

## 大気境界層観測による森林から亜大陸規模の二酸化炭素吸収推定

独立行政法人国立環境研究所

大気圏環境研究領域 大気動態研究室

町田敏暢・遠嶋康徳・高橋善幸

地球環境研究センター

井上 元

(研究委託先)

名古屋大学大学院工学研究科

飯田孝夫・森泉 純

平成 13～15 年度合計予算額 86,031 千円  
(うち、平成 15 年度当初予算額 26,589 千円)

[要旨] 本研究は地表付近の二酸化炭素濃度および関連気体の連続観測および観測地点上空における二酸化炭素濃度の航空機観測により、二酸化炭素の吸収量を評価するための観測手法について検討を行うものである。西シベリアの森林地帯のタワーで観測された二酸化炭素濃度は夏季に 120ppm にも達する振幅で日変動をしていた。一方で冬季にも平均で 2ppm ほどの振幅を持った日変動があり、極低温下の冬季シベリアにおいても有意な二酸化炭素の放出があることが確かめられた。タワーで観測されたラドン濃度の変動から、冬季にも地表からのラドン放出が存在していることがわかり、これまで大気輸送モデルに広く使われてきた「積雪期のラドンフラックスはゼロ」という仮定を否定する結果となった。航空機観測からは大気境界層内と自由対流圏の二酸化炭素濃度変動を区別して導出することに成功し、季節振幅に 16ppm もの差が存在していることがわかった。このような高頻度航空機観測によって大気境界層内とその直上の自由対流圏における二酸化炭素の季節変動を比較した例はこれまでになく、信頼度の高いデータの新たな取得方法を提唱できた。3次元炭素循環モデルは水平方向の輸送は地域規模でも比較的よく表現することが可能であるが、鉛直方向、特に大気境界層—自由対流圏間の交換については未だ十分に再現できていないことが本研究で得られた観測結果との比較により明らかになった。最後に、ベレゾレチカでは冬季においては日中に逆転層が存在しないという条件、冬季以外の季節では日中の濃度変動が小さいという条件であればタワーで観測された濃度が航空機観測で得られた濃度と良い一致を示した。このようにある特定の条件を満たせばタワーで観測された濃度であっても大気境界層の濃度を代表できることが本研究の観測結果によって示された。

[キーワード] 二酸化炭素、陸域吸収、大気境界層、大気輸送、観測手法

### 1. はじめに

京都議定書で決められた人為的な森林活動の評価は、植林や伐採の規模が 10km のオーダーなので、二酸化炭素の吸収量を評価するためにはフラックス法、森林統計、遠隔計測などの方法が適している。しかしながら、今後の国際交渉の場では、直接の人為活動である植林や伐採だけではなく、森林保全、営林、農牧畜などを含む全炭素の排出・蓄積を評価する方向で検討が進められると予想される。これに対応するために森林 (1 km) から亜大陸規模 (1000 km) の炭素収

支を評価する方法を開発する事が今後の重要な研究課題となる。

亜大陸規模の炭素収支を大気輸送モデルの逆計算を利用して見積もるには、対象地域において 1) 出来るだけ多地点で、2) 出来るだけ高頻度に、3) 地上から自由対流圏にかけての、二酸化炭素濃度を観測するのが理想的である。二酸化炭素濃度を高頻度で観測するためには地上における連続観測が最も有効的であるが、この方法では自由対流圏の濃度を知ることは困難である。一方、二酸化炭素濃度の鉛直方向の濃度分布を知るためには航空機を利用した観測が、必要とされる精度を満たす現時点で唯一の方法であるが、観測の高頻度化や多地点化は困難である。以上のように亜大陸規模の炭素収支を推定するための二酸化炭素観測は実用的な手法が未だ確立されておらず、空間代表性に未解明な部分の残るデータや時間的に分散的なデータを用いているのが現状である。

## 2. 研究目的

本研究では、地上での二酸化炭素および関連気体の連続観測とその直上の自由対流圏における二酸化炭素濃度の高頻度航空機観測を新たな手法で実施し、両観測の時間・空間的代表性の検討を通して亜大陸規模の炭素収支を評価するための理想的な観測手法の確立基礎を固めることを目的とする。具体的な実施方法とその特徴を以下に記す。

### (1) 地上における二酸化炭素濃度の連続観測

①大陸上の出来るだけ平坦で植生の均一な地点において二酸化炭素濃度を連続観測すると共に同地点でラドンやオゾンの濃度を連続観測し、境界層高度や境界層内における大気の混合度合いの指標とする。

②二酸化炭素の日中濃度の評価を行う。地上における観測であっても特定の条件のもとで日中濃度のみを抽出すればより上空の状態を反映しているので、大気輸送モデルにとって極めて有効な情報になると言われている。地上における連続観測の結果と、後述の小型航空機を利用した鉛直分布の高頻度観測を1年を通じて比較し、地上観測結果からより上空の情報を抽出するための条件選定を行うと共に、地上の日中濃度を利用することの有効性を評価する。

### (2) 小型航空機を利用した二酸化炭素濃度鉛直分布の高頻度観測

小型高機能で取り扱いの簡便な航空機搭載型二酸化炭素観測装置を開発し、二酸化炭素濃度の鉛直分布観測を高頻度化する。

1年を通じて鉛直分布の高頻度観測を行い、その結果を上述の地上観測と比較することによって航空機観測の時間的代表性を評価する。

### (3) 地域規模大気輸送モデルを用いた二酸化炭素収支の推定

上記の「日中濃度を利用した地上観測」と「航空機を利用した高頻度観測」を一次元の炭素収支モデルで解析し、当該地域の炭素収支推定を行い、それぞれの観測の有効性の評価および、亜大陸規模への展開にとって最も有効な観測の組み合わせを見積もる。

## 3. 研究方法

### (1) 観測地点

観測地点は地形が平坦であり比較的均一な植生を有する西シベリアのベレゾレチカ村(56° 10' N, 84° 20' E)周辺の森林地帯を選定し(図1)、ガस्पロム社所有の高さ90mの通信中継タワーを地上

観測に使用した。

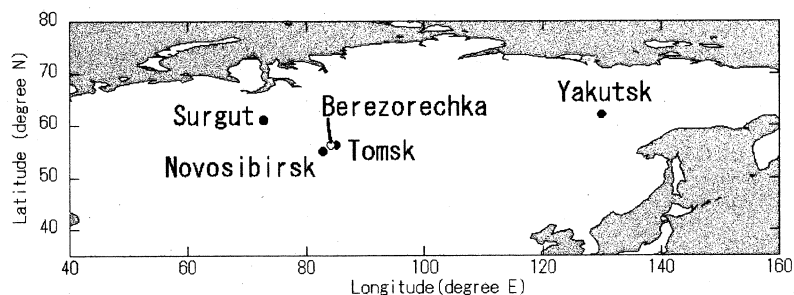


図1 本研究の観測地点

(2) 地上観測

地上観測はタワーの80m、40m、20m、5mの4高度に約5mのアームを取り付け、アームの先端付近に空気採取口や気象測器を設置した。各高度における観測項目は以下の通りである。

80m：二酸化炭素濃度、気温、湿度

40m：二酸化炭素濃度、ラドン濃度、オゾン濃度、風向、風速、気温、湿度

20m：二酸化炭素濃度

5m：二酸化炭素濃度、ラドン濃度、オゾン濃度、気温、湿度

①二酸化炭素濃度観測装置

本研究では物資の補給が困難な観測地点で長期観測を行うために、測定精度を維持しながらも標準ガスの消費量を極めて少なくした二酸化炭素濃度観測システムを開発した。図2に装置の概

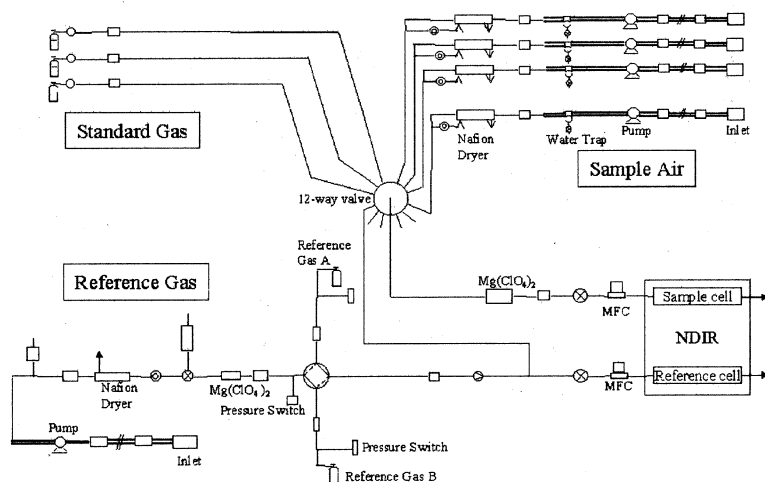


図2 二酸化炭素濃度観測システムの概略図

略を示す。各高度の大気はダイアフラムポンプによってポリエチレンチューブを通し観測用20ftコンテナに設置した二酸化炭素濃度測定システムに導かれ、断熱膨張による結露の排出、半透膜除湿器、過塩素酸マグネシウムの3段階の除湿を施した後、 $35 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$ の一定流量でダブルセル型の非分散型赤外分析計(NDIR)(LI-COR, LI-7000)で分析される。標準ガスにはCO<sub>2</sub> NIES-95scaleを採用した340-390 ppmの3種類の濃度のガスを用いている。

### ①航空機用二酸化炭素濃度観測装置

航空機用二酸化炭素濃度観測装置は、シングルセル型のNDIR(LI-COR, LI-800)に小型の流量調整装置と圧力調整装置を組み込んだもので(図5)、ポンプやデータロガーを合わせて約3kgと軽量で取扱いを容易にしている。電源投入後の動作は自動であり、5分に1回の頻度で濃度340ppmと390ppmの2本の標準ガス(NIES-95scale)がNDIRに導入される。測定システムの応答時間は約10秒、ノイズレベルは2秒平均値を利用した場合 $\pm 0.3$ ppm、10秒平均値を利用した場合 $\pm 0.15$ ppmである。

