）アジア・オセアニア地域における短寿命大気汚染物質の変動と分布の特徴

① オセアニア航路と東南アジア航路における対流圏オゾン・CO・PM_{2.5}の濃度変動

図 1 6 に各季節におけるオゾン濃度の緯度分布を、オセアニア航路と東南アジア航路に分けて示す。まず、オセアニア航路のデータを見てみると、データに多少のばらつきがあるものの、南北両半球にわたる緯度勾配のベースラインを視覚的に同定することができる。このベースラインは、北半球の冬季においては北半球が南半球よりも高く、南半球では 10-20 ppb でほぼ一定であるが、赤道付近を境にして北半球で濃度が上昇し、北緯 30 度では 40-50 ppb になっている様子が見て取れる。また、春季においてもほぼ同様な傾向であるが、南半球中緯度で濃度が 20-30 ppb に上昇し、北半球でも濃度が大幅に上昇していることが分かる。北緯 30 度では 60 ppb 程度にもなっている。また、東南アジア航路のデータはオセアニア航路よりも緯度カバレッジが狭く、南緯 10 度から北緯 40 度までしかないが、特に北緯 20 度以北ではオセアニア航路と非常に類似した濃度レベルを示した。これは、東南アジア航路の経度帯が 120 度付近、オセアニア航路の経度

帯が 140 度付近であり、経度帯が近いことが挙げられる。また、オセアニア航路といえどもこの緯度帯では大陸からのアウトフローの影響を受けていることが示唆される。一方、北半球の夏季においては、ベースラインの緯度勾配は、南半球が北半球よりも高い傾向を示し、南半球中緯度で 30-40 ppb、北半球中緯度で 10-20 ppb であった。ただし、北半球中緯度では大陸に比較的近いことから、特に北緯 30 度以北でイベント的高濃度が見られることに少し注意を要する。秋季も同様であるが、夏季に比べてイベント的高濃度が北半球中緯度でより多く見られるのは春季と似た傾向であった。このように、南北両半球にわたる緯度分布のシーソー的な特徴を良く捉えることができた。

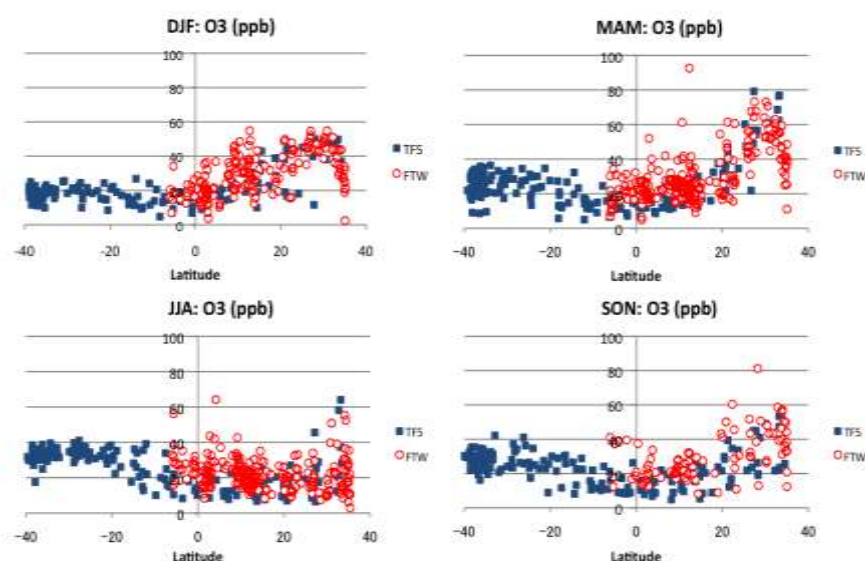


図 16 各季節（冬：DJF、春：MAM、夏：JJA、秋：SON）におけるオゾン濃度の緯度分布。TF5 (■) はオセアニア航路、FTW (○) は東南アジア航路におけるデータを示す。

図 17 に各季節における一酸化炭素 (CO) 濃度の緯度分布を、オセアニア航路と東南アジア航路に分けて示す。まず、オセアニア航路のデータを見てみると、オゾンよりも明瞭に、南北両半球にわたる緯度勾配のベースラインを同定することができる。やはりオゾンと同様に、このベースラインは北半球の冬季においては、CO 濃度は北半球が南半球よりも高く、南半球では約 50 ppb であるが、赤道付近を境にして北半球では濃度が上昇し、北緯 30 度では 100-200 ppb になっている様子が見て取れる。春季においてもほぼ同様な傾向である。東南アジア航路のデータは、ベースラインではオセアニア航路と非常に類似した濃度レベルを示すものの、最大で 600 ppb にもなる高濃度ピークが非常に多く、濃度変動を支配していることが分かる。これは大気中で二次的に生成するオゾンとは異なり直接的に排出される CO ならではの特徴であると思われる。一方、北半球の夏季においては、ベースラインの緯度勾配は、南半球が北半球よりも若干高い傾向を示し、南半球中緯度で 60 ppb、北半球中緯度で 50 ppb であった。秋季も同様であるが、南半球中緯度で 80 ppb、北半球中緯度で 100 ppb であった。このように、CO についても南北両半球にわたる緯度分布のシーソー的な特徴を良く捉えることができた。また、東南アジア航路の CO の濃度増大が、夏季にも秋季にも見ることができ、一年を通じた排出であると推測できる。

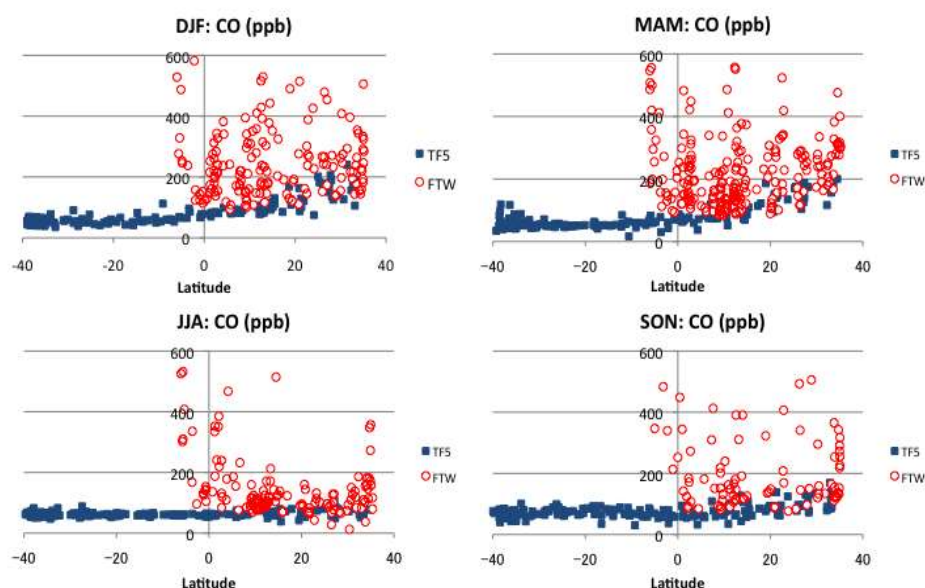


図 17 各季節（冬：DJF、春：MAM、夏：JJA、秋：SON）におけるオゾン濃度の緯度分布。TF5（■）はオセアニア航路、FTW（○）は東南アジア航路におけるデータを示す。

図 18 に各季節における $PM_{2.5}$ とブラックカーボン濃度の緯度分布を、東南アジア航路について示す。オセアニア航路ではこれら $PM_{2.5}$ とブラックカーボンの測定器を設置していないので、ここでは南緯 10 度から北緯 40 度までの分布のみを見る。エアロゾルの大気中寿命は短いため、ガスと異なりベースラインを同定することは困難であった。全ての季節において、どの緯度帯においても大きな濃度変動を示し、 $PM_{2.5}$ の平均値はどの季節も約 $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。一方、ブラックカーボンは平均で $PM_{2.5}$ の約 10% の濃度であった。 $PM_{2.5}$ とブラックカーボンの濃度増大が同時に起こっているときと、そうではないときがあり、これは発生源の違いを反映しているものと思われ、今後の詳細な解析で明らかになるものと思われる。

図 19 にオセアニア航路と東南アジア航路で観測されたデータに基づいて作成された、各緯度帯におけるオゾンと一酸化炭素濃度の季節変化を示す。まずオセアニア航路のデータを見ると、

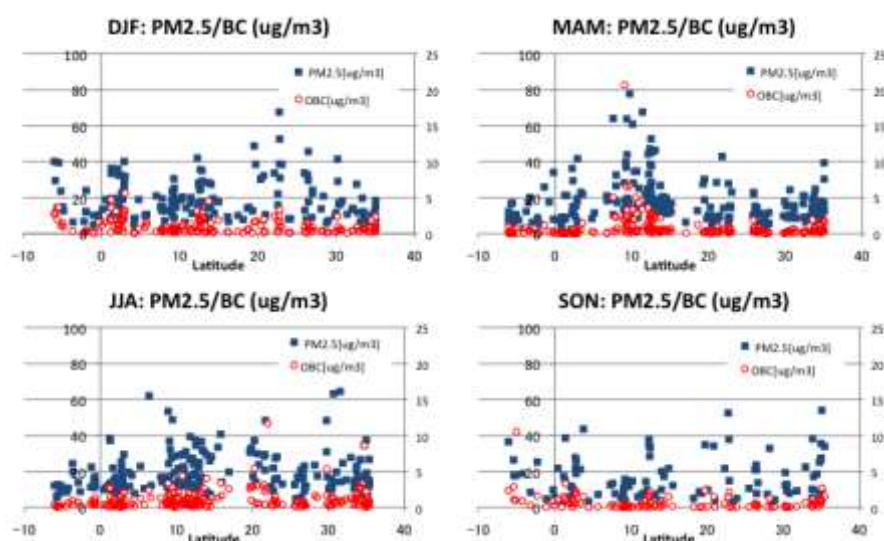


図 18 各季節（冬：DJF、春：MAM、夏：JJA、秋：SON）における $PM_{2.5}$ （■、左軸）とブラックカーボン（○、右軸）濃度の緯度分布。観測は東南アジア航路でのみ行われている。

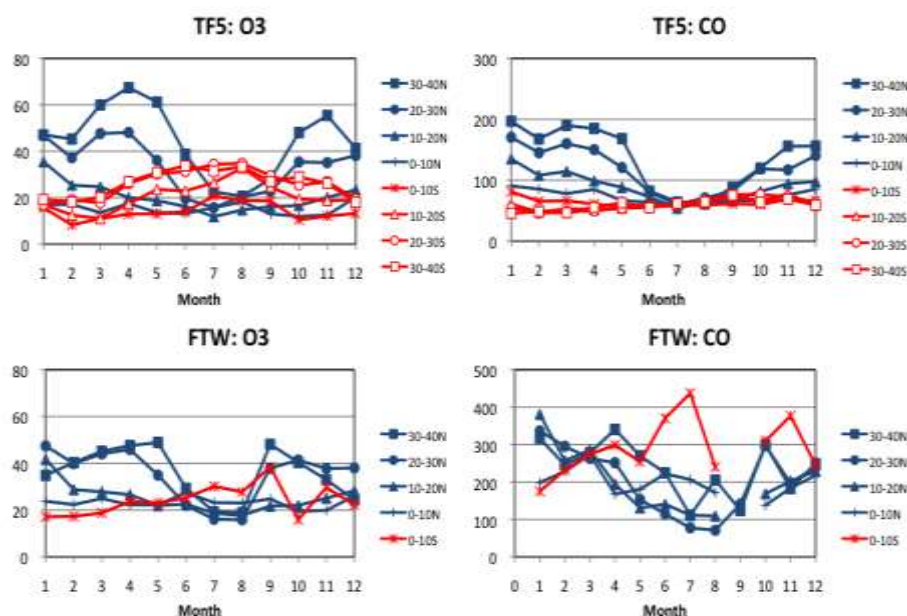


図 19 オセアニア航路 (TF5) と東南アジア航路 (FTW) で観測された各緯度帯におけるオゾン (左図) と一酸化炭素 (右図) 濃度の季節変化。塗りつぶされたシンボルは北半球、中抜きシンボルは南半球におけるデータを示す。

北半球においては、春季に極大となり夏季に極小となる季節変化が見られた。春季よりは小さいものの秋季にも小さな第2極大が見られた。また、季節変化の振幅は高緯度になるほど大きく、北緯 30-40 度では 40 ppb にも達した。また、北緯 20 度以南から赤道にかけては季節性が見られなかった。一方、南半球においては、(北半球の) 夏季 (つまり、南半球の冬) に極大となり (北半球の) 冬季に極小となる季節変化が見られた。ただし、季節変化の振幅は小さく、10 ppb 程度であった。季節変化の振幅は高緯度になるほど大きく、南緯 20 度以北から赤道にかけては季節性が見られなかった。この特徴は北半球と同じである。東南アジア航路のデータでも、概ねオセアニア航路と同様な傾向が見られた。ただし、南緯 10 度から赤道にかけての緯度帯では、東南アジア航路のオゾンはオセアニア航路よりも約 5-10 ppb 増大しており、この地域では年間を通じてオゾンが増大していることが分かった。