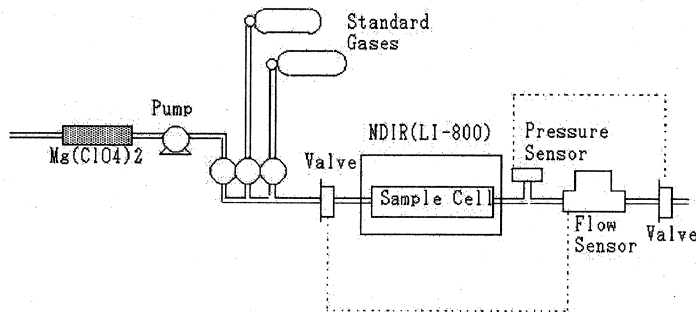


図5 航空機搭載用二酸化炭素濃度観測装置の概略図

観測に使用した航空機は小型の複翼機(An-2機)であり、2枚の左翼間のステーに空気取入口と温度計、湿度計を設置している。装置の小型化と自動化によって現地ではパイロットとメカニックのみで観測飛行を行うことが可能になり、高頻度の観測を実現可能にした。

### ②航空機搭載可能なラドン濃度測定器の開発

短時間に多数の測定点で上空大気中のラドン222濃度を測定する方法として、上空大気中ではラドン222と放射平衡にあると考えられるラドン222の短寿命子孫核種を測定する方法が考えられる。ラドン222子孫核種は希ガスであるラドン222と異なり、大気をフィルター等に通すことで捕集でき、捕集した子孫核種は直ちに放射線計測にかけることができる。放射線検出器として、アルファ線のエネルギー弁別が可能であり、アルファ線を放出する短寿命ラドン子孫核種毎の放射能を計数することができる半導体検出器CAM1700AM(Canberra, Inc., CT)を採用した。半導体検出器は機械的な構造を持たないため振動による破損や性能劣化を避けられると考えられる。加えて24V程度の低電圧の印加で動作するため、電池による電圧供給が可能であり、振動に影響されることなく安定した電圧を検出器に供給できる。基本性能を確認するための試験機を製作し、アルファ線のエネルギー弁別による子孫核種ごとの濃度算出および、平衡仮定ラドン222濃度の算出を行うことができた。未解決の問題として信号処理が遅く高計数率に対応できないものの、ラドン222濃度の低い上空観測には対応可能であることが確認された。

子孫核種を機外から導入して機内でフィルター上に捕集する場合、捕集効率を把握しておく必要がある。吸気流量 $50\text{L min}^{-1}$ の条件で捕集効率を最大化するよう長さ1m、内径45.3mmの採気管をステンレス鋼で試作し、実験施設にて子孫核種の捕集効率を測定した。ラドン222子孫核種は生成直後は単体金属あるいは酸化物の状態で浮遊し(エアロゾル非付着成分)、その後空气中を浮遊するエアロゾルに付着して存在する(付着成分)。捕集効率の低下に寄与するのは、拡散計数が大きく移動度が高いことから、容易に壁面に到達する非付着成分と考えられる。試験用採気管を容

積248Lの鉄製タンクに取り付け非付着成分のみの条件下での $^{218}\text{Po}$ 捕集効率を測定した結果を図6に示す。捕集効率は理論値とほぼ一致して約0.8であった。

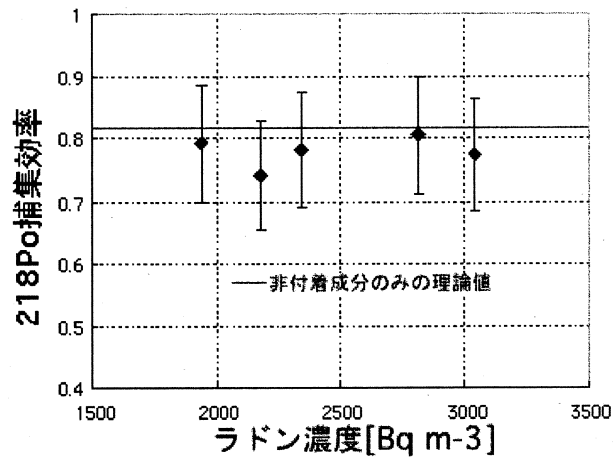


図6 非付着成分のみの条件下での $^{218}\text{Po}$ 捕集効率

次にラドンチャンバー（容積25m<sup>3</sup>）を用いて付着成分と非付着成分が混在する条件下での $^{218}\text{Po}$ 捕集効率を測定した（図7）。実測値は層流時の理論値と乱流時の理論値の間に収まり、0.6～0.8であった。採気管内の流れは層流と乱流の境界的な状態であることが示唆される。

図6、図7より、 $^{218}\text{Po}$ の捕集効率はおおむね0.6～0.8であると予測される。真のラドン濃度は本装置で測定されたラドン濃度を捕集効率で除すことで算出されるため、捕集効率の不確かさは真のラドン濃度の測定値の不確かさとなる。一方、高度2000m以上の上空での大気を想定したラドン濃度0.1 Bq m<sup>-3</sup>の場合、流量 50 L min<sup>-1</sup>で5min捕集したときのアルファ線計数をもつ統計変動は標準偏差で15%程度である。従って、効率が標準偏差で10%の不確かさをもつとき、上記の測定条件でのラドン濃度測定値の不確かさは標準偏差で18%となる。これは、従来の上空大気数10Lを採取して地上でラドン濃度を測定する方法をもつ統計誤差、約30%に対して改善されていることがわかる。

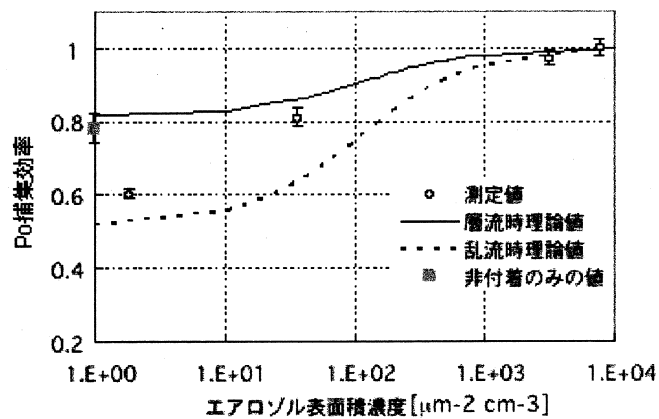


図7 付着非付着成分のみの条件下での $^{218}\text{Po}$ 捕集効率

#### 4. 結果と考察

##### (1) 地上観測

##### ①ベレゾレチカタワーで観測された二酸化炭素濃度の変動

2002年2月から2004年3月の間にベレゾレチカタワーの高度5mと80mで観測された二酸化炭素濃度の変動を図8に示す。二酸化炭素濃度はいずれの季節も日中に低く、夜間から早朝にかけて増加し、日の出とともに減少する日変動を示す。日変動の振幅は冬季に小さく、いずれ

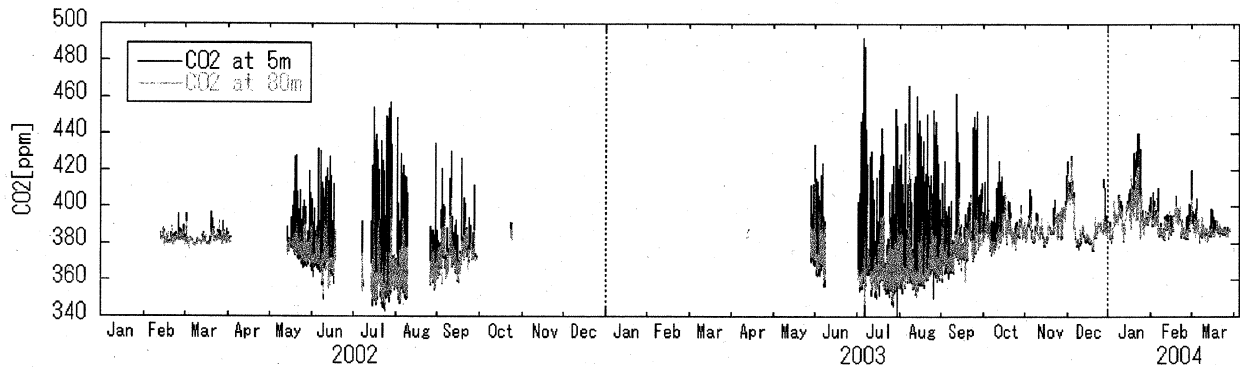


図8 ベレゾレチカタワーで観測された二酸化炭素濃度の変動

の高度においても最大で約15ppmであるが、夏季には高度80mで最大60ppm、高度5mでは120ppmにも達する。

図8の中から2002年2月末と7月末の連続した4日間を抜き出し、二酸化炭素濃度日変動の気温との関係を示したものが図9である。高度による二酸化炭素の濃度差は逆転層の有無によって差がみられ、明瞭な逆転層が観測されない日には観測を行っている全ての高度において5ppmの範囲内で一致して変化しているのに対し、逆転層が観測された日の早朝には高度80mと5mにおける濃度差が冬季で最大約15ppm、夏季には最大で約120ppmにも達する。

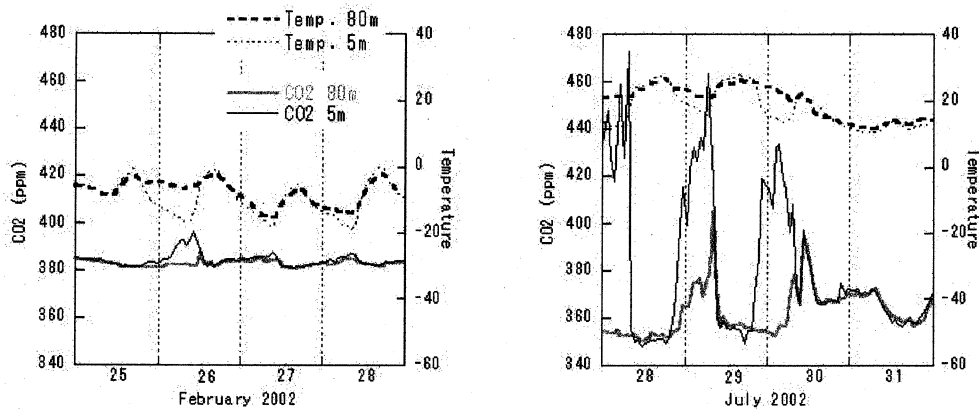


図9 ベレゾレチカタワーで2月末と7月末に観測された二酸化炭素濃度と気温の関係

二酸化炭素濃度の月毎の平均日変動を示したものが図10である。夜間の蓄積効果によって上昇した二酸化炭素濃度は日の出と共に低高度から減少を開始し、混合層の発達に従って上空の濃度も引き続き減少していく。高度80mの濃度が低高度と同じレベルに達した後にも混合層の発達