COについて見ると、オセアニア航路のデータからは、北緯10度以北で明瞭な季節変化が見られた。季節変化の形状がオゾンとは若干異なり、冬～春にかけて幅広なピークを示したが、これはCOが一時排出されていることと、その大気中寿命が1-2ヶ月と比較的長いことによると思われる。季節変化の振幅は、北緯30-40度で100-150 ppbであった。南半球では北半球と位相が逆転しているが、季節変化の振幅は非常に小さく30 ppb程度であった。東南アジア航路のデータは、オセアニア航路とは対照的で、どの緯度帯でもオセアニア航路よりも高いCO濃度を示した。特に、南緯10度～赤道では顕著で、年間を通じて200-400 ppbもの濃度を示した。当該地域でCOの大きな発生源があることを示唆している。

図 20 に東南アジア航路で観測されたデータに基づいて作成された、各緯度帯におけるPM_{2.5}とブラックカーボン濃度の季節変化を示す。平均濃度としては、北半球の赤道～北緯40度までの地域でPM_{2.5}が10-20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ブラックカーボンが0.5-1.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、季節変化は見られなかった。特徴的なのは、南緯10度～赤道で、4月～9月にかけてPM_{2.5}で40-60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ブラックカーボンで2-6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ にもおよぶ月平均濃度となり、この地域において大きな発生源が存在することが示唆された。

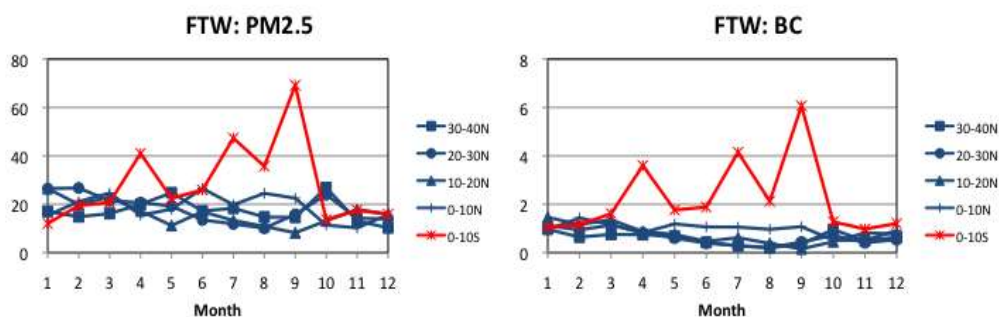


図 20 東南アジア航路 (FTW) で観測された各緯度帯における PM_{2.5} (左図) とブラックカーボン (右図) 濃度の季節変化。

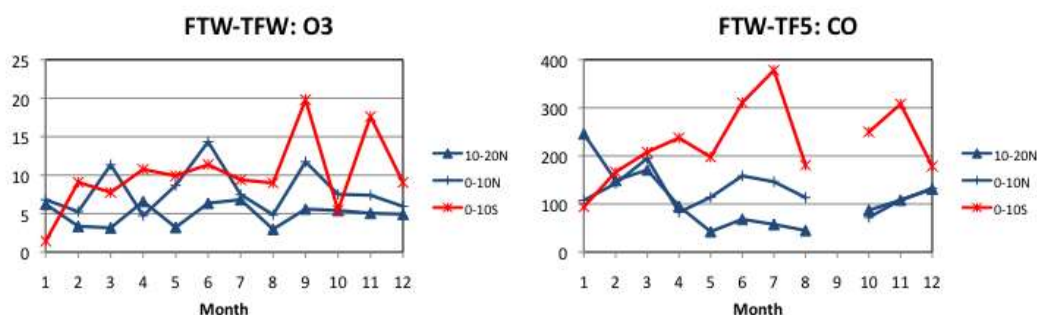


図 21 オセアニア航路 (TF5) と比較した、東南アジア航路 (FTW) で観測されたオゾン (左図) と一酸化炭素 (右図) 濃度の差の季節変化。両航路で重なっている緯度帯である北緯 20 度～南緯 10 度までを示した。

図 21 にオセアニア航路と比較した、東南アジア航路で観測されたオゾンと一酸化炭素濃度の差の季節変化を示す。両航路で重なっている緯度帯のうち、顕著な差が見られた北緯 20 度～南緯 10 度までの 3 緯度帯を示した。赤道～北緯 10 度、北緯 10 度～北緯 20 度の 2 つの緯度帯では、年間を通じて 5 ppb 程度の差異が見られた。このことは、東南アジア航路 (東経 100-110 度) では、オセアニア航路 (東経 150 度) と比較して、地域的にオゾンが増大していることを示す。さらに、南緯 10 度～赤道の緯度帯ではこの増大が 10 ppb 程度にまで増えていることが分かる。CO についても同様で、赤道～北緯 20 度では 100 ppb 程度、南緯 10 度～赤道では 200 ppb 程度の増大が見られた。

② オセアニア航路と東南アジア航路における対流圏オゾンのトレンド

図 22 に 2006 年以降のオセアニア航路で得られているオゾンデータを 10 度毎に整理して緯度帯別に時系列を作成したものを示す。先に見たように、特に中緯度帯 (南北両半球) において

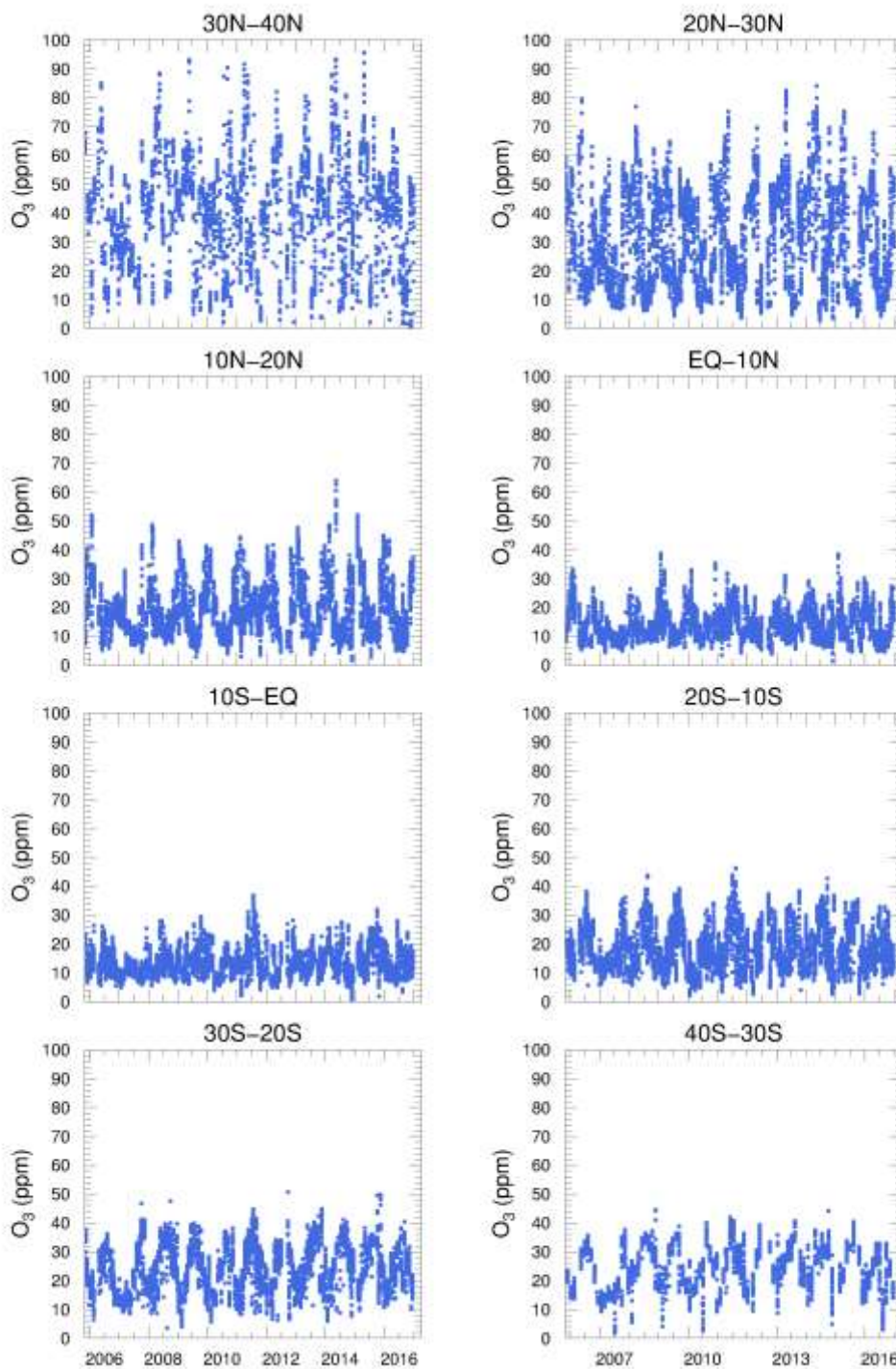


図 2.2 オセアニア航路 (TF5) で観測された各緯度帯におけるオゾン濃度の時系列

は明瞭な季節変化が見て取れる。中緯度帯から亜熱帯を経て熱帯に近づくにつれて季節変化の振幅は小さくなり、熱帯域では非常に小さな振幅しか示さない。濃度レベルも熱帯では低く、これは太平洋上の清浄な大気中でオゾンがネットに消失傾向にあることを示しているものと考えられ

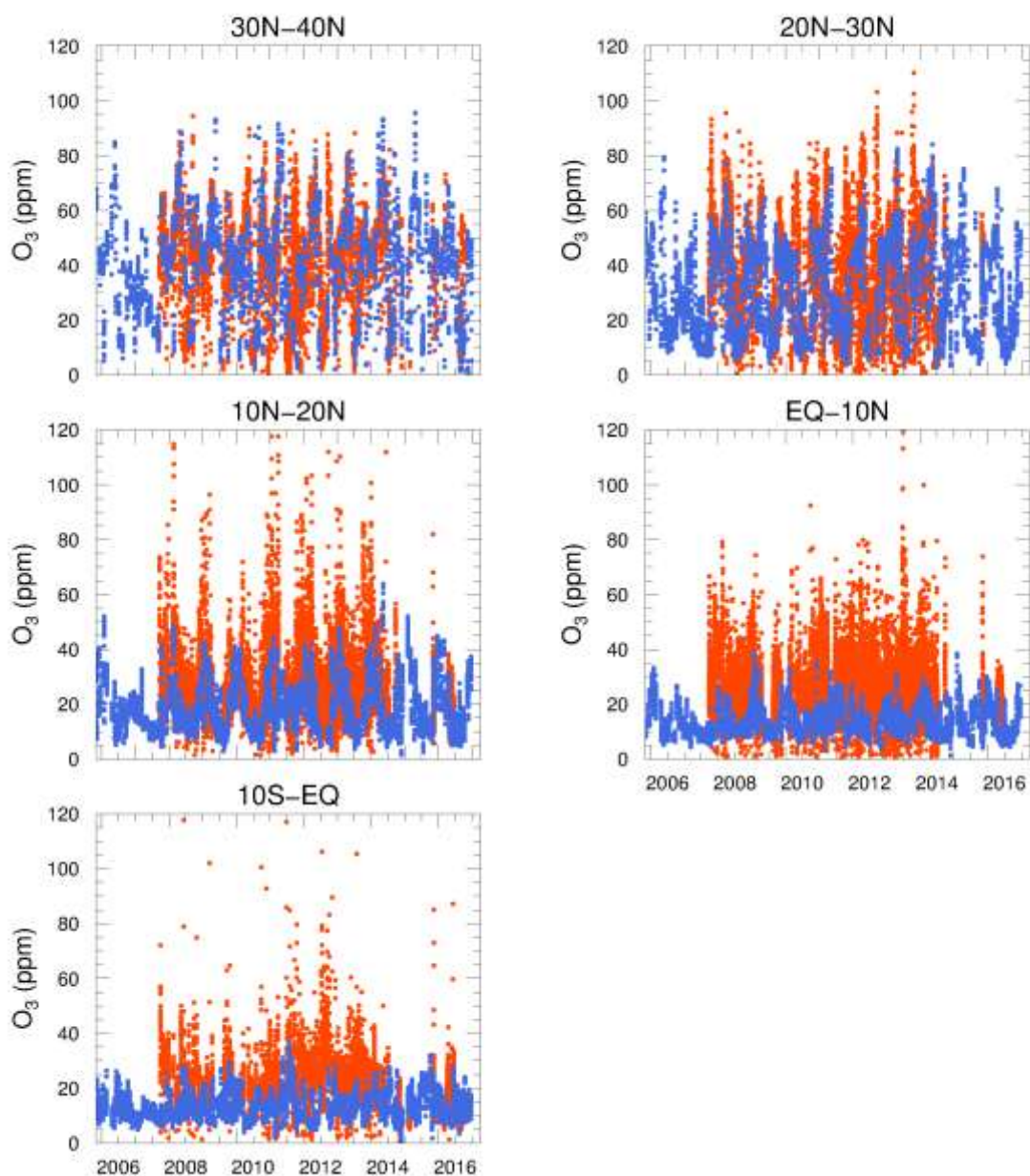


図 2 3 オセアニア航路（青色）と東南アジア航路（赤色）で観測されたオゾン濃度の比較

る。対照的に、中緯度帯、特に北半球では濃度レベルが高く、またその変動も大きい。窒素酸化物や揮発性有機化合物を前駆物質として正味でオゾンが生成していることが示唆される。季節変動や年々変動には前駆物質の放出やオゾンの光化学（生成・消失）だけではなく大気の循環や気象場とも関係するため、各緯度帯における支配要因の解明は、今後、化学輸送モデルを用いた解析が必要である。

東南アジア航路では、オゾンデータを10度毎に整理して5つの緯度帯別に時系列を作成した。図 2 3 に5緯度帯（北緯30度から南緯10度）において、オセアニア航路で得られたデータと比較してこの地域の特徴を示す。北緯10度以北では、オゾン濃度が太平洋上の濃度とほぼ一致してい

るか、そうでなくてもあまり変わらないことがわかる。一方、北緯10度以南の熱帯域では、東南アジア航路におけるオゾン濃度は概してオセアニア航路よりも高い値を示している。熱帯域では豊富な太陽光が一年を通じて得られるため、前駆物質の濃度レベルによってオゾンの生成が大きく左右されることが考えられる。前駆物質濃度が低い場合オゾンがネットで消失となっているオセアニア航路とは対照的に、前駆物質濃度が高い東南アジア航路ではオゾンがネットで生成となり、全体的に高いオゾン濃度をもたらしていると推測される。

(3) 定期貨物船舶を用いた大気モニタリング手法およびシステムの高度化

①キャビティリングダウン式分析計とボトルサンプリングの比較によるメタン計測の高度化

キャビティリングダウン式分析計 (WS-CRDS) によるメタン (CH₄) の現場での連続計測を高度化するために、大気試料を採取して持ち帰り分析を行ったボトルサンプリングによる測定値との比較を行った。手法が確立し世界的に普及しているボトルサンプリング法と比較することは、船舶における連続観測データの有効性を考察する上で有効な方法といえる。GPS 制御により予め設定された地点で採取されたボトルサンプル中の CH₄ 濃度は水素炎イオン化検出器付きガスクロマトグラフ (GC/FID) を用いて国立環境研究所にて定量分析を行った。なお本報告では、国立環境研究所で維持している NIES09 スケールを基準とした CH₄ 標準ガスによって定量した値として報告する。

図 2 4 に日本-オセアニア航路の Trans Future 5 号 (TF5)、日本-東南アジア航路の Trans Future 1 号 (TF1) および Fujitrans World 号 (FTW) による各観測航海から得られた CH₄ の WS-CRDS による連続測定値 (in situ CH₄) と GC/FID によって現場で採取した大気試料を持ち帰り分析したボトルサンプリングの測定値 (flask CH₄) の関係を示す。3 隻全ての最小二乗法により算出された回帰直線の決定係数 (R²) は 0.99 以上であり、傾き (回帰係数) は 1 % 以内でほぼ 1 を示した。算出された傾きとその 95% 信頼区間 (TF5 は 0.993±0.01、TF1 は 0.989±0.01、FTW は 1.007±0.013) から、5 % 有意水準で in situ CH₄ と flask CH₄ との関係は 1 対 1 にあるといえる。切片についても、その 95% 信頼区間 (TF5 は 14.0±18.7 ppb、TF1 は 21.8±18.7 ppb、FTW は -11.8±24.4 ppb) から、TF1 を除いて 5 % 有意水準で切片はゼロであると

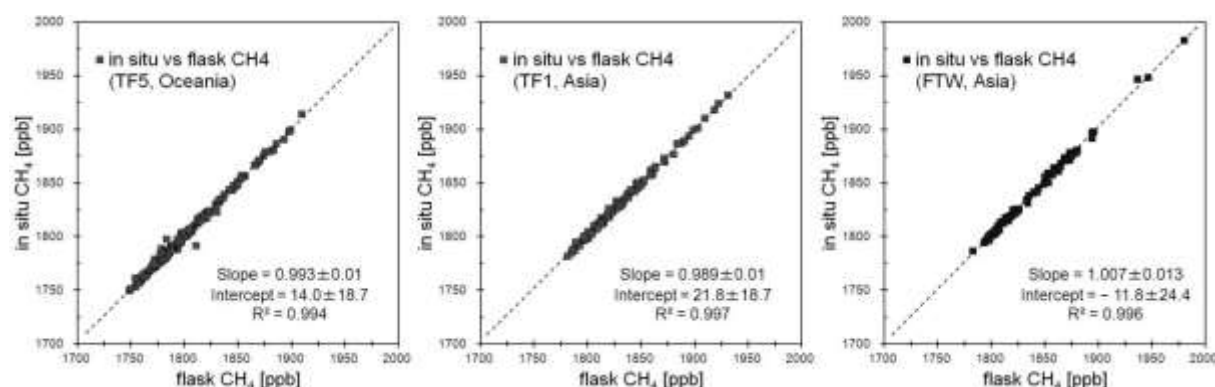


図 2 4 日本-オセアニア航路の TF5 号 (左)、日本-東南アジア航路の TF1 号 (中) および FTW 号 (右) による観測航海から得られたメタン (CH₄) の連続測定値 (in situ CH₄) と GC/FID によって分析されたボトルサンプリングの測定値 (flask CH₄) の関係。

いえる。また in situ CH₄ と flask CH₄ との関係は、約 1700–2000 ppb と広い測定範囲にわたって 1 対 1 の関係にはあるものの、関係から外れている測定データの存在も全測定値に対して僅かではあるが確認できる。この原因は WS-CRDS による連続測定値の算出方法にある可能性がある。つまり in situ CH₄ は、WS-CRDS 連続測定値の 10 分間の平均値から算出しているため、大気中の CH₄ 濃度に大きな変動が生じていた場合、瞬間的な CH₄ 濃度を反映するボトルサンプリングの測定値とは異なり、この変動による影響を受けることになる。従って、1 対 1 の関係から外れているデータについては、測定法の違いで説明できる可能性がある。また、CH₄ 濃度に依存した in situ CH₄ と flask CH₄ との関係はみられないことから、ガラスボトルに大気試料を採取してから分析するまでの間に CH₄ はフラスコ内で有意な濃度の変動が無かったことも示唆している。

図 2 5 は各船舶の in situ CH₄ と flask CH₄ の差分値 (in situ CH₄ – flask CH₄) の時系列変化を示す。全ての船舶で得られた差分値の平均は、世界気象機関の全球大気監視計画 (WMO/GAW)

における研究所間の差として、メタンについての要求水準 (World Meteorological Organization/Global Atmosphere Watch inter-laboratory compatibility) である ± 2 ppb 以内 (TF5 は 1.1 ± 1.9 ppb、TF1 は 1.0 ± 1.9 ppb、FTW は 1.5 ± 1.8 ppb) にあった。FTW の 2012 年 5~6 月の結果をみると差分値がゼロよりも有意に高いように見える。TF5 や TF1 の結果ではそのような増加はみられないことから、FTW に搭載している WS-CRDS 連続計に問題が生じていた可能性が考えられる。また 2012 年からの傾向をみてみると、TF1 と FTW には有意なトレンドは認められないが、TF5 は差分値が若干ながら統計的に有意な増加傾向 (1.2 ± 0.6 ppb/year) が見られる。この増加傾向の考えられる原因として、WS-CRDS 連続計のゼロまたは感度ドリフト、もしくは、WS-CRDS 連続計の計測値を定量するために用いている CH₄ 標準ガス容器内の CH₄ 濃度の増加が挙げられる。TF5 にのみ見られた増加傾向が今後も有意なものであるかどうかを明らかにするためには更なるデータの蓄積が必要であり、今後も各船舶によって得られるデータの妥当性を維持するために注意深く管理する必要がある。

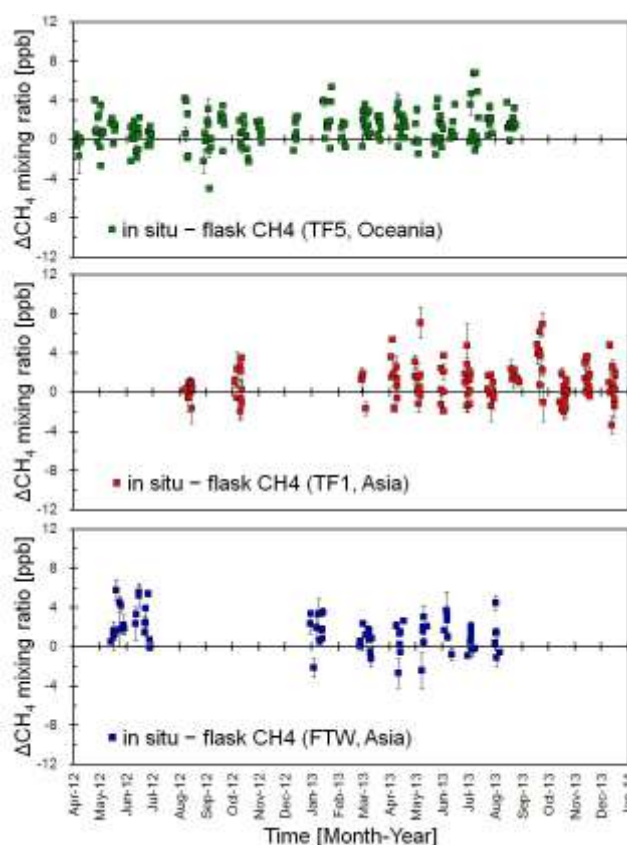


図 2 5 日本–オセアニア航路の TF5 号、日本–東南アジア航路の TF1 号および FTW 号による観測航海から得られたメタンの連続測定値 (in situ CH₄) と GC/FID によって分析されたボトルサンプリングの測定値 (flask CH₄) の差分値 (in situ CH₄ – flask CH₄) の時系列変化

以上の結果から、バックグラウンドで変化の少ないオセアニア航路、そして変動の大きなアジア航路ともに、CH₄濃度のWS-CRDS連続計とGC/FIDによって持ち帰り分析したボトルサンプリングの測定値は概ね良い一致を示しており、船舶上での観測データの妥当性が示された。

(4) 連続観測で見つかった東南アジアに特有な温室効果ガスの放出源の解析

① 東南アジアにおける温室効果ガスの分布および変動の特徴

本研究では当初、CH₄濃度の観測値は自動大気採取装置を用いて観測航路上の特定の場所で採取した大気試料を持ち帰り分析するボトルサンプリング法によってのみ取得してきた。しかしながら、ボトルサンプリング法では、時間的・空間的な分解能が低いことから、アジア域における固有の発生源からのCH₄濃度の動態を捉えるためには十分とはいえなかった。このことから2009年9月より日本-アジア航路を航行するFTW号にキャビティリングダウン式分析計(WS-CRDS)を搭載し、航路上のCH₄の連続観測を開始した。しかし、WS-CRDSによる観測開始当初から経済情勢の変化によりFTW号は定期便としての航行を一時停止するなど不安定な状況が続いていた。この状況から2010年11月には、FTW号と同じくアジア航路を航行するTF1号を利用した観測を立ち上げ、FTW号の定期便運航の中断時にはWS-CRDSをFTW号からTF1号に移設搭載することでWS-CRDSによるCH₄の連続観測を維持してきた。しかしながら、WS-CRDS自体にもトラブルが生じることが多く、通年にわたって長期間安定した測定を実施することができていなかった。そこで2012年度中途からFTW号とTF1号の両船共にWS-CRDSを設置することで、これらの課題の解決を試みた。時を同じくして経済情勢も安定し、結果としてFTW号とTF1号ともに継続して定期便としての運航が行われるようになったために、TF1号においては2013年に初めて通年にわたりCH₄濃度の航路上における時間的・空間的に密な連続測定値を得ることができた。

図26は、各季節を代表して、2013年3月(春季)、6月(夏季)、9月(秋季)、そして12月(冬季)における、日本-東南アジア航路のTF1号においてWS-CRDS連続計で観測した洋上空気中のメタン(CH₄)、さらに二酸化炭素(CO₂)、一酸化炭素(CO)、そしてオゾン(O₃)の各濃度の空間分布を示している。これらの図に示した通年にわたる観測結果から、主に赤道以北のCH₄濃度の空間分布は、アジア大陸からの季節風の吹出し方に対応して変化しており、また東アジアの都市汚染など人為起源を主とした発生源によって大きく支配されていることが分かった。その濃度は夏季に低く、冬季に高くなっており、同時観測したCO₂と類似する季節変化を示していた。各季節において特徴的なCH₄の観測値を捉えた例として、12月(TF1-209航海)の冬季にみられたタイランド湾におけるCH₄の極大値(ピーク)が挙げられる。このピークは、中国大陸付近の航路上のCH₄濃度よりも高くなっており、タイまたはベトナムの近隣諸国における何らかの排出源からの影響を受けている可能性を示唆している。図には示さないが、11月のTF1-208航海からみられ始めたタイランド湾におけるこのCH₄のピークは、秋季から北東の季節風が吹き始める時期とよく対応していた。特に、メコン川周辺で高濃度の観測値が得られていることから、同河川の河口付近におけるデルタ地帯に広がる水田から放出されたCH₄による影響を捉えた可能性を示唆している。