と光合成による二酸化炭素の吸収によって全ての高度で濃度は減少を続ける。6月から8月にかけては光合成の影響で日中の濃度は低高度ほど低い濃度になっているが、9月になると日中濃度の鉛直勾配は極めて小さくなっている。

2月や3月には振幅は非常に小さいものの、午前中に最高、午後に最低になる有意な二酸化炭素濃度の日変動が存在している。日変動を作り出しているのは大気の鉛直混合であるが、日変動が存在するということは極低温下のシベリアの冬季であってもベレゾレチカ周辺の生態系を含めた地表面からの二酸化炭素フラックスが存在していることを意味している。

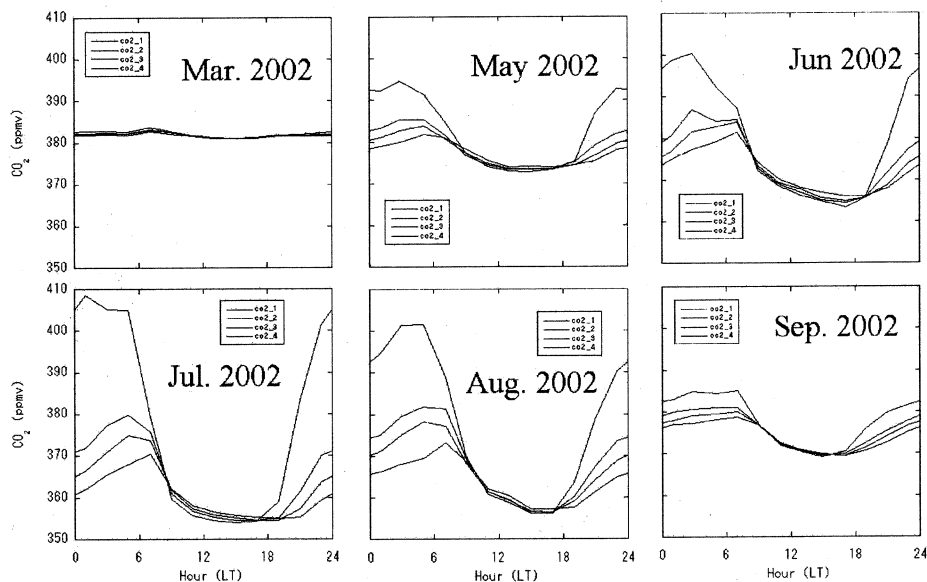


図10 ベレゾレチカタワーで観測された二酸化炭素濃度の平均的な日変動

冬季の二酸化炭素フラックスの存在は日変動以外のデータでも確認できる。図8では2003年11月末から12月初めにかけてと2004年1月後半に10-20ppmの二酸化炭素濃度の増大が観測されている。どちらの期間においても濃度は1週間ほどの間に徐々に増加し、期間の最後には高度80mにおいて、冬季としては最も高い濃度レベルの約425ppmおよび430ppmとなっている。この期間は寒気が流入し地表付近気温がマイナス25℃程度と極低温となったうえに、風が弱い状態が期間中持続したことで地表付近に形成された気温の逆転層が日中も解消されず保たれ続けたことがわかっている。このような気象条件下では生態系から放出された二酸化炭素が逆転層内に蓄積し続けて、冬季といえども非常に高い二酸化炭素濃度が観測されることがわかった。

ベレゾレチカタワーで観測された二酸化炭素濃度の中から日中のほぼ最低値を示す現地時間14:00から16:00のデータを抽出して2年2か月分の変動をプロットしたものが図11である。日中の濃度は冬季に高く夏季に低い明瞭な季節変動を示している。冬季の最高濃度と夏季の最低濃度との差は30ppmにも達している。

前述の2003年11-12月と2004年1月に観測された極低温化における逆転層内の二酸化炭素の蓄積は図9のように日中濃度を比較すると顕著であることがわかる。

日々の濃度の違いは2月から6月にかけては比較的小さいが、7月から大きくなり、9月になってもばらつきは大きいままである。濃度上昇期に相当する9月の日中濃度は5月後半から6月にかけての濃度減少期と同じレベルにあるが、日々の濃度のばらつきは春季に比べて明らかに大

さい。これは濃度減少期には二酸化炭素を放出する陸上生態系の呼吸や土壌有機物の分解活動に比べて二酸化炭素を吸収する光合成活動が盛んであるのに対し、濃度上昇期には両者の強度が逆転することに起因していると考えられる。即ち、主に光の強度に依存する光合成活動より気温に影響されやすい呼吸・分解活動の方が日々の変動が大きいというメカニズムの違いが二酸化炭素濃度のばらつきの違いとして表れていると解釈できる。

また、冬季においては11月から1月にかけての濃度のばらつきが2月から3月にかけてのばらつきより大きい。ベレゾレチカは初冬に高気圧に覆われることが多く、1年の最低気温もこの時に記録される。大気の安定化に伴う二酸化炭素の拡散の違いが冬季における濃度のばらつきの原因の1つと考えられる。

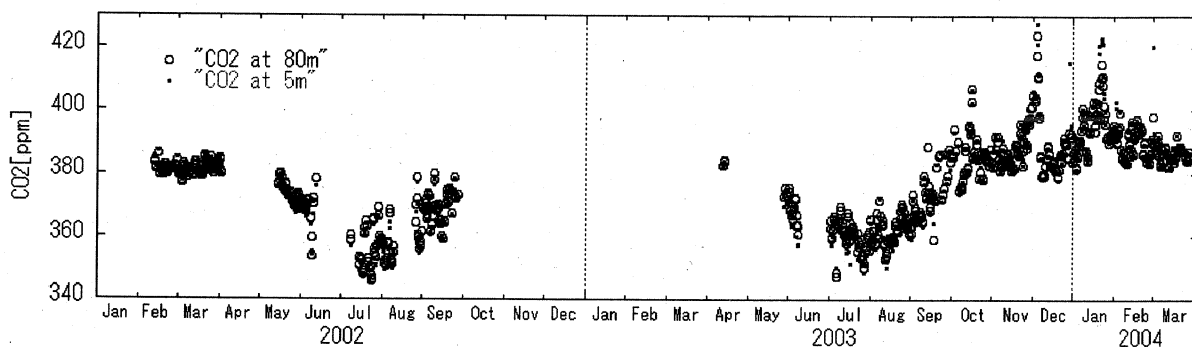


図 1 1 ベレゾレチカタワーで現地時間 14 時から 16 時の間に観測された二酸化炭素濃度

ベレゾレチカタワーの 80m と 5m で観測された二酸化炭素の日中濃度のフィッティングカーブを比較したものが図 1 2 である。高度 5m の濃度は 80m に比べて夏季に 3ppm ほど低い、冬季は濃度差がほとんどない。夏季の日中は大気の鉛直混合が盛んであるが、陸上生態系による地表面での二酸化炭素吸収が強いために有意な濃度差を作り出している。一方、冬季の鉛直混合は夏季に比べて非常に弱い、二酸化炭素放出量の小ささを反映して濃度差はほとんど生じないことがわかった。

高度 5m における平均的な季節変化の振幅は約 34ppm である。1993 年から 1998 年にかけて東シベリアヤクーツク近郊の森林で得られた二酸化炭素の季節振幅は約 25ppm であるので<sup>2)</sup>、ベレゾレチカ村を取り囲む西シベリアの森林地帯の陸上生態系は東シベリアと比較してより多くの二酸化炭素を大気との間で交換していることがわかる。

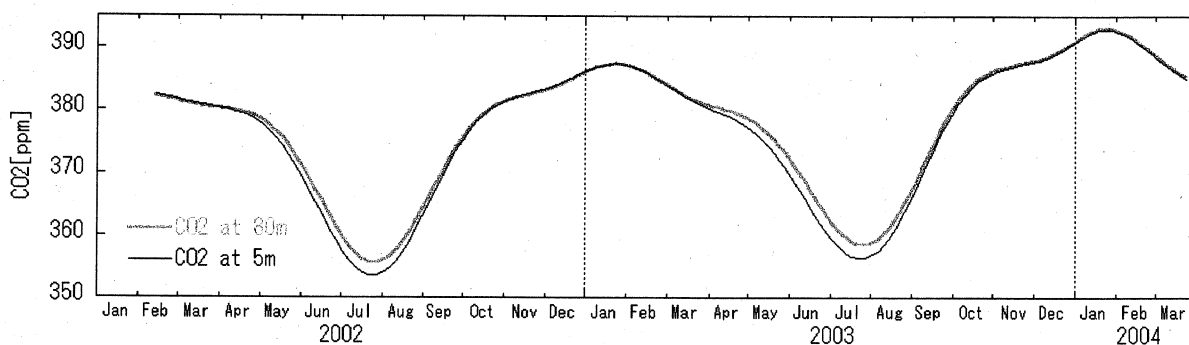


図 1 2 ベレゾレチカタワーの 80m と 5m で観測された二酸化炭素の日中濃度のフィッティングカーブ



## ②ベレゾレチカタワーで観測されたラドン濃度

図13にベレゾレチカタワーで2001年10月から2004年2月までに観測されたラドン濃度の変動を示す。夏季から秋季(6月-9月)には、夜間から早朝にかけてラドン濃度が上昇し、日出後に減少して午後に極小を示す典型的な陸上での日変動がほぼ毎日観測された。濃度極大時に地上高40mでのラドン濃度に対して5mでの濃度が数Bq m<sup>-3</sup>程度高くなる状態が頻繁に観測された。このことは、ベレゾレチカ周辺域では、夏季を通じて夜間には放射冷却による大気の安定度が増し、上空との混合が抑制されていることを示す。ラドン濃度の日変動の極小は現地時間の午後に観測され、正午頃までラドン濃度は減少を続けた。従って大気安定による地上付近での大気の滞留は、正午近くまで解消しないと考えられる。