次に、9月（TF1-206 航海）の秋季の観測結果をみるとボルネオ島とタイランド湾の一部において、CH₄濃度の局地的なピークがみられる。このピークと対応してCO₂やCOの濃度は増加していないことから、オイルリグを発生源とする局地的な影響と考えられる。また観測したCH₄濃度のピーク値は3000 ppb 近くにまで達していた。オイルリグを発生源とするCH₄の大気への放出は季節を問わず生じており、各航海における観測航路と卓越する季節風との関係により、他の季節においても局地的なCH₄のピークとしてボルネオ島とタイランド湾の一部の航路上のほぼ同じ位置において捉えられていた。今回の観測結果では、春季のTF1-200 航海とTF1-201 航海、夏季のTF1-204 航海などでもCH₄濃度のピークがスポット的にみられたが、秋季のTF1-206 航海におけるボルネオ島周辺の観測では線的に捉えられていた。

さらに6月（TF1-203 航海）の夏季には、マレー半島周辺の広範囲にわたる航路上で他の季節よりも非常に高いCH₄濃度を観測している。6月の季節風は南寄りの方向から吹いていることから東アジアからの影響は考えにくい。マレー半島周辺の観測航路は弱い南東風の影響下であり、スマトラ島の風下に位置することが分かる。燃烧発生源のトレーサーとして用いられるCOの観測値はスマトラ島北西沿岸域で高濃度であり、これに同期してCH₄とCO₂もやはり同じ沿岸域で高

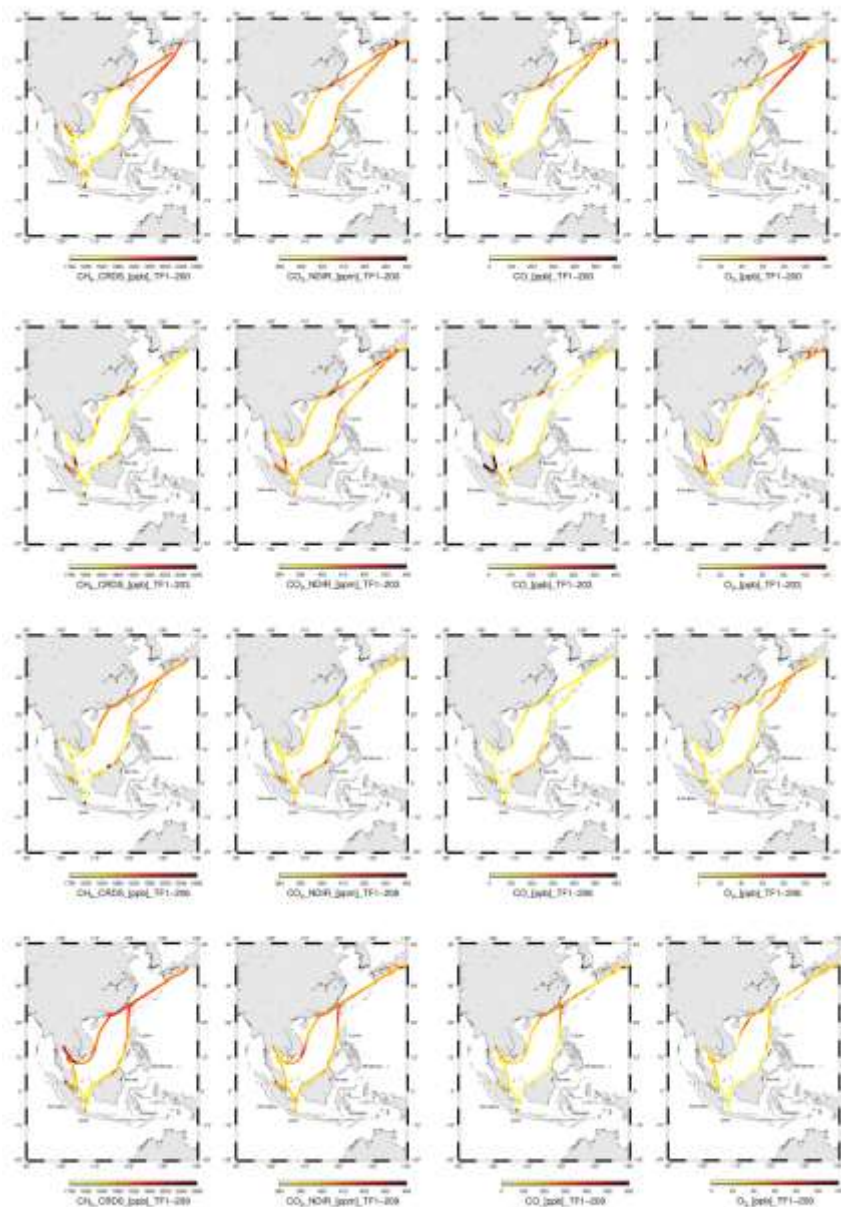


図26 3月（春季・TF1-200 航海）、6月（夏季・TF1-203 航海）、9月（秋季・TF1-206 航海）、そして12月（冬季・TF1-209 航海）における、日本－東南アジア航路のTF1号で測定したCH₄、CO₂、CO、そしてO₃の観測値の空間分布。

濃度の観測値を得ている。CH₄ や CO₂ も燃焼発生源から放出される化合物であり、これらの結果はスマトラ島からの燃焼発生源からの放出を反映した観測結果であると考えられる。そして、この影響の主な原因は、連日メディアで大きく報道され、マラッカ海峡を越えてマレーシアやシンガポールに1997年以降の最悪水準の大気汚染をもたらしたスマトラ島で発生した森林火災によるものであると考えられる。

図27は火災が発生した2013年6月のTF1-203航海で観測した、マレー半島周辺の航路上におけるCO₂、CO、そしてO₃の濃度変動を示している。CO₂、CO、そしてCH₄の気体成分の時間変動は非常に良く対応し

ており、CO₂が最大で500ppmを超える値にまで達し、それに対応してCH₄の値は4000ppbを超えていた。COについても3000ppbを超える値となっているが、それを越えた時にCO₂やCH₄の変動と対応せず頭打ちになっている。残念ながら、COについてはアナログ出力でデータを取り込んでいたため、取込電圧値の設定上限値の関係上、これらの観測期間において頭打ちとなってしまう。また、空間分布から分かるように、これら高濃度の観測気体成分をもつ空気塊は、赤道付近の発生源から少なくとも北緯5度までと極めて広範囲に広がっていたことが分かる。

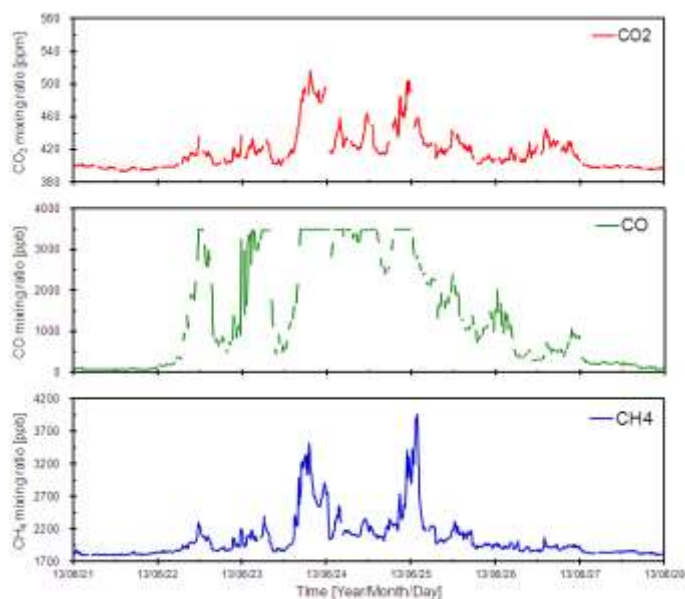


図27 火災が発生した6月のTF1-203航海で観測した、マレー半島周辺の航路上におけるCO₂、CO、そしてCH₄の時系列変動。

②非エルニーニョ年に発生したスマトラ島における大規模泥炭地火災

上述のように、2013年の6月から8月にかけて、日本-東南アジア航路のマレー半島周辺で一酸化炭素(CO)の大きな濃度増加が観測された。上記期間中にCOの濃度増加イベントは11回観測されており、COの濃度増加時には他の連続観測成分である二酸化炭素(CO₂)、メタン(CH₄)、オゾン(O₃)、ブラックカーボンの濃度も同期した増加が観測された。このCOの濃度増加イベントが地域的なCOの濃度分布に与えた影響を調べるため、大きなCOの濃度増加が観測されたマレー半島周辺の地域をマレーエリア(マレー半島東岸沖地域)、マラッカ&シンガポールエリア(マラッカ海峡およびシンガポール周辺の地域)の2つのエリアに分割し、今までのアジア航路における船舶観測で得られた結果をもとにそれぞれのエリアにおけるCOの時系列変化を調べた(図28)。2008年から2013年までの6月、7月、および8月に観測された6年間のCOの全月平均濃度の平均値はそれぞれマレーエリアで197、129、162ppbであり、マラッカ&シンガポールエリアでは366、217、205ppbであった。これに対し、2013年の6月、7月、および8月に観測されたCOの月平均濃度

はそれぞれマレーエリアで444、149、187 ppbであり、マラッカ&シンガポールエリアでは847、426、and 286 ppbであった（図29）。マレーエリアではCOの月平均濃度が2013年6月にアジア航路観測開始以来の最大値を示したが、続く7月および8月にはしばしば高濃度のCOが観測されたものの月平均値では過去の同月の値に対して大きな増加は見られなかった。マラッカ&シンガポールエリアでもCOの月平均濃度は2013年6月に過去最大値を示し、続く7月、8月にも比較的高い濃度が観測された。これらのCOの高濃度異常はマレーおよびマラッカ&シンガポールエリアのCOの濃度分布に影響を与える程の大規模な燃焼発生源からのCOの放出が東南アジア域で発生していたことを示唆した。

船舶観測の結果から示唆された燃焼発生源を特定するため、米国航空宇宙局によるアクアおよびテラ衛星に搭載されたMODISセンサー

（中分解能撮像分光放射計）によって2013年の6月から8月にかけて観測された地表における熱放射力（単位時間あたりに燃焼によって放出される放射熱）の強度分布を $0.25^{\circ} \times 0.25^{\circ}$ の空間分解能で調べた（図30）。熱放射力は燃焼した燃料バイオマスの総量と比例関係にあり、熱放射力

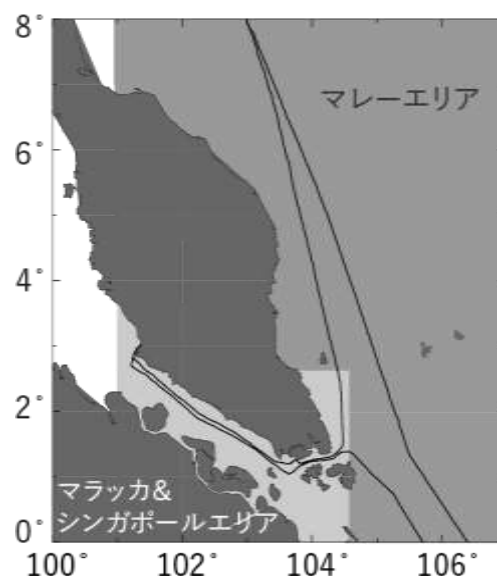


図28 マレーエリア（マレー半島東岸沖地域）とマラッカ&シンガポールエリア（マラッカ海峡およびシンガポール周辺の地域）。実線は船舶航路を示す。

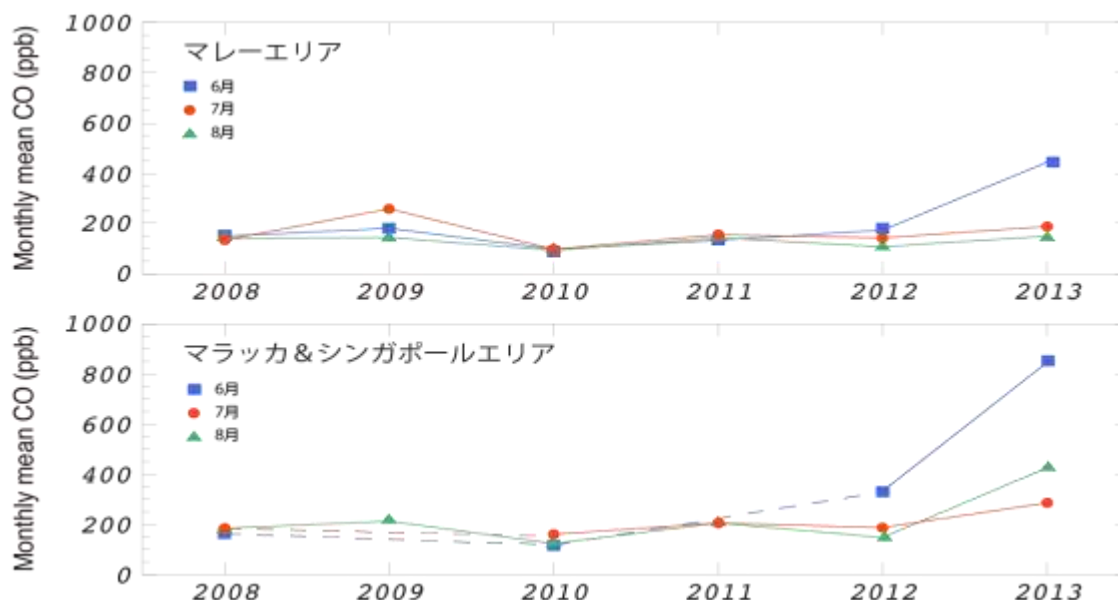


図29 東南アジア航路のマレー半島東岸沖、シンガポール・マラッカ海峡で観測された一酸化炭素の月平均値の時系列変化。データ欠損年を抜かしてデータ間を直線で結んだ場合は破線で示した。