冬季(10月-3月)には夏秋季に顕著であったラドン濃度日変動が比較的不明確となり、2-3日間にわたって高い濃度が続く変動が観測されるようになった。冬季の期間中でも、12月、1月にラドン濃度は最低濃度、極大値ともに非常に高くなる傾向にあり、それぞれ40Bq m<sup>-3</sup>以上、60Bq m<sup>-3</sup>以上に達するラドン222濃度が多く観測された。観測地は高緯度であるために寒冷で日射量が少なく、更に地表面が積雪で覆われるために日射による地表面温度・気温の上昇が起こりにくい。従って大気の安定が強く保持されて、地表付近に蓄積した大気にラドン222が上空大気との混合によって希釈されにくく、屋外空気としては極端な高濃度が形成されると考えられる。更に、地表付近の大気でのラドン222が蓄積されるためには、厚さ1m以上に達する積雪の存在にも関わらず土壌から大気へのラドン222放出が有意に存在していることを示す。

春季(4月-5月)は、年間を通して最もラドン222濃度が小さく、濃度日変動の振幅も小さい。この期間は気温が0℃を超えるようになり、積雪の融解によって土壌の含水率が増大する、あるいは広範囲にわたって低地が水で覆われると推測される。従って土壌から大気中へのラドンの輸送経路である土壌間隙が水で狭く、あるいは水で満たされるため、土壌間隙中のラドン222の拡散による輸送が抑制されて大気へのラドン散逸率が減少すると考えられる。その結果、大気中ラドン濃度および夜間の大気安定による濃度上昇幅は低下すると考えられる。2003年は5月末以降、ラドン濃度と日変動の振幅はゆっくり増加傾向を示した。これは、水域の減少や土壌の乾燥が進み、大気へのラドン散逸率が回復する過程を反映していると推測される。土壌中のラドンの輸送経路は土壌ガスの輸送経路でもあるため、春季のラドン濃度の減少は、土壌からの他の気体の放出機構の抑制の推測手段を提供できる可能性がある。

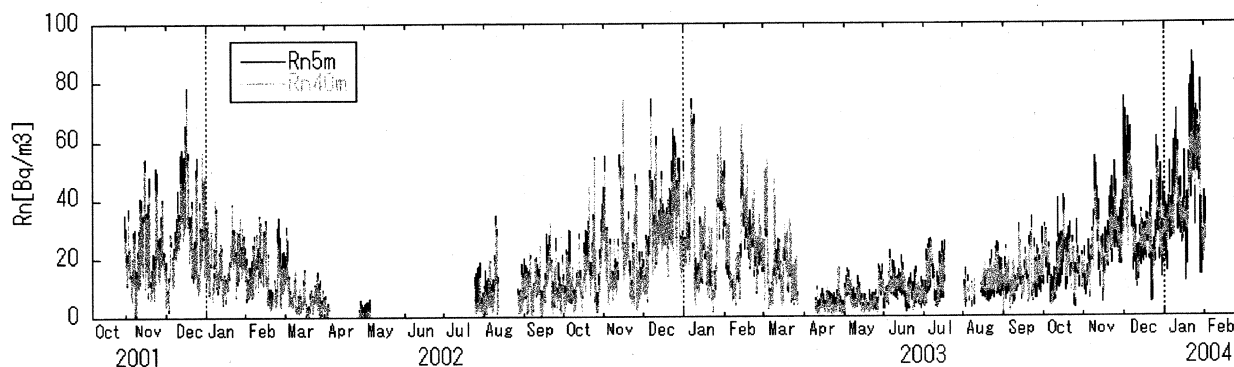


図13 ベレゾレチカタワーで観測されたラドン濃度の季節変動

図9と同様に2月末と7月末におけるラドン濃度日変動の気温との関係を示したものが図14である。二酸化炭素と同じように気温の逆転層が形成される夜間には地表から放出されたラドンの蓄積効果によって濃度の絶対値が大きくなり、高度方向の濃度差も大きくなっている。しかしながら夏季と冬季のピークの大きさを比較すると、二酸化炭素は呼吸・分解によるフラックスの季節変動を反映して夏季に非常に大きな夜間ピークが観測されているのに対して、ラドンでは季節によるピーク高の違いが小さい。これはラドンの地表からのフラックスが融雪期等の一部の季節を除いてほぼ一定であることに起因しており、地上で観測されたラドン濃度の変動が大気鉛直混合の指標として適していることを意味している。

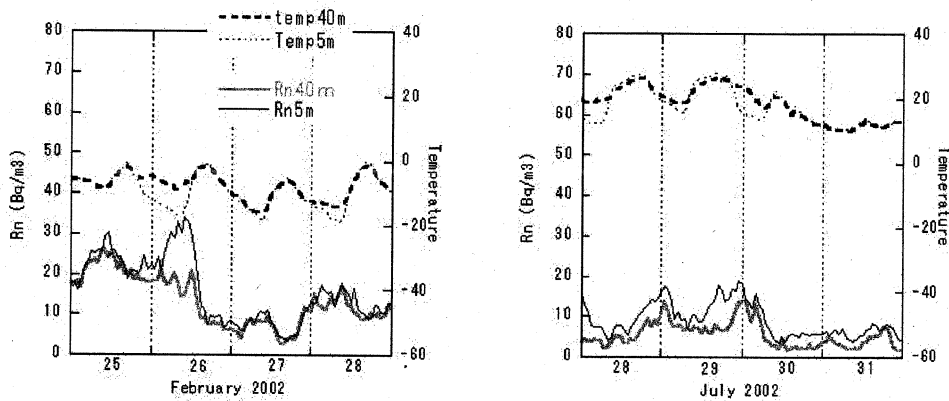


図14 ベレゾレチカタワーで2月末と7月末に観測されたラドン濃度と気温の関係

また、ラドンはその大気中の性質から大気輸送モデルの有効なトレーサーとして広く利用されているが、現在のモデルでは積雪期のラドンフラックスをゼロと仮定して計算を行っている。本研究で観測された大気中ラドンの変動はこの仮定を明らかに否定するものであり、今後のモデルの検証にとって非常に重要な結果であると言える。

地表面から大気に散逸したラドン222は、逆転層が形成される安定な大気条件では地表付近の大気中に蓄積する。タワーの地上高5mおよび40mでのラドン222濃度上昇幅から両高度間に蓄積したラドン222量を見積もり、蓄積に要した時間で除して、積雪期のタワー周辺の地表面からのラドンフラックスを見積もった。

日変動によるラドン222濃度の上昇事象で、(1)逆転層の高度が80m以下、(2)風が弱い、(3)地上高5mでのラドン222濃度の増加率が地上高40mよりも大きい、の3条件を満たす観測結果を用いて見積もられた雪面から大気へのラドン222散逸率は、おおむね6~10 mBq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>の範囲であった。これは、2002年7月にタワーの周囲10kmの森林・草地にて実測された散逸率と同程度であった。

上記の2高度間のラドン222濃度増加量から散逸率を評価する方法では、積雪層と大気層からなる1次元拡散数値計算結果との比較から、最も小さい場合で散逸率を約60%に過小評価している可能性が示された。1次元拡散数値計算は同時に、積雪層の存在はほとんど土壌から大気へのラドン222輸送を妨害しないことを示した。

一般に、土壌の含水率が地表から大気へのラドン222散逸率の時間変動の主要な要因と考えられて

いる。地表面が積雪で覆われている場合、降雪による水分の供給と積雪による保湿のため、土壌の含水率が高まり、その結果土壌中のラドン<sup>222</sup>輸送が抑制されると考えられる。しかし、ベレゾレチカタワー周辺では積雪期にラドン散逸率が大きく減少しなかった。この原因として、寒冷であるために積雪からの融解水が少ない、土壌の水はけが良いことが考えられる。

### ③ベレゾレチカタワーで観測されたオゾン濃度

ベレゾレチカタワーで観測されたオゾン濃度の季節変動を図15に示す。オゾン濃度は成層圏大気の影響や対流圏でのオゾン寿命の季節性を反映して春に極大、夏に極小を持つ季節変化を示している。ベレゾレチカのオゾン濃度は2003年5月中旬に期間中の最高値である88ppbを記録した。高度5mでは夏季の夜間に連日10ppb以下の低濃度が観測された。

オゾン濃度は夏季から秋季にかけてやや増加するが、10月後半から翌年の1月までは約20ppbと再び低い濃度を保っている。これはベレゾレチカが最も低い気温を示す時期と一致している。大気が安定しているにもかかわらず濃度が夏季ほど低くならないのはオゾンの大気中寿命が夏季よりも長いためであると考えられる。2003年11-12月と2004年1月には5ppb以下の低濃度が観測されている。上述のように冬季のオゾンの寿命が比較的長いにもかかわらずこのような低濃度が観測されたということは大気の鉛直混合が極めて抑制されていたということであり、同じ時期に二酸化炭素濃度とラドン濃度が高濃度であったことと整合している。

オゾン濃度冬季の2月から3月にかけて増加している。これは大気の最も安定した時期が終わったことにより大気が鉛直方向に混合しやすくなったことが原因の一つと考えられる。二酸化炭素濃度の季節変動に同じ時期に目立った違いはないが、二酸化炭素の日中濃度の日々のばらつき(図11)には大気安定度の差に起因すると思われる違いが表れている。

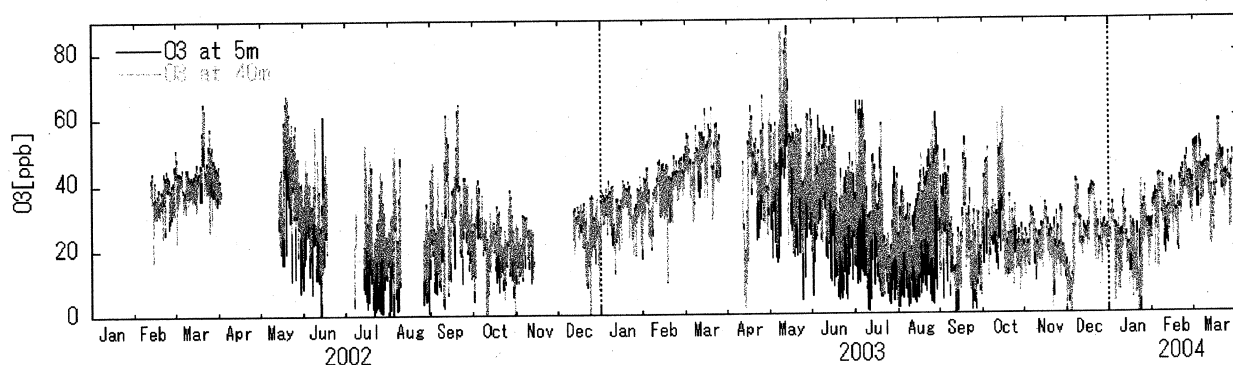


図15 ベレゾレチカタワーで観測されたオゾン濃度の季節変動

図16は2002年2月末と7月末におけるオゾン濃度日変動と気温との関係である。オゾンは二酸化炭素やラドンと違い地表が消滅源であるので明け方に極小値を示し、日中には上空の高濃度オゾンの大気との混合によって濃度が増加している。夜間の逆転層が生じると地表付近の濃度が減少し、高度40mとの濃度差も大きくなっている。夏季には0ppb近くにまで濃度が低下することもある。オゾンは反応性に富んだ気体であり、その生成や消滅に関わる気体の濃度や日射の季節変動によって大気中の寿命が季節によって異なる。従ってラドンのようにその濃度変化から大

気の希釈度合いを定量的に議論することは難しいが、測定装置の応答速度の速さや大気中濃度の変動量の大きさから、短周期での大気混合度の指標として有効な観測項目であることが本研究の観測によって実証された。

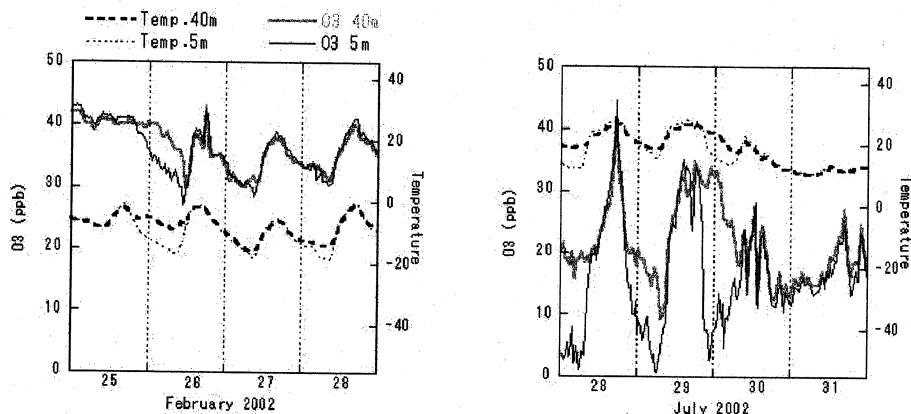


図16 ベレゾレチカタワーで2月末と7月末に観測されたオゾン濃度と気温の関係

## (2) 航空機観測

### ① 二酸化炭素濃度の鉛直分布と季節変動

図17に2001年10月から2002年12月までに得られたベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度の鉛直プロファイルを示す。二酸化炭素濃度の鉛直勾配は冬季には非常に小さく、高度0.5km以上ではほぼ一定であるが、地表付近でやや高い濃度を示している。2月から5月中旬までは濃度の経時変化はほとんどなかった。シベリアでは冬季になると日中になっても地表付近の気温の逆転層が消滅しないことがある。このような大気状態の際には2002年2月2日や2002年11月14日のプロファイルに見られるように低高度に二酸化炭素が蓄積することによって非常に高い濃度を示す。

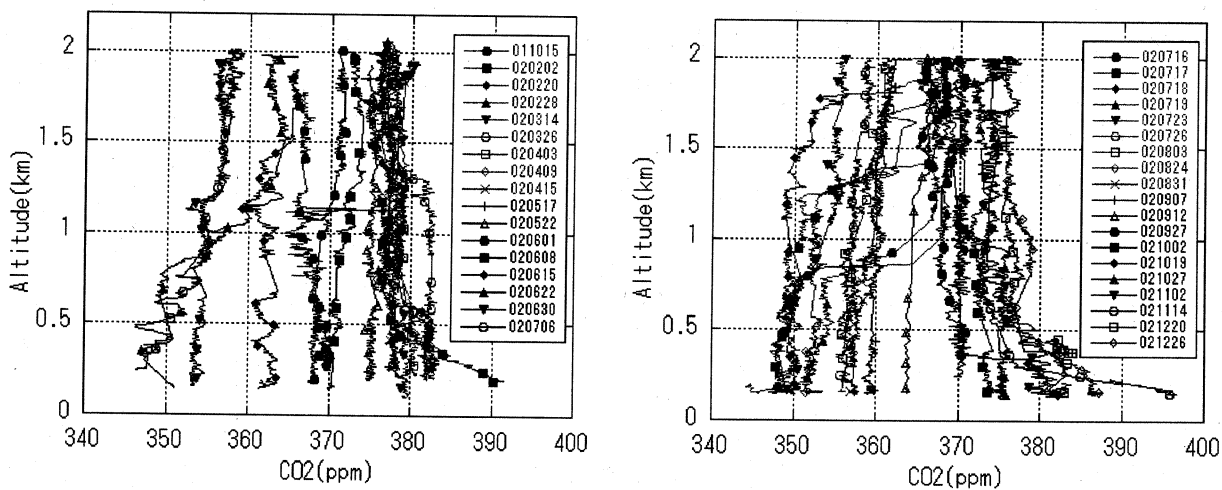


図17 ベレゾレチカ上空で2001年10月から2003年12月までに観測された二酸化炭素濃度の鉛直分布

5月下旬になると二酸化炭素濃度は全ての高度で減少を始め、6月に入ると濃度勾配が逆転して低高度で低い濃度を示しながら減少を続け、7月中旬にその年の最低濃度を示す。夏季は冬季に比べて鉛直方向の濃度勾配が大きく、高度2kmと0.15kmの差が最大で15ppmにも達した。また、夏季には大気境界層内の乱流による二酸化炭素の輸送状態に大きな空間分布があるために鉛直方向の濃度のばらつきが大きくなっている。

図18に2003年1月から2004年3月までに得られたベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度の鉛直プロファイルを示す。大気境界層の上端高度は時として2km以上になることがあるので、2003年は夏季に限って飛行最高高度を3kmに設定した。高度2km以上の二酸化炭素濃度は決して一様ではなく、地表付近の低濃度が高度2.3kmから2.8km付近にまで達していることもあった。また、高度3kmまで温度、湿度、二酸化炭素濃度の明瞭なギャップが見られないこともあり、大気境界層高度が3km以上にまで達している可能性も示唆される。

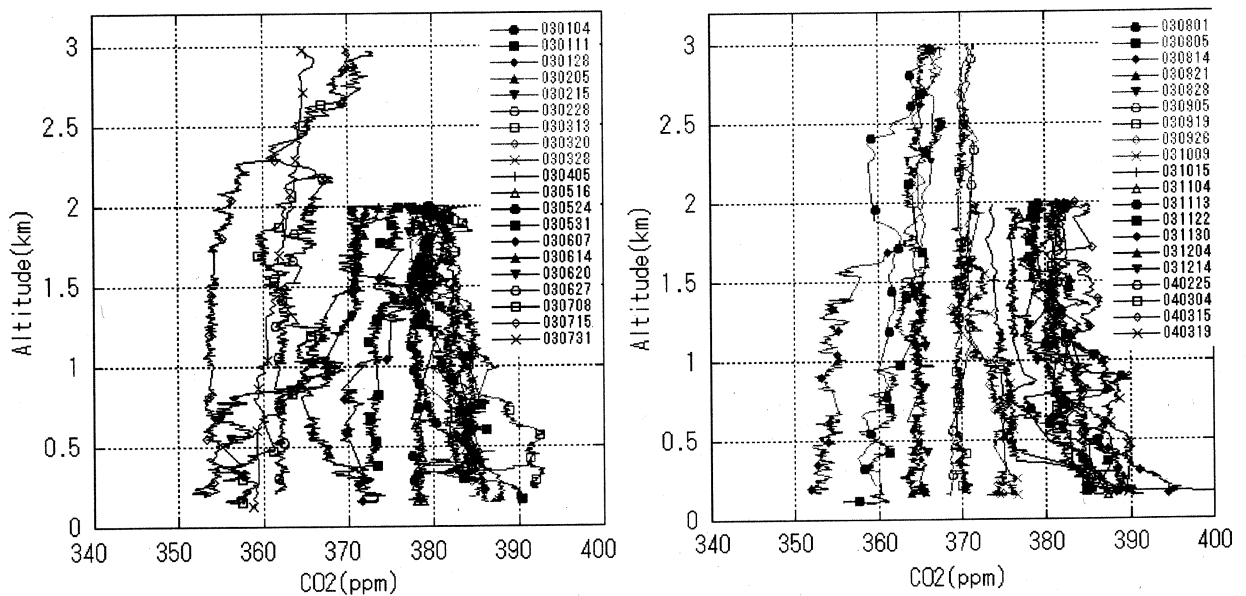


図18 ベレゾレチカ上空で2003年1月から2004年3月までに観測された二酸化炭素濃度の鉛直分布

鉛直方向の二酸化炭素濃度を0.5km毎に平均して2001年10月から2004年3月までの時間変動としてプロットしたものが図19である。実線は調和関数とReinchタイプのスプライン関数によって季節変動と経年変動を表現したフィッティングカーブである。

二酸化炭素濃度はベレゾレチカ上空の全ての高度において明瞭な季節変化が見られると共に経年的な濃度の増加も観測されている。季節変動の振幅は上空にいくほど小さく、2002年と2003年ではほぼ同程度であった。

観測値のフィッティングカーブからのばらつきは全体的に小さいが、2002年の夏季における日々の濃度差が他の季節に比べて大きくなっている。これは図11で示した日中のタワー観測値と同様の傾向であるが、日々の変動の度合いは航空機観測の結果がはるかに小さい。