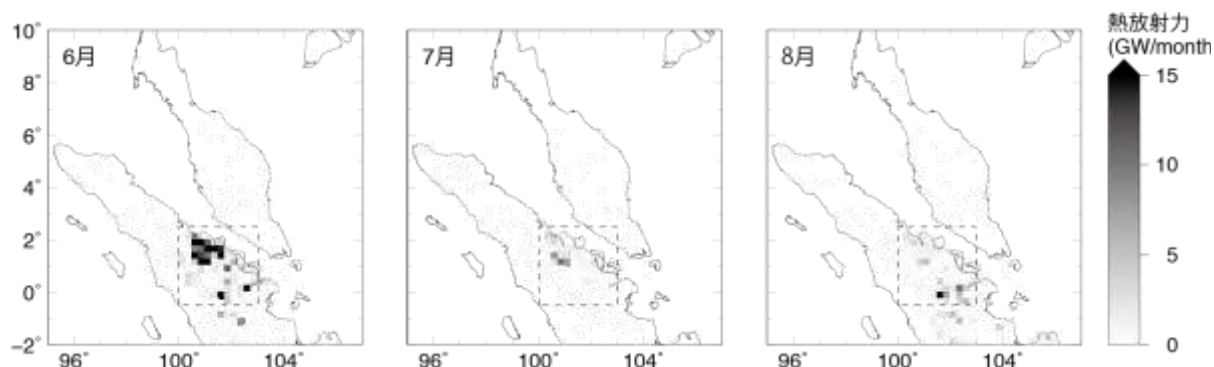


図30 東南アジア域における2013年6月、7月、8月の月間熱放射力の強度分布。図中の点線で囲まれたエリアは調査エリアを示す。

の強度は間接的にバイオマス燃焼によって放出されたCOの排出量を表す。月間の熱放射力の強度分布から、6月から8月にかけてマレー半島上にはほとんど熱放射が確認できなかったのに対し、中央スマトラに集中した熱放射があったことが明らかになった。そこで、スマトラ島における総熱放射力の時系列変化を調べたところ、スマトラ島における6月から8月までの熱放射は断続的であり、6月は9日から16日までの9日間、7月は18日から24日の7日間、8月は21日から30日の10日間に熱放射が集中して発生していることがわかった(図31)。6月、7月、8月のそれぞれの月間積算総熱放射力は約500、100、200ギガワットであり、特に6月に強い熱放射があったことが明らかになった。これらの結果は、6月を主として中央スマトラで大規模なバイオマス燃焼によるCOの放出があったことを示している。

大規模バイオマス燃焼発生時のCOの空間分布を明らかにするため、MODISセンサー同様にAquaおよびTerra衛星に搭載されたAIRSセンサー(Atmospheric Infrared Sounder)による一酸化炭素のカラム濃度(地上から上空までの鉛直平均濃度)の分布を調べた。月平均のCOカ

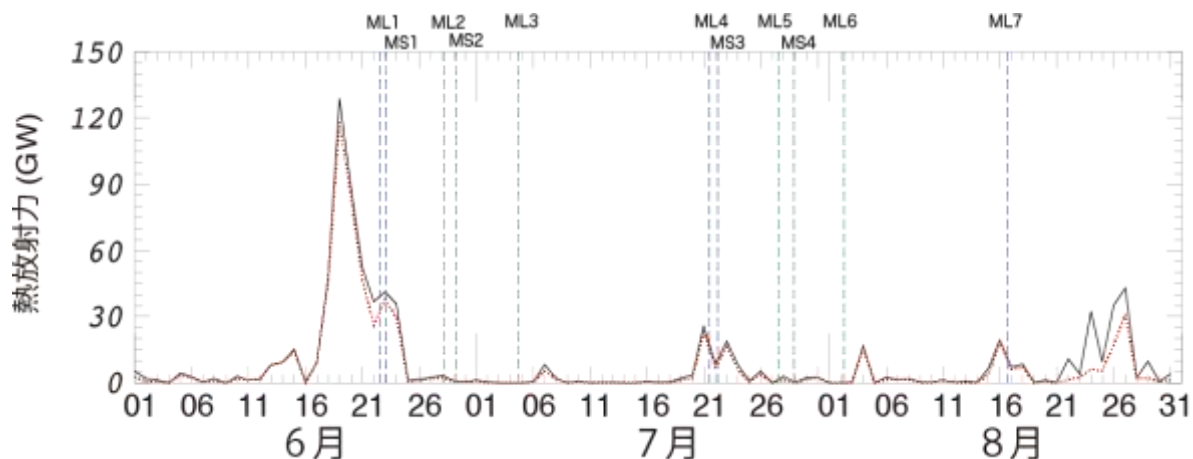


図31 スマトラ島における熱放射力強度の時系列変化。図中の実線と点線はそれぞれスマトラ島全土および調査エリアにおける総熱放射力を示す。破線はCOの高濃度イベントが観測された時を示し、図上部に示したエリアコード(マレーエリア:ML、マラッカ&シンガポールエリア:MS)は高濃度イベント観測時に船舶が航行していたエリアを示す。各エリアコードに付属する番号は高濃度イベントの通し番号を示す。

ラム濃度の分布は、6月、7月、8月に中央スマトラ北部上空にCOの高濃度帯が存在しており、6月にはCOの高濃度帯がマレー半島南部を横切って東方の太平洋へと広がっていたのに対し、7月、8月には高濃度帯が西に広がっていたことを示した。特に、6月18日から24日にかけて、COの日平均のカラム濃度の分布からは中央スマトラ北部上空に発生したCOの高濃度帯が東に向かって伸びていく様子が観測された。また、集中的な熱放射があった期間に観測装置を搭載した2隻の船舶はマレーエリアおよびシンガポール&マラッカ海峡エリアを航行しており、これらエリア航行中に観測されたCOの高濃度イベント時に捉えた空気塊の起源を後方流跡線解析により推定したところ、観測された11のCO高濃度イベントの内、7つのイベントで空気塊が中央スマトラ上空を通過していたことが示唆された。これらの結果はシンガポール&マラッカ海峡エリアで6月、7月、8月にCOの大きな濃度増加が観測されたのに対しマレーエリアでは6月のみにCOの濃度増加が観測されたことと整合しており、船舶で観測されたCOを始めとする連続観測成分の濃度増加の原因はインドネシア・中央スマトラで発生した大規模なバイオマス燃焼が原因であると考えられた。スマトラ島で発生したバイオマス燃焼についてより詳細に調べるため、強い熱放射があった中央スマトラ北部の調査エリア(0.5°S-2.5°N, 100°E-103°E)に注目して解析を実施した。調査エリアにおける総熱放射力の時系列変化はスマトラ島全域からの総熱放射力の変化によく一致しており、6月、7月、8月の総熱放射力はスマトラ島全体からの総熱放射量のそれぞれ89%、86%、66%を占めていることがわかった。この結果は8月については調査エリア以外からの寄与が大きい、6、7月については調査エリアにおける総熱放射力がスマトラ島からの放出をよく代表することを示している。後方流跡線解析によりバイオマス燃焼と関係付けられたCOの高濃度イベントの内、ML1、MS1、MS3時に観測した空気塊が調査エリア上空を通過していたことを後方流跡線解析は示しており、これらのCOの高濃度イベントは調査エリアからのバイオマス燃焼による放出に起因することが示唆された。このことから、高濃度イベント

表1 観測結果およびバイオマス燃焼排出インベントリ(GFED4S)から算出した調査エリアにおけるCO₂、CO、およびCH₄の平均排出係数(g/kg)と放出比(ppb/ppm)

	本研究			GFED4S	
	ML1 (6月) Fc=0.523	MS1 (6月) Fc=0.523	ML2 (7月) Fc=0.507	6月	7月
EF _{CO2}	1672 (160)	1705 (163)	1659 (164)	1676 (18)	1666 (18)
EF _{CO}	143 (16)	124 (21)	118 (14)	156 (38)	133 (34)
EF _{CH4}	6.9 (0.8)	6.4 (0.8)	5.1 (1.1)	13.5 (4.9)	10.4 (4.3)
ER _{CO/CO2} (ΔER _{CO/CO2})	135.3 (8.9) R ² =0.92, P<0.01	114.2 (17.7) R ² =0.74, P<0.01	111.8 (7.4) R ² =0.94, P<0.01	146 (36)	125.1 (32)
ER _{CH4/CO2} (ΔER _{CH4/CO2})	11.4 (0.6) R ² =0.96, P<0.01	10.3 (0.7) R ² =0.96, P<0.01	8.4 (1.5) R ² =0.64, P<0.01	22.2 (8.1)	17.2 (7.1)

表のEFおよびERに対応する括弧内の数字は不確かさを示す。Fcは調査エリアにおけるバイオマスの平均炭素含有量を示す。

観測時の CO₂、CO、および CH₄ の濃度の関係から発生源種別の推定を行った。同一の発生源から放出される 2 つの化合物の濃度比（放出比：ER）は燃えた燃料の化学的・物理的性質を反映して特有の値を示すことが知られている。イベント観測時の CO₂ に対する CO および CH₄ の間には非常に強い相関が観測されており、イベント時観測結果には発生源における CO₂、CO、および CH₄ の間の ER の関係が十分に保存されていると期待できる。従って、観測した濃度増分比（イベント観測時の 2 つの化合物の濃度の回帰分析で得られる回帰直線の傾きとして定義される）は発生源における放出比に近似が可能であり、発生源種別の診断に利用することができる。今までの研究から、バイオマス燃焼における CO₂、CO、および CH₄ の放出比はよく特徴化されており、CO/CO₂（ER_{CO/CO2}）と CH₄/CO₂（ER_{CH4/CO2}）の代表値はそれぞれ熱帯林火災では 88.9、8.5 ppb/ppm、サバンナ火災では 58.7、3.2 ppb/ppm となることが報告されている(Akagi et al., 2011)¹⁾。これに対し、ML1、MS1、および MS3 時に観測された CO₂、CO、および CH₄ の観測結果から標準主軸回帰法で決定した CO₂ に対する CO および CH₄ の濃度増分比（ $\Delta ER_{CO/\Delta CO_2}$ と $\Delta ER_{CH_4/\Delta CO_2}$ ）は熱帯林やサバンナ火災における代表値よりも大きな値を示した（表 1）。この大きな濃度増分比が観測された原因として、泥炭土の燃焼が観測された濃度増分比に寄与している可能性が挙げられる。中央スマトラ北部は泥炭土分布地域であり、報告例は少ないものの、泥炭土の燃焼において ER_{CO/CO2} と ER_{CH4/CO2} は大きな比を示すことが知られている。例えば、Christian et al. (2003) は南スマトラで採取した泥炭土を用いた模擬燃焼実験を行い、ER_{CO/CO2} が 194 ppb/ppm、ER_{CH4/CO2} が 34.5 ppb/ppm と森林火災やサバンナ火災における代表値よりも非常に高い値を取ることを報告している²⁾。また、Yokelson et al. (1997) はアラスカとミネソタで採取した泥炭土の模擬燃焼実験を行い、それぞれ ER_{CO/CO2} は 279.1 と 193.6 ppb/ppm に、同様に ER_{CH4/CO2} は 8.1 と 18.7 ppb/ppm であったことを報告している³⁾。Akagi et al. (2011) はこれらの燃焼実験の結果をもとに、泥炭地における ER_{CO/CO2} と ER_{CH4/CO2} の代表値を 183.0 と 20.8 ppb/ppm と推定している¹⁾。Nara et al. (2011) は船舶を用いて 2006 年にボルネオ島南部で発生した大規模な泥炭地火災を起源とする火災ブルームを観測しており、観測結果から ER_{CO/CO2} が 171 ppb/ppm であったことを報告している⁴⁾。これは Akagi et al. (2011) の推定値と近い値である。また、Gaveau et al. (2014) は 2013 年の 6 月に中央スマトラ北部において発生した大規模なバイオマス燃焼について調べ、燃焼面積の約 82% を泥炭地が占めていることから、発生した火災に泥炭の燃焼が大きな寄与を持っていたことを報告している⁵⁾。以上のことから、本研究で観測された高い ER_{CO/CO2}、ER_{CO/CH4} は泥炭地火災による影響を受けた空気塊であると考えられた。