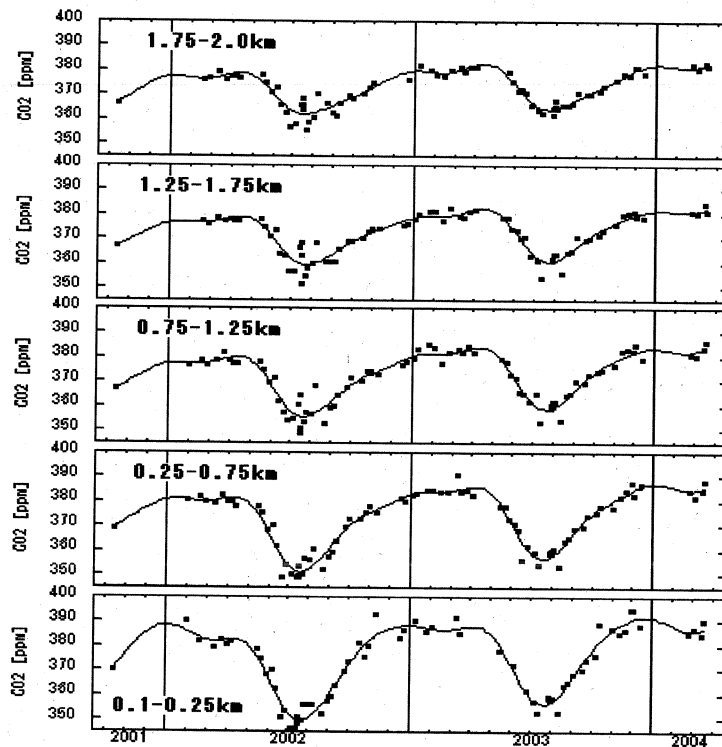


図19 ベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度の高度別時系列。  
 黒丸が各高度帯の平均値を、実線がフィッティングカーブを表す。

図20は図17のフィッティングカーブから平均的な季節変動成分（調和関数成分）のみを抽出してプロットしたものである。季節変動の振幅は0.1-0.25kmの最下層で最も大きく、36.6ppmにも達している。振幅は上空に行くに従って小さくなり、0.25-0.75kmで30.7ppm、0.75-1.25kmで25.7ppm、1.25-1.75kmで21.4ppm、1.75-2kmの高度帯では18.5ppmである。季節変動の位相は最下層を除いて低高度が上空に比べてわずかに先行していることがわかる。

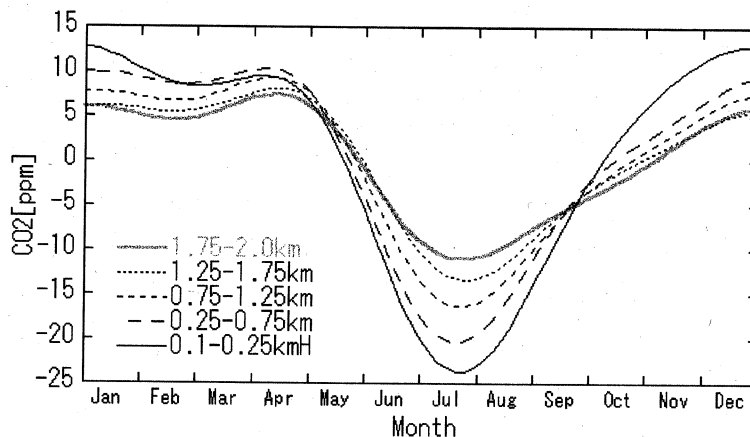


図20 ベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度の平均的な季節変動

ベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度の季節変動を同じ西シベリアのノボシビルスク (55° N, 83° E) 上空 (図1参照) の0.5kmと1.5kmにおける航空機サンプリングの観測結果<sup>3)</sup>と

比較したものが図 2 1 である。ベレゾレチカ上空の高度 0.5km を中心とした 0.25-0.75km の平均値の季節変動はノボシビルスク上空 0.5km における振幅である 25.3ppm に比べて 5ppm も大きい。より上空の高度 1.5km を中心とした 1.25-1.75km の季節変動もノボシビルスク上空 1.5km の 18.5ppm より 3ppm 大きい。従って、ベレゾレチカ周辺の陸上生態系の活動がノボシビルスク周辺の生態系に比べてより盛んであることが示唆される結果となった。

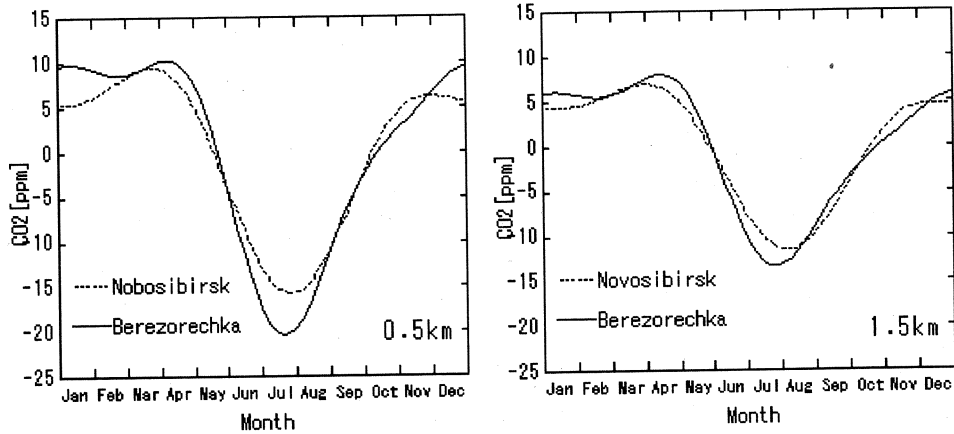


図 2 1 ノボシビルスク上空とベレゾレチカ上空における季節変動の比較

②大気境界層と自由対流圏における二酸化炭素濃度の違い

大気境界層内と自由対流圏における二酸化炭素の振る舞いを明らかにするために各フライトで得られた気温、温位、湿度、二酸化炭素濃度の鉛直分布から境界層上端高度を決定した。例として 2002 年 3 月 26 日に得られた気温、温位および二酸化炭素濃度の鉛直分布を図 2 2 に示す。一般に境界層の上端は気温の逆転が見られ、境界層内では温位が高度方向にほぼ一定である。地表面の影響を直接受ける大気境界層内の二酸化炭素濃度は図 2 2 のように自由対流圏の濃度と明瞭な差が見られることが多い。

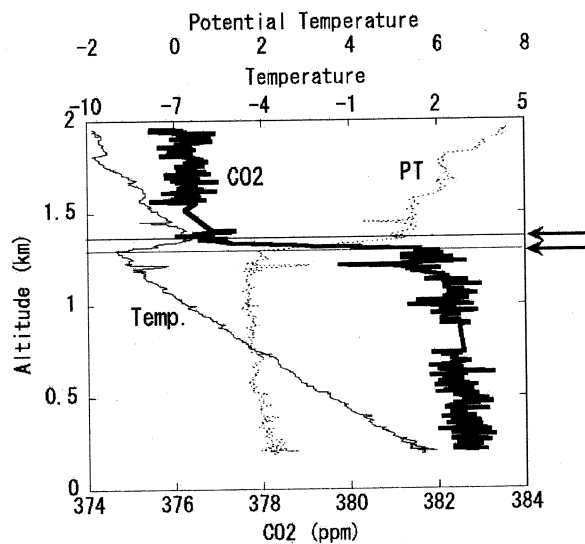


図 2 2 2002年3月26日に観測された気温、温位および二酸化炭素濃度の鉛直分布。矢印が境界層上端高度。2つの矢印の間は遷移領域に相当する。

大気境界層上端の高度の季節変動を表したものが図23である。気温や湿度の不連続点が明瞭でない場合はデータから除外した。また、境界層が高度3km以上に発達することもあり得るのでこの図は完全ではない。境界層上端高度は冬に低く夏に高い季節変動を示しているが、夏の上端高度は日々の変化が大きく、日によっては高度1km以下となることもある。

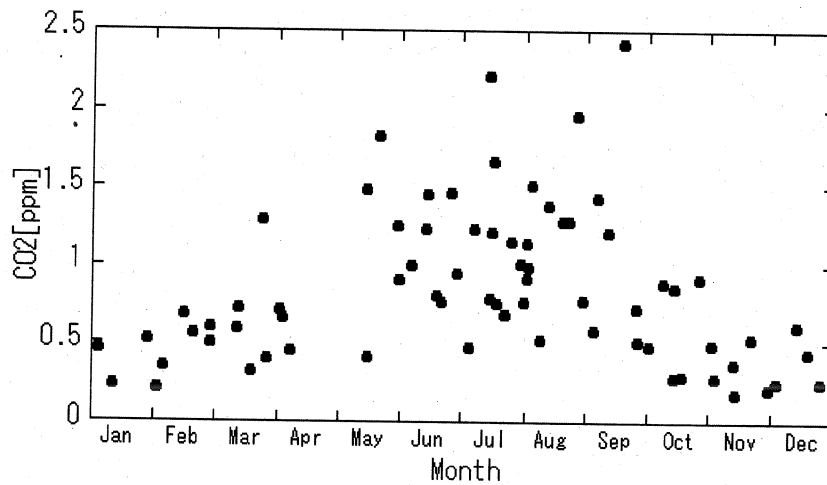


図23 ベレゾレチカ上空における大気境界層上端高度の変動

大気境界層内と自由対流圏の二酸化炭素濃度を平均し、季節変動をプロットしたものが図24である。フィッティングカーブから得られた季節変動の振幅は34.4ppm(PBL)と16.4ppm(FT)であり、2倍以上の差が存在している。2002年の夏は2003年の夏に比べて二酸化炭素濃度の日々のば