観測結果から得られた濃度増分比を用いて、調査エリアにおける CO₂、CO、および CH₄ の平均的な排出係数(EF)を次の Yokelson et al. (1999) の炭素質量保存式を用いて概算推定した。

$$EF_n = F_c \times 1000(g/kg) \times \frac{MM_n}{12} \times \left\{ \frac{ER_n}{\sum(1 + \Delta ER_{CO} + \Delta ER_{CH_4} + \Delta ER_{VOC} + \Delta ER_{aerosols})} \right\} \quad (\text{Eq. 1})$$

ここで F_c は燃料の炭素含有量を、 MM_n は化合物 n の分子量を、 ΔER は下付きで示されている化合物の CO₂ に対する濃度増分比を示し、VOC および aerosols は火災で放出された全揮発性有機化合物と粒子状物質を指す。本研究の観測からは火災で放出された全揮発性有機化合物と粒子状物質の ER は推定できないが、バイオマス燃焼で放出される炭素量の大部分が CO₂、CO、および CH₄ で占められていることから、(1) 式を以下の (2) 式で近似した。

$$EF_n \equiv F_c \times 1000(g/kg) \times \frac{MM_n}{12} \times \left\{ \frac{ER_n}{\sum(1+\Delta ER_{CO}+\Delta ER_{CH_4})} \right\} \quad (\text{Eq. 2})$$

また、 F_c の値はバイオマス燃焼インベントリ；GFED4S (van der Werf et al., 2010)で報告されているデータをもとに計算した⁹⁾。具体的には、調査エリア内の空間分解能 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ の各グリッドで、火災種別（農業、森林、泥炭、サバンナ）ごとに割り当てられた F_c （農業：44%、森林：48%、泥炭：56%、サバンナ：48%）を燃焼寄与割合をもとに加重平均して平均の F_c を求め、さらに得られたグリッドごとの平均 F_c を調査エリア内のグリッドごとの燃焼したバイオマスの乾燥重量で加重平均して決定した。ここでは計算した平均 F_c の相対誤差を $\pm 10\%$ とした。EFの計算結果を表1にまとめる。得られた結果を、GFED4Sをもとに計算した調査エリアにおける平均EFと比較した。比較ではML1とMS1の結果を平均して6月の値とした（ CO_2 : 1689 (228)、 CO : 134 (26)、 CH_4 : 6.7 (1.1)）。観測結果をもとに求めた CO_2 と CO のEFはGFED4Sをもとに計算した平均EFと6月、7月ともに比較的良好一致が得られた。これに対し、 CH_4 は6月、7月ともGFED4Sの平均EFの約半分程度の値となった。この結果は泥炭地における CH_4 のEFをGFED4Sが過大評価している可能性を示唆した。

van der Werf et al. (2010)は、熱帯アジア域は全球の火災による CO と CH_4 の放出に大きな寄与を持つことを報告している⁹⁾。1997年から2009年までの平均的な全球に対する熱帯アジア域の燃焼面積比は約2.5%に過ぎないが、大きなEFを有する泥炭の寄与により、 CO と CH_4 放出量については全球火災放出量に対しそれぞれ22%、32%にも達すると推定されている。しかしながら、本研究ではGFED4Sが泥炭地における CH_4 のEFの過大評価している結果となり、熱帯アジア域の寄与は現在考えられているよりも小さくなる可能性があることが示唆された。

③東南アジアにおけるオイルリグからのメタン放出

東南アジアルート沿いの赤道以北地域において、顕著な CH_4 ピークが多数観測されたことは注目に値する（図3 2）。これらの CH_4 ピークが見られた場所は、マレー半島東海岸沖（39ピーク）およびボルネオ北西海岸沖（55ピーク）の2地域に集中していた。以降、これらのピークをそれぞれマレーピーク、ボルネオピークと表記する。マレーピークの大部分は、北上ルート沿いと南下ルート沿い共に北緯5.5~8度で観測された。一方、ボルネオピークは北上ボルネオルート沿いの北緯4.5~6.5度で観測された。観測された CH_4 ピークはすべて持続時間が数分~1時間と短かったが、 CH_4 のモル分率（濃度）の増加は顕著であった。例えば、東南アジア地域のベースラインレベルを上回り、約1100 ppbにも達するピークであった。また、 CH_4 ピークと同時に CO_2 ピークを観測した。この時の CO_2 と CH_4 のモル分率の正の相関関係から、これらのガスが局所的かつ非生物起源の共通排出源から出ていることが示唆された。

ここから、CH₄排出源を特定するために、米国海洋大気庁が提供する、米国空軍の防衛気象衛星プロジェクト・線走査運用システム (DMSP/OLS) から得た夜間可視衛星観測データを調べた。夜間可視データ「avg lights x pct」とはガスのフレアリング容量の推定に用いられる、ノイズフィルタを通した夜間可視データの通年合成画像であるが、このデータを用いて研究対象地域内の沖合プラットフォームの位置を特定した。こうして特定した沖合プラットフォーム分布は、本研究期間中ほとんど変化することはなかった。これらのプラットフォームの大部分はマレー半島東海岸沖かボルネオ北西海岸沖にあり、東南アジアの貿易ルート沿いの CH₄ ピーク位置に近接していた (図 3 3)。一般に、CH₄ は沖合石油プラットフォームの主排出物であり、ガスフレアリング

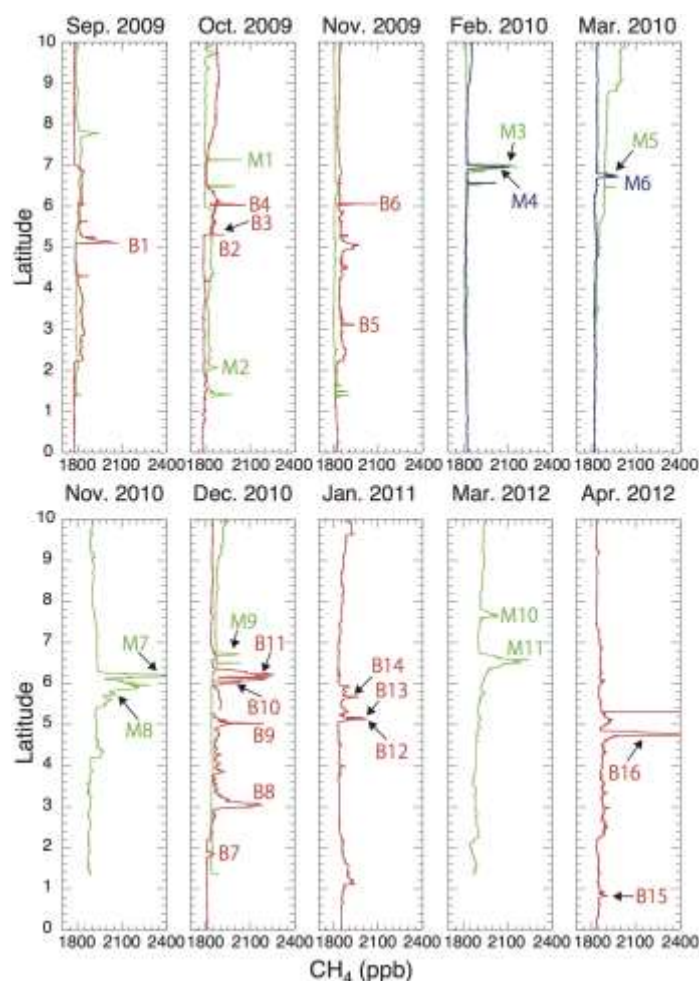


図 3 2 2009 年 9 月～2012 年 4 月の間に東南アジアルートを行航した 8 回の航海で観測された CH₄ モル分率瞬時値の 1 分間平均値の、赤道～北緯 10 度の緯度方向の分布。CH₄ モル分率は次のとおり、航行ルート別に色分けされている。南下アジアルート：緑色、北上アジアルート：青色、北上ボルネオルート：赤色。大幅な CH₄ の増加 (>50 ppb) および CH₄ と CO₂ に正の相関関係 ($R > 0.4$, p 値 < 0.05) が見られ、ピーク持続時間が 10 分を上回るマレーピークとボルネオピーク (先端に M または B と記載) に限り、ピーク番号が割り当てられている。

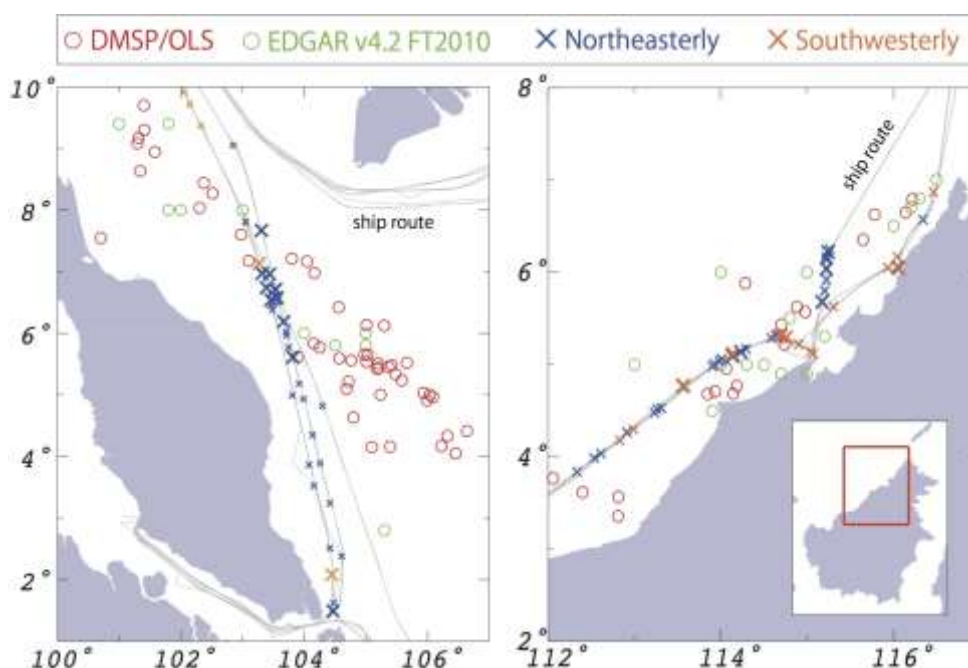


図 3.3 本研究実施時に観測された CH₄ ピーク分布と、マレー半島東海岸沖の沖合プラットフォーム（左）とボルネオ北西海岸の沖合プラットフォーム（右）。×印は CH₄ ピークの観測場所で、×印の色はそれぞれの CH₄ ピークが観測された時の風のパターン（青色：北東風。橙色：南西風）。図 3.2 で番号が付けられたピークは大きい×印で強調し、それ以外の重要でないピークは小さい×印で示してある。○印は 2010 年のプラットフォームの場所で、赤色は DMSP/OLS データに基づき特定されたもの、緑色は EDGAR v.4.2 FT2010 データベースで報告されているものである。灰色の実線は貨物船のルートを表す。

／換気、設備からの漏洩、および蒸発損失に起因して放出される。一方、CO₂ は主にガスフレアリングにより共に排出される。これらの結果から、観測された CH₄ ピークは沖合のオイル・ガス生産プラットフォームから排出されていると示唆された。

人為起源微量ガス排出インベントリデータベース EDGAR（大気研究用排出量データベース）v. 4.2 FT2010 では、沖合プラットフォームからの CH₄ 排出が報告されている。そこで、本研究で特定した沖合プラットフォームの分布を EDGAR で報告されたものと比較した。この比較には、DMSP/OLS データの 2010 年版通年合成画像と EDGAR による 2010 年版通年 CH₄ 排出量データを用いた。その結果、特にマレー半島東海岸沖でかなりの不一致があることが明らかとなった。これは、CH₄ およびその他の共排出ガス成分に関して、東南アジアの沖合プラットフォームの現行の排出インベントリにはいまだにかなりの不確かさがあることを示している。

観測の大部分は亜寒帯の秋と冬に行われており、この時期はマレー半島東海岸沖では、東アジアのモンスーンに関連した強い北東風が優勢となるが、例として、メタンの増加が見られた期間中の 2009 年の 9 月と 10 月に限っては、インド洋からマレー半島を渡る西風が優勢であった。対照的に、観測期間中ボルネオの北西海岸沖においては、卓越する風向はなかった。したがって、北東風のシーズン中に観測されたマレーピークは、ピーク位置から風上方向の沖合プラットフォーム

ームからの排出量を表していると考えられる。それに対し、ボルネオピークは沖合プラットフォームと沿岸の両方の排出源からの排出量を表している可能性がある。そこで、沖合プラットフォームの排出の特徴を把握するため、 $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ の濃度増分比 ($\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$) に基づいて、 CH_4 ピークが出ている間に測定された排出量を調べた。 $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比は、 CH_4 および CO_2 のモル分率の相関を表す直線の傾きである。観測が排出源の近傍で行われている場合、 $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比は排出比で近似できるため、観測された $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比を用いて排出源の特定ができる場合が多い。例えば、冬期に遠隔地で行われた過去の観測から、主に市街地や工業地域の人為起源の燃焼関連排出によって汚染された気団中の $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比は通常約 20 ppb/ppm (ppm を $\mu\text{mol mol}^{-1}$ と定義) 未満であることがわかっている。また、バイオマス燃焼源からの CO_2 と CH_4 の排出係数は、 CH_4/CO_2 通常比が 20 ppb/ppm 未満であると定義された。