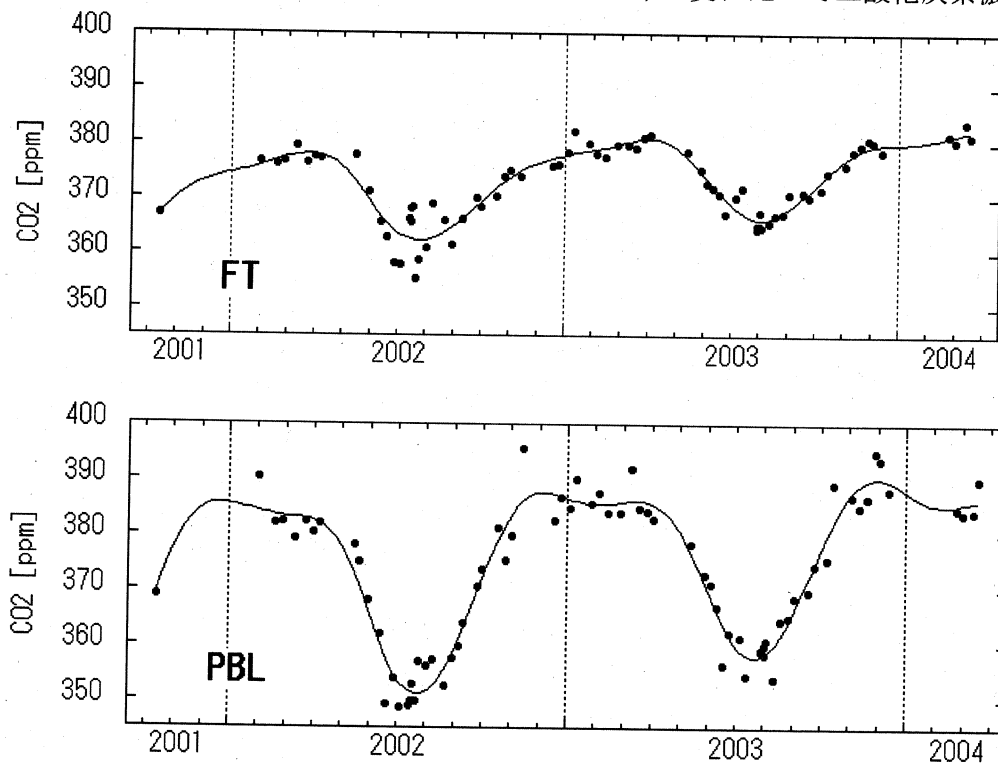


図24 大気境界層内(PBL)と自由対流圏(FT)の二酸化炭素濃度の季節変動。丸印が各高帯の平均値を、実線がフィッティングカーブを表す。



らつきが大きくなっている。ばらつきが特に自由対流圏において大きいことからわかるようにこれは総観規模の気象現象に伴うベレゾレチカ上空にやってくる気塊の違いに起因していると考えられる。

これらのデータは3次元炭素循環モデルの評価に直接貢献できる貴重なものであり、このような高頻度航空機観測によって大気境界層内とその直上の自由対流圏における二酸化炭素の季節変動を比較した例はこれまで存在しなかった。

図25は自由対流圏と大気境界層内の二酸化炭素濃度のフィッティングカーブを比較したものである。自由対流圏の二酸化炭素濃度は大気境界層の濃度に比べて夏季に高く、冬季に低い。夏季の最低値を示す時期は自由対流圏の変動に半月からひと月の遅れが認められる。

図12のタワー観測では高度による二酸化炭素濃度の違いは主に夏季だけであり、冬季はほとんど同じ濃度であった。これに対して図25では冬季に明瞭な違いが認められている。さらに冬季の濃度差は初冬に大きく、晩冬になるに従って小さくなっている。これは1つには大気境界層内の濃度は大気の安定度が増す初冬において高濃度を示しやすいことが理由である。もう1つは自由対流圏の濃度変動はよりバックグラウンド濃度の変動に近く、初冬には大気全体の二酸化炭素蓄積量は少なく、光合成の始まる春先にかけて徐々に上昇していくといった季節変動になっていることが原因である。

図25から、2002年における大気境界層内の年平均濃度は374.0ppm、自由対流圏の年平均濃度は371.9ppmであると計算できる。2003年においてはそれぞれ、377.9ppm、375.4ppmである。いずれの年においても大気境界層の平均値が2ppm以上高い。ベレゾレチカ周辺の化石燃料燃焼による二酸化炭素の放出は十分小さいと考えられるので、この濃度差は二酸化炭素フラックスの季節変化と大気鉛直輸送の季節変化の共分散が作り出すいわゆるrectifier effectであり、この効果は初冬の気安定に伴う境界層内の高濃度に依るところが大きいことがわかる。

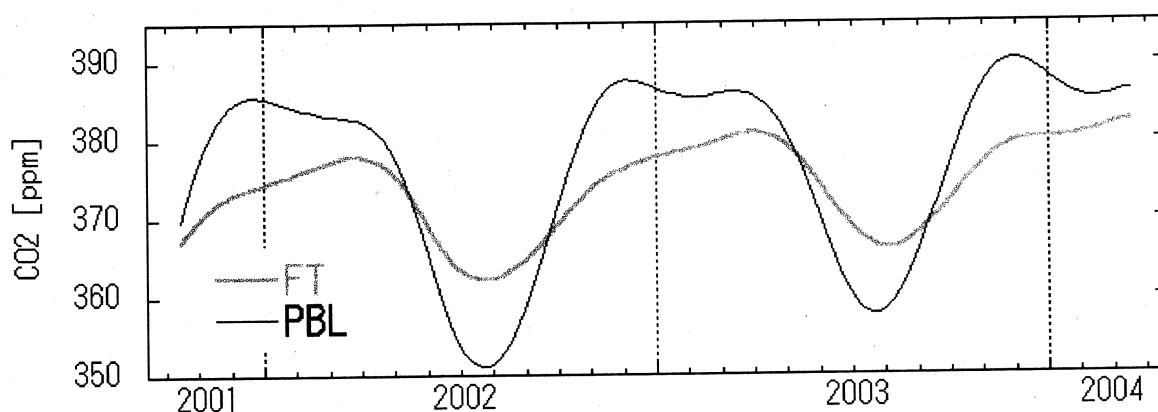


図25 大気境界層内(PBL)と自由対流圏(FT)の二酸化炭素濃度のフィッティングカーブの比較

### ③日変動観測

2002年7月18, 19, 23, 26日、9月12日の5日間と2003年7月8, 15日、8月1, 3, 4, 5日の6日間に二酸化炭素濃度鉛直分布の日変動観測を行った。集中飛行を行った2002年7月は例年のこの季節の典型とやや異なり、温帯低気圧、移動性高気圧が通過する天候状態であった。同じく集中観測を

行った2003年8月は例年見られる夏季の典型的な天気に対応する条件であった。

日変動観測の一例として2002年7月18日と7月19日に得られた二酸化炭素濃度の鉛直分布を図26に示す。一般的に地表面の影響を強く受ける大気境界層の構造は日射による地表面の加熱により熱的な対流混合を生じ、日中において地表面付近から徐々に高度が増加する。同時に地表面の生態系は十分な入力放射を受け、光合成活動により大気二酸化炭素濃度を低下させる。このため二酸化炭素の吸収を反映した大気境界層内濃度と上層の自由大気の間に濃度差が生じる。18, 19日共に二酸化炭素濃度の明確なギャップが確認される。しかしながらその存在高度には明確な違いがあり、18日が高度1800m付近に見られるのに対し、19日は1000m付近を中心に観測された。また、ギャップの存在する高度は18日には終日1800m付近に存在するのに対し、19日は早朝には1200m付近に存在していたものが日中低下し、夕方には800m付近に存在する変化を示した。これらの観測結果から大気境界層内の二酸化炭素濃度プロファイル構造が、常に地表面の加熱状態によって決定されるものではないということが確認された。また18日から19日にかけての変化から、このような構造が大規模なスケールで形成される移動性高気圧および温帯低気圧に伴う異なる大気塊の存在とその挙動が重要な役割を果たしていることが明らかにされた。

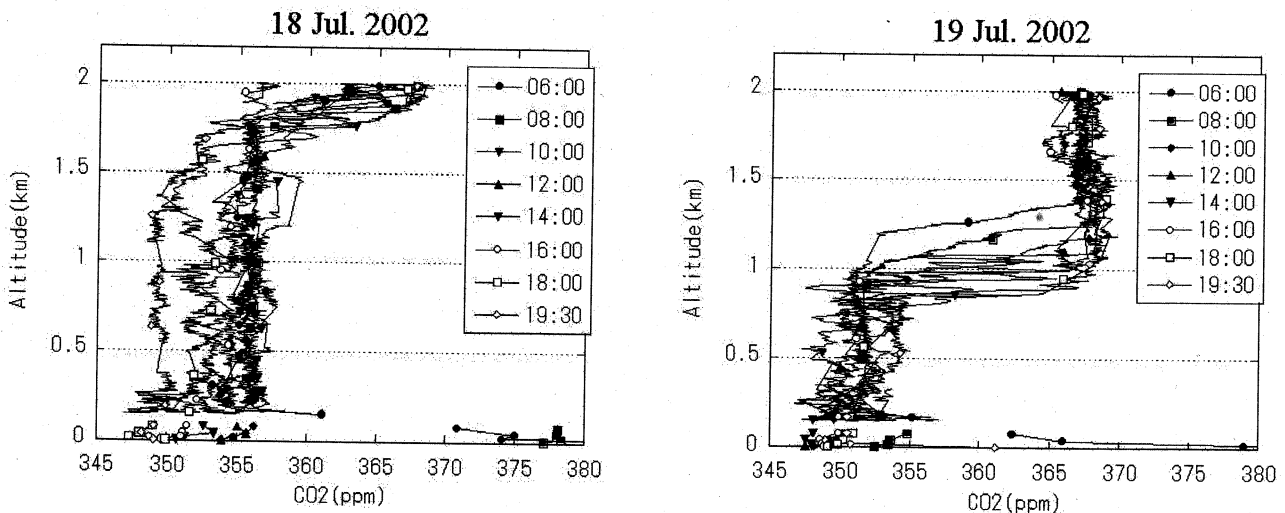


図26 2002年7月18日と19日に得られたベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度鉛直分布の日変動

2003年における観測結果の一例として、8月1日の観測結果を図27に示す。この日はベレゾレチカ付近における典型的な夏季晴天日の特徴が見られた日であった。この地域の夏季における晴天日は早朝には快晴、そして地表面の加熱による対流混合と地表面からの蒸発散による大気への水分供給により、日中徐々に雲が発達し、午後になると発達した積雲から雷を伴う降雨が生じる。そして降雨後は再び快晴となる。この日は日中15:00~17:00に降雨が観測され、降雨前と降雨後は晴天であった。