ここで観測された $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比をさらに解析するため、10 分間以上にわたる CH_4 の大幅な増加 (>50 ppb) と CH_4 と CO_2 に有意な正の相関 ($R > 0.4$, $p\text{-value} < 0.05$) が見られた明確なピークを、マレーピークから 11 個、ボルネオピークから 16 個選んだ。これらのピーク時に、 $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比を標準主軸回帰によって計算すると、マレーピーク、ボルネオピークは、それぞれ 8~1108 ppb/ppm、3~880 ppb/ppm であった (図 3 4)。ピーク M1、M3、M4、M5、M6、M8、M9 では ΔCO_2 対 ΔCH_4 の相関は類似の挙動を示していることから、これらのピークは沖合プラットフォームで同一の排出プロセスに由来していると示唆される。これらのピークに対し ΔCO_2 対 ($\Delta\text{CO}_2 + \Delta\text{CH}_4$) 回帰を用いて、フレアリング効率 (例: $\Delta\text{CO}_2/(\Delta\text{CO}_2 + \Delta\text{CH}_4)$ (単位%)) の概算値を調べた。これらのピークの $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比の平均は 94 ppb/ppm であり、フレアリング効率 92% に相当する。工業フレアのガスフレアリング効率は通常 90% を上回るため、この場合の漏洩による排出 (換気を含む) が原因のフレアリングに主に由来するプルームは、あるとしても比較的小さい。ピーク M7、M10、M11 はガスフレアリングプルームよりも $\Delta\text{CH}_4/\Delta\text{CO}_2$ 比が高いことから、漏洩排出物の寄

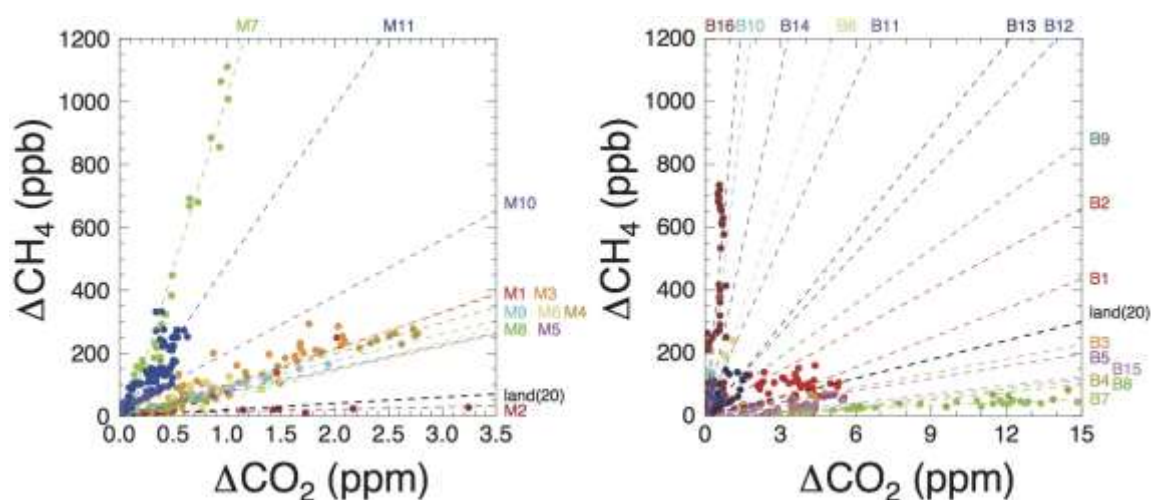


図 3 4 CH_4 ピーク観測時の CO_2 モル分率に対する CH_4 モル分率の離散プロット。ピーク番号は図 3 2 のとおり。左と右のパネルはそれぞれ順に、マレーピークとボルネオピークに対応。点線は、標準主軸回帰により決定された個々のピークに対応する回帰線を示す。「land(20)」とラベル表示された黒色点線は、沿岸の人為起源排出の $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ 排出比の上限を示す。

与が大きいと示唆される。以上の結果から、 $\Delta \text{CH}_4 / \Delta \text{CO}_2$ 比の観測値は漏洩排出物の寄与に応じて大幅に異なることが示される。対照的に、ピーク M2 に対するフレアリング排出と漏洩排出の寄与は、 $\Delta \text{CH}_4 / \Delta \text{CO}_2$ 比が 8 ppb/ppm であることから無視できる。同様に、ボルネオ地域で観測された $\Delta \text{CH}_4 / \Delta \text{CO}_2$ 比が 20 ppb/ppm を上回る 16 個のピークは、フレアリング排出物と漏洩排出物の混合であると説明された。続いて、この後の解析に用いるため上記の $\Delta \text{CH}_4 / \Delta \text{CO}_2$ 比が 20 ppb/ppm を上回るピークを選んだ。

次に、上記の CH_4 ピーク観測値を用いて、マスバランス法に基づき CH_4 排出速度を推定した。 CH_4 プルームは観測期間中安定して形成され CH_4 混合比は MBL において縦方向によく混合されていると仮定して、 CH_4 排出速度 q_{CH_4} は次のように表すことができる。

$$q_{\text{CH}_4} = u \cdot \cos \alpha \cdot n \cdot Z_{\text{MBL}} \cdot \int_a^b [f_{\text{CH}_4}(y) - C_0(y)] dy \quad (\text{Eq. 3})$$

式 (3) において、 u は風速のプルーム軸に対する水平成分の平均値、 α は船のトランセクトとプルーム軸に対する垂線のなす角、 Z_{MBL} は MBL の深さ、 n は MBL 内部の大気平均モル密度、 y はプルーム軸からの距離、 $f_{\text{CH}_4}(y)$ は y で観測された CH_4 モル分率、 $C_0(y)$ は y におけるバックグラウンド CH_4 モル分率を示す。式 (3) において、個々の CH_4 ピークの積分区間の始点 a と終点 b は目測による判断で決定したものである。また、 $C_0(y)$ の値は点 a および点 b それぞれにおける CH_4 モル分率の値を実際に線形補間して決定したものである。船上で気象観測を行わなかったため、平均風速/風向、および MBL の深さは CGER/METEX 三次元キネマティックトラジェクトリモデルに基づいて推定した。このトラジェクトリモデルを NCEP/NCAR 再解析による 6 時間ごとの気象入力データ (空間分解能: $2.5^\circ \times 2.5^\circ$) により駆動した。また、モデル計算は CH_4 ピーク地点から海拔 250 m の位置で開始し、大気モル密度 (n) は 1.2 kg m^{-3} (0 km および 0.5 km 地点の n の平均値) とした。

ここではマレーピーク、ボルネオピークの合計 14 個の CH_4 ピークについて、マスバランス法を適用した。観測された CH_4 ピークと沖合プラットフォームの地理的關係は、トラジェクトリモデルによりうまく説明がついた。8 個のマレーピーク M1、M3、M4、M5、M6、M7、M8、M9 では、得られた CH_4 排出速度は $3.9 \sim 426.7 \text{ g s}^{-1}$ 、中央値 (平均値) は 99.2 (124.7) g s^{-1} である。6 個のボルネオピーク B1、B6、B11、B12、B13、B14 では、速度は $1.8 \sim 46.0 \text{ g s}^{-1}$ 、中央値 (平均値) は 14.7 (16.9) g s^{-1} である。以上を、計算に用いたパラメータの値とともに表 2 にまとめた。以上の推定値は、米国海洋大気局の国立地球物理データセンターが提供している、スオミ国家極軌道パートナーシップ衛星 (Suomi-NPP: Suomi-National Polar-orbiting Partnership) に搭載された可視赤外線撮像機放射計で近年に計測した予備推定値と整合的であった。そこで、古典的な誤差推定方法にのっとり、2 つの主要係数 ($u \times \cos \theta$ と Z_{MBL}) の相対不確かさを $\pm 50\%$ とし、大気モル密度 (1.2 kg m^{-3}) の相対不確かさを $\pm 0.05 \text{ kg m}^{-3}$ と仮定して、排出速度の不確かさの範囲を推定した。一方、不確かさの範囲 (下限～上限) の算定値からは本マスバランス方法にはかなりの不確かさがあることが示唆された。

表2 観測された CH₄ ピークから求められた CH₄ 排出速度推定

地域	ピーク No.	u (m s ⁻¹)	α (deg.)	Z_{MBL} (m)	$\int_a^b [f_{\text{CH}_4}(y) - C_0(y)] dy$ (ppm m x 10 ⁴)	Q_{CH_4} (g s ⁻¹)
マレー	M1	2.4	38.0	565	1.4	38.1 (9.1 - 89.3)
	M3	2.8	2.1	252	10.0	180.8 (43.3 - 423.8)
	M4	5.0	23.4	430	2.6	133.0 (31.9 - 311.8)
	M5	5.1	12.2	556	0.23	16.8 (4.0 - 39.4)
	M6	5.8	25.4	505	1.6	110.7 (26.5 - 259.5)
	M7	2.1	46.5	574	20.2	426.7 (102.2 - 1000.0)
	M8	2.2	7.5	607	0.11	3.9 (0.9 - 9.2)
	M9	2.6	8.9	677	1.9	87.7 (21.0 - 205.5)
	ボルネオ	B1	3.6	82.1	517	7.0
B6		3.4	9.9	469	0.43	17.5 (4.2 - 41.1)
B11		0.8	11.7	651	0.31	4.0 (1.0 - 9.3)
B12		3.9	78.9	597	0.16	1.8 (0.4 - 4.3)
B13		3.9	78.0	588	1.6	20.2 (4.9 - 47.5)
B14		3.0	78.9	674	1.2	11.8 (2.8 - 27.6)

大気のコル密度を 1.2 kg m⁻³ として CH₄ 排出速度を算出。
カッコ内の数値は不確かさの範囲。

CH₄ 排出速度値すべての中央値は 29.2 g s⁻¹ であった。DMSF 衛星を用いて特定される東南アジア地域（定義：北緯 15 度～南緯 10 度、東経 90～140 度）の沖合プラットフォームの数は 112 箇所であり、この地域の総排出速度を計算すると 3.3 kg s⁻¹ と算定された。したがって、東南アジア地域の沖合プラットフォームからの CH₄ 年間総排出量は約 0.1 Tg y⁻¹ と推定された。ここでの不確かさの範囲は 0.02～0.32 Tg y⁻¹（中央値の下限と上限）であった。EDGAR の報告では、東南アジア 12 か国（ブルネイ、カンボジア、ラオス、ミャンマー、マレーシア、フィリピン、シンガポール、タイ、チモール、ベトナム、インドネシア、パプアニューギニア）における石油／ガス生産に由来する CH₄ 年間排出量は、2010 年には約 3.7 Tg y⁻¹ であった。これは地球全体の人為起源 CH₄ 排出量 335 Tg y⁻¹ の約 1% に相当する。従って、沖合の CH₄ 排出量は、東南アジア地域の石油／ガス生産に由来する総排出量の約 8% (0.29 Tg y⁻¹) を占める。マスバランス法では不確かさの範囲が大きくなることは不可避であるにもかかわらず、我々の推定は EDGAR によるものと比較的良好な一致を示している。しかしながら、沖合プラットフォームの位置については、EDGAR インベントリと DMSF 衛星による観測で決定したものには大きな違いがあることには留意する必要があると考えられる。現状では、CH₄ 点源分布（ポイントソース）については、既存のインベントリには大きな不確かさがあるが、東南アジア地域の排出量に対する沖合 CH₄ 排出量の相対的寄与は、石油／ガス生産部門（沖合と沿岸の両方）によるものでは約 3% (EDGAR による推定では 3.7 Tg y⁻¹)、人為起源の排出源によるものでは約 0.2% (EDGAR による推定では 63 Tg y⁻¹) と推定された。

さて、グローバルに見ると、2011 年における地球全体での CH₄ 排出量は 556 ± 56 Tg y⁻¹ で自然排出量と人為排出量は同程度の割合と推定されている。湿地からの自然排出は単独で CH₄ 総排出量の大部分を占め、その年間排出量は約 200 Tg y⁻¹ である。年間排出量が 10～100 Tg y⁻¹ の中程度の排出源としては、化石燃料、反芻動物、埋立てごみ／廃棄物、地質学的に形成された排出源、

淡水、水田、バイオマス／バイオ燃料の燃焼、野生動物、シロアリなどがある。これ以外の排出源からの排出量は少ない。ハイドレート、山火事、および永久凍土からの排出量（およびその範囲）はそれぞれ順に、6（2～9）、3（1～5）、1（0～1） Tg y^{-1} と推定されている。

地球上には石油／ガス生産用の沖合施設が多数存在し、東南アジアの他にも、北海、ペルシャ湾、ギニア湾、メキシコ湾は石油／ガス生産が盛んな地域として知られている。上記のとおり、東南アジア沖合の CH_4 排出量について、我々の推定とEDGARは比較的良好な一致を示している。そこでEDGARに基づいて地球全体での排出量を単純推計すると、世界全体の沖合石油／ガスプラットフォームからの CH_4 排出量は1～2 Tg y^{-1} であると示された。このことは沖合排出源からの排出量が山火事や永久凍土などの小規模な自然排出源からの排出量と同程度である可能性があることを示唆するものである。

本研究は東南アジアの石油／ガスプラットフォームからの CH_4 排出量に関して、初めてトップダウン制約を設けたものである。他方で、この推計には相当の不確かさがあることも認識しておかなければならない。この不確かさは、マスバランス法に固有のものと、石油／ガスプラットフォームでガスフレアリングと漏洩による排出がまばらに発生することが原因で沖合プラットフォームからの CH_4 プルームのサンプルが不足することが合わさって生じるものである。従って、我々が行なった、東南アジア地域の沖合プラットフォームからの CH_4 排出量のトップダウン推計は、今後我々自身、もしくは第三者によって検証および改良される必要がある。例えば、我々の観測において漏洩プルームのサンプル数が少なかったとすれば、 CH_4 排出量の推定値は格段に大きくなり、1桁増える可能性も考えられる。地域ごとの沖合プラットフォームからの CH_4 総排出量の推定を改善し、それにより現行の排出インベントリを改良するには、船舶、飛行機、衛星による観測を統合することでトップダウン条件をさらに高めることが必要である。特に、漏洩プルームが検出できれば排出量推定における不確かさの低減に有用と考えられる。石油／ガス処理に由来する CH_4 排出量の現行推定値は、2010年では世界の人為起源排出量の約20%であり、2010～2020年の間に約35%ずつ増加すると予測されている。プルーム観測から得られたフィードバックは東南アジア諸国の漏洩排出量の削減に役立ち、ひいては地球温暖化の抑制に寄与する可能性がある。

5. 本研究により得られた成果

5年間にわたる取り組みで、ボトルサンプリングされているメタン、亜酸化窒素などのガス成分に加えて、連続観測されてきたオゾン、一酸化炭素、 $\text{PM}_{2.5}$ およびブラックカーボンの短寿命大気汚染成分について緯度分布や季節性が明らかになるとともに、東南アジア地域からの一次排出の様子が明瞭に捉えられた。また、東南アジア地域ではオゾンの光化学生成が活発に起こっていることが示唆された。大気中寿命が短い成分は濃度変動が大きいですが、地域代表性のあるデータが確実に取得されていることが示された。長寿命ガス成分でも、東南アジア航路海域のメタン、亜酸化窒素の大気濃度は太平洋上のバックグラウンド濃度より大幅に高いことが明らかとなり、メタン、亜酸化窒素、一酸化炭素などについて、熱帯に特有な発生源が存在することが明瞭に示唆された。具体的には、東南アジア航路におけるメタン、一酸化炭素および亜酸化窒素の大気中濃度がオセアニア航路に比べて有意に高く、特に赤道付近の緯度帯において濃度差が最大となることが分かった。このことはカリマンタン島北西沿岸やマレー半島南東沿岸の沖合で洋上油井・ガス井からのメタンの漏出が起きていることを確認した事実や、スマトラ島におけるバイオマス

燃焼にともなうメタンや一酸化炭素の大規模ピークを検出した事実と整合するものであり、これらの放出が年平均値の変化を生じるほど大規模な放出になっていることを示唆するものであった。

ハードウェア面でもキャビティリングダウン分光分析法による船舶観測への応用が確立された。連続測定とボトル分析によるQA/QCから、運用に問題がないことが示された。このキャビティリングダウン分光分析法によるメタンの連続計測からは、東南アジア地域におけるバイオマス燃焼からの温室効果ガスの放出や、洋上オイル・ガス採掘プラットフォームからのメタン放出など、従来のボトル分析では捉えられなかった放出源を捉えることができたことは大きな成果である。これらの結果から、現在の化学輸送モデルに広く使用されている排出インベントリにおける排出量が過小評価されて可能性が指摘された。

このように、アジアからの温室効果ガスの排出状況をより良く推定するためには今後も多成分を包括的に連続測定する計測機器の搭載が有効であることが明らかとなった。

6. 引用文献

- 1) Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Wiedinmyer, C., Alvarado, M. J., Reid, J. S., Karl, T., Crouse, J. D., and Wennberg, P. O.: Emission factors for open and domestic biomass burning for use in atmospheric models, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 4039–4072, 2011.
- 2) Christian, T., Kleiss, B., Yokelson, R. J., Holzinger, R., Crutzen, P. J., Hao, W. M., Saharjo, B. H., and Ward, D. E.: Comprehensive laboratory measurements of biomass-burning emissions: 1. Emissions from Indonesian, African, and other fuels, *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 4719, 2003.
- 3) Yokelson, R. J., Goode, J. G., Ward, D. E., Susott, R. A., Babbitt, R. E., Wade, D. D., Bertschi, I., Griffith, D. W. T. and Hao, W. M.: Emissions of formaldehyde, acetic acid, methanol, and other trace gases from biomass fires in North Carolina measured by airborne Fourier transform infrared spectroscopy, *J. Geophys. Res.*, 104(D23), 30209–30125, 1999.
- 4) Nara, H., Tanimoto, H., Nojiri, Y., Mukai, H., Zeng, J., Tohjima, Y., and Machida, T., CO emissions from biomass burning in South-east Asia in the 2006 El Nino year: shipboard and AIRS satellite observations, *Environ. Chem.*, 8, 213–223., 2011.
- 5) Gaveau, D. L. A., Salim, M. A., Hergoualc’h, K., Locatelli, B., Sloan, S., Wooster, M., Marlier, M. E., Molidena, E., Yaen, H., DeFries, R., Verchot, L., Murdiyarso, D., Nasi, R., Holmgren, P., and Sheil, D.: Major atmospheric emissions from peat fires in Southeast Asia during non-drought years: evidence from the 2013 Sumatran fires, *Sci. Rep.*, 4, 6112, 2014.
- 6) Van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Colatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., Defries, R. S., Jin, Y., and van Leeuwen, T. T.: Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11707–11735, 2010.

[研究成果の発表状況]

(1) 誌上発表 (学術誌)

- ① H. Nara, H. Tanimoto, Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, K. Katsumata, C. Rella: *Atmos. Meas. Technol.*, 5, 2689–2701, doi:10.5194/amtd-5-2689-2012, 2012.
“Effect of air composition (N₂, O₂, Ar, and H₂O) on CO₂ and CH₄ measurement by wavelength-scanned cavity ring-down spectroscopy: calibration and measurement strategy”
- ② Y. Yokouchi, Y. Nojiri, D. Toom-Sauntry, P. Fraser, Y. Inuzuka, H. Tanimoto, H. Nara, R. Murakami, H. Mukai: *Geophys. Res. Lett.*, 39, L23805, doi:10.1029/2012GL053695, 2012.
“Long-term variation of atmospheric methyl iodide and its link to global environmental change”
- ③ H. Nara, H. Tanimoto, Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, T. Machida: *Sci. Rep.*, 4, 6503, doi:10.1038/srep06503, 2014.
“Emissions of methane from offshore oil and gas platforms in Southeast Asia”

(2) 口頭発表

- ① 奈良英樹、谷本浩志、勝又啓一、遠嶋康德、クリス・レーラ、野尻幸宏、向井人史：日本地球惑星科学連合2012年大会 (2012)
「波長スキャンキャビティリングダウン分光分析計を用いたCO₂・CH₄計測における圧力広がり効果の影響」
- ② H. Tanimoto, H. Nara, H. Mukai, Y. Nojiri, Y. Tohjima, T. Machida, S. Hashimoto: 12th IGAC Open Science Conference (2012)
“Long-term, comprehensive monitoring of non-CO₂ greenhouse gases and short-lived climate forcers in Asia and Oceania using voluntary observing ships”
- ③ H. Tanimoto, H. Nara, F. Kondo, H. Mukai, Y. Nojiri, Y. Tohjima, T. Machida, S. Hashimoto: Global Monitoring Annual Conference 2013, Boulder, USA (2013)
“Long-term monitoring of long-lived greenhouse gases and short-lived climate pollutants in Asia and Oceania using voluntary observing ships”
- ④ H. Nara, H. Tanimoto, H. Mukai, Y. Nojiri, Y. Tohjima, T. Machida, S. Hashimoto: 17th WMO/IAEA Meeting on Carbon Dioxide, Other Greenhouse Gases, and Related Tracer Measurement Techniques (GGMT-2013), Beijing, China (2013)
“Shipboard monitoring system of atmospheric CH₄ in Southeast Asia and Oceania regions”
- ⑤ 奈良英樹、谷本浩志、向井人史、野尻幸宏、遠嶋康德：2013年度日本地球化学会第60回年会 (2013)
「東南アジア域における船舶を用いた大気中メタンの長期連続観測と発生源解析」
- ⑥ H. Tanimoto, H. Nara, H. Mukai, Y. Nojiri, Y. Tohjima, T. Machida, S. Hashimoto: 1st

International Workshop on SLCPs in Asia: Chemistry-climate modeling and its applications, Seoul, Korea (2015)

“Long-term monitoring of short-lived climate pollutants in Asia and Oceania using voluntary observing ships”

- ⑦ K. Ikeda, H. Tanimoto, H. Nara, H. Mukai, Y. Nojiri, Y. Tohjima: 7th International GEOS-Chem Meeting, Cambridge, USA (2015)

“Multi-model comparison of O₃, CO, PM_{2.5}, and BC with cargo ship observations in Asia and Oceania”

- ⑧ 永島達也, 森野悠, 谷本浩志, 高見昭憲: 第56回大気環境学会年会 (2015)

「化学輸送モデルによる東アジアの地表オゾン濃度の再現性検証」

- ⑨ 池田恒平, 谷本浩志, 奈良英樹, 向井人史, 野尻幸宏, 遠嶋康徳, 森野悠, 永島達也: 第21回大気化学討論会 (2015)

「定期貨物船によるアジア・オセアニア域でのO₃, CO, PM_{2.5}, BC観測と全球・領域化学輸送モデルの比較」

- ⑩ T. Nagashima, Y. Morino, H. Tanimoto, K. Ikeda, A. Takami: The 13th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (ASAAQ13), Kobe, Japan (2015)

“Validation of the Asian surface ozone simulated by chemical transport models”

- ⑪ T. Nagashima, Y. Morino, J. Kurokawa, K. Yumimoto, S. Itahashi, D. Goto, H. Tanimoto, K. Ikeda, T. Ohara: 7th International Workshop on Atmospheric Modeling Research in East Asia, Chengdu, China (2016)

“Recent development of East Asian air quality assessment system”

- ⑫ H. Tanimoto, H. Nara, K. Ikeda, Y. Nojiri, Y. Tohjima, H. Mukai, T. Machida, S. Hashimoto: 13th Annual Meeting of Asia Oceania Geosciences Society, Beijing, China (2016)

“Cargo-ship observations of short-lived climate pollutants in Southeast Asia”

- ⑬ H. Nara, H. Tanimoto, Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, T. Machida, 14th International Global Atmosphere Chemistry (IGAC) Science Conference, Breckenridge, USA (2016)

“Emissions of CO₂, CO, and CH₄ from peat forest fires on Sumatra Island in non El Nino year 2013”

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

日本地球惑星科学連合 地球惑星科学振興西田賞, 2017年5月.

(5) 一般への公表・報道等

- ①国立環境研究所地球環境センターホームページの広報活動

- ②国立環境研究所ニュース,「シリーズ重点研究プログラムの紹介」大気汚染と気候変化の新たな関係：地球温暖化のもうひとつの原因, 31(5), 3-5, 2012.
- ③月刊みんぱく, 世界の空気を追って, 37(11), 18-19, 2013.
- ④International New York Times (2013年12月26日, “Worries in the Path of China's Air” in Green Column, 15面)
- ⑤国立環境研究所プレスリリース (2014年10月24日, 「洋上油井・ガス井からのメタン排出の確認：温暖化対策に有効な観測手法に向けて」)、筑波研究学園都市記者会、環境省記者クラブ同時配付: <http://www.nies.go.jp/whatsnew/2014/20141024/20141024.html>

(6) その他成果の普及、政策的な寄与・貢献について

本課題など対流圏大気中の温室効果ガスを直接観測する観測研究プログラムは、宇宙研究開発機構・国立環境研究所他が実施しているGMGG (Global Monitoring of Greenhouse Gases) を構成し、全球規模で二酸化炭素やメタンの濃度分布を明らかにする計画において、地表大気濃度を検証する役割を担っている。また、メタン、亜酸化窒素、一酸化炭素等の温室効果ガスおよび大気汚染物質の排出インベントリ整備は今後途上国にも拡大する必要があり、ボトムアップ型のインベントリ作成の精度確保が不十分な場合、大気計測による検証が精度確保に役立つ可能性がある。特に、温室効果ガス相互間の濃度比は発生源比を明らかにし得るので、途上国周辺域における大気観測のネットワーク化が効果的である。