早朝は地表面付近に形成される安定成層内に、夜間における陸域生態系の呼吸による二酸化炭素の放出の影響が蓄積され、非常に高い濃度を示す。そして日射による地表面の加熱の開始と共に鉛直対流混合が生じ、同時に生態系による光合成活動により二酸化炭素が吸収される。このため大気境界層内の二酸化炭素濃度は徐々に低下し、対流混合の発達に伴い大気境界層高度は徐々

に増加している。13:00に境界層高度は約2000m、二酸化炭素濃度は最も低い約357ppmとなった。ところが降雨の後である19:30のプロファイルでは大気境界層内で二酸化炭素濃度の増加が観測された。これは発達した積雲による降雨現象が強い鉛直循環を引き起こし、自由対流圏と境界層内の大気を混合したことに起因するものと考えられる。すなわち、地表面の二酸化炭素吸収の影響を受けた大気が自由対流圏へ輸送される過程を示すものである。このように夏季におけるシベリアの陸域生態系による活発な二酸化炭素吸収の影響が対流混合による積乱雲の形成とそれに伴う降水イベントを経て、自由対流圏へ輸送されるひとつの過程が日変化観測から明らかにされた。

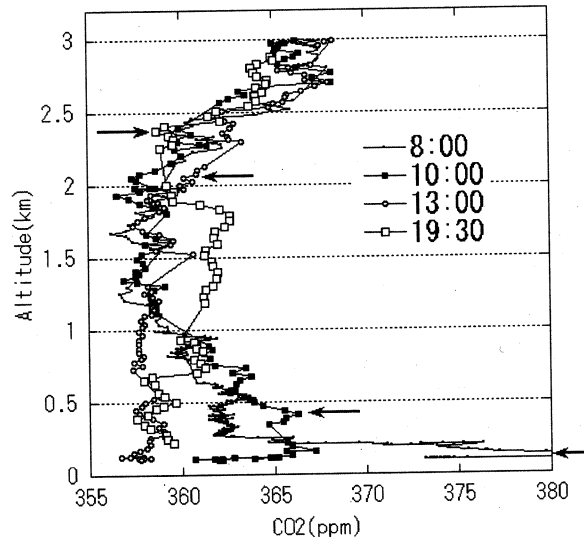


図 2 7 2003年8月1日に得られたベレゾレチカ上空における二酸化炭素濃度鉛直分布の日変動。  
矢印は大気境界層上端の高度を表す。

### (3) タワー観測と航空機観測の比較

本研究では2年半の間に非常に多くの航空機観測を実施することが出来た。これらの観測で得られた上空の二酸化炭素濃度をタワー観測で得られた結果と比較した。

図 2 8 は大気境界層内で航空機観測によって得られた二酸化炭素濃度の変動をタワーの80mで

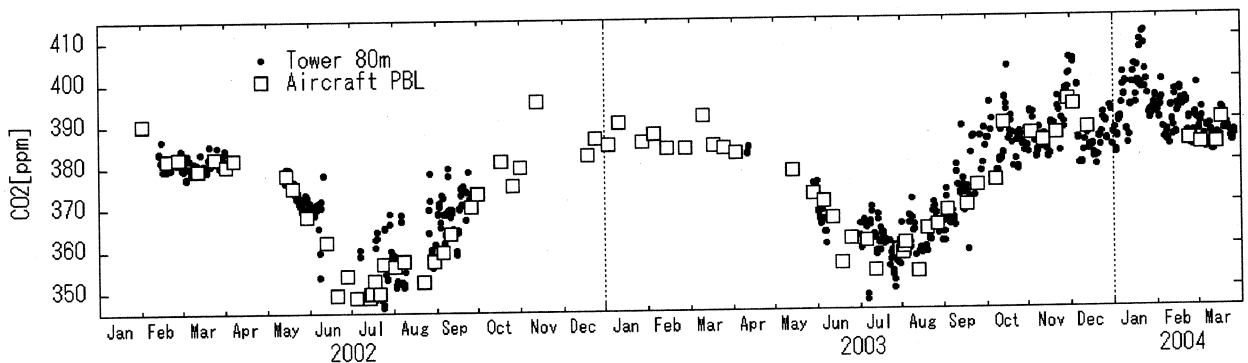


図 2 8 ベレゾレチカタワーで現地時間の日中に観測された二酸化炭素濃度とベレゾレチカ上空の大気境界層内で航空機によって観測された二酸化炭素濃度の比較。

得られた日中濃度と同時にプロットしたものである。両者の値は冬季にはよく一致している。夏季はタワー観測値の日々変動の中で比較的low濃度のデータが航空機観測値と一致している。これは航空機観測が気象条件の整った日に実施されていることが原因の一つであると考えられる。春季から夏季にかけての濃度減少期には両者の差が小さいが、夏季から秋季にかけての濃度増加期ではタワーの観測値がその上空より高くなることが多い。光合成活動が卓越する濃度減少期と呼吸・分解活動が盛んになる濃度増加期との違いにも表れている。

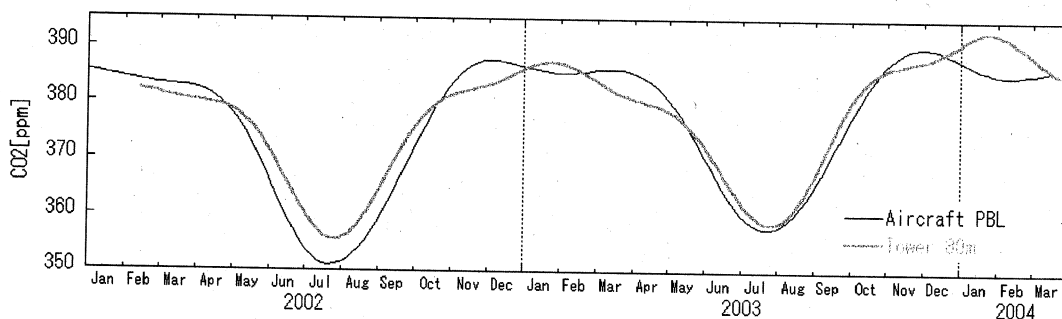


図 29 ベレゾレチカタワーで現地時間の日中に観測された二酸化炭素濃度と大気境界層内で航空機によって観測された濃度のフィッティングカーブの比較。

タワーと航空機の濃度差はフィッティングカーブを比較するとさらに明瞭である(図 29)。冬季はタワー観測の欠測が多いため詳細な比較は出来ないが、夏季には気象条件の比較的悪い日にタワーで観測された高濃度データのために2つのカーブに明らかな差が生じている。このように、日中データを選択しただけのタワー観測値は、一般に航空機観測で得られる上空の二酸化炭素濃度の変動を代表し得ないと言えることができる。

別な言葉で言えば、我々が通常利用している航空機観測の季節変動はすでに「気象条件」というバイアスがかかったデータであることを本研究の結果は表しており、二酸化炭素の輸送を扱うモデルにおいてはこの「気象条件バイアス」を考慮に入れてデータを扱うことが極めて重要であると言えることができる。

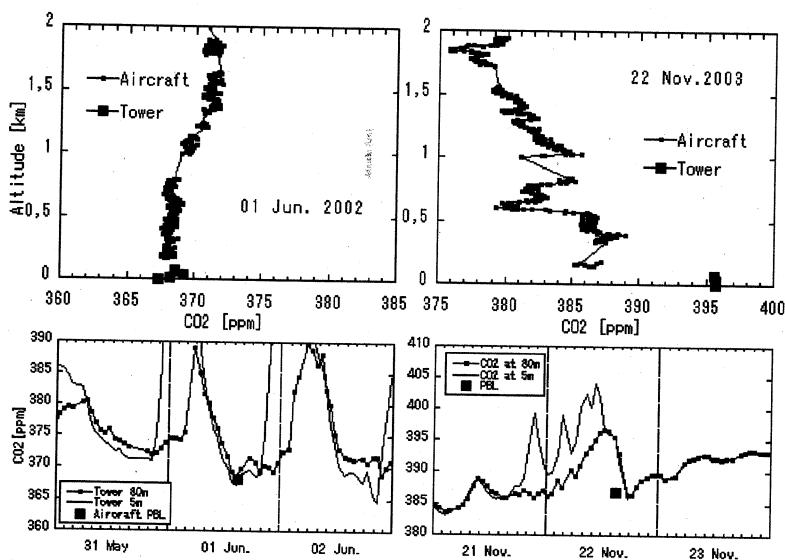


図 30 2002年6月1日と2003年9月12日に航空機とタワーで観測された二酸化炭素濃度の比較

次に気象条件の比較的整った日における鉛直方向の二酸化炭素濃度の比較を行う。図30は2002年6月1日と2003年11月22日の日中に行われた航空機観測とタワーでの連続観測の比較である。2002年6月1日の日中は地表付近から上空0.8kmまで二酸化炭素濃度がほぼ均一になっていることがわかる。図30の時系列を見るとこの日は好天で日中に混合層の発達に伴って二酸化炭素が急激に減少している。このような気象状況のもとではタワーで観測した二酸化炭素濃度はより上空の濃度を代表しうる。

一方、2003年11月22日の鉛直分布は地表付近と0.2kmより上空とで明らかな濃度差がある。図30の時系列から、22日は前夜から晴れて地表付近に逆転層が形成され、高濃度の二酸化炭素が蓄積していたことがわかる。この逆転層は正午を過ぎてようやく解消し始めたが、二酸化炭素濃度が上空0.2kmのレベルにまで低下するのは夜になってからであった。シベリアの冬季のように日中も解消されない逆転層が形成されると、たとえ晴天であってもタワー観測の結果は上空の状態を反映しないことがある。

図31はこれらの事例をまとめて比較するために、タワーの高度80mにおける日中二酸化炭素濃度から航空機観測が実施された日だけを抽出したものと航空機で観測された大気境界層内の平均濃度を同時にプロットした時系列である。両者の時間変動は図28に比べると差が極めて小さくなっていることがわかる。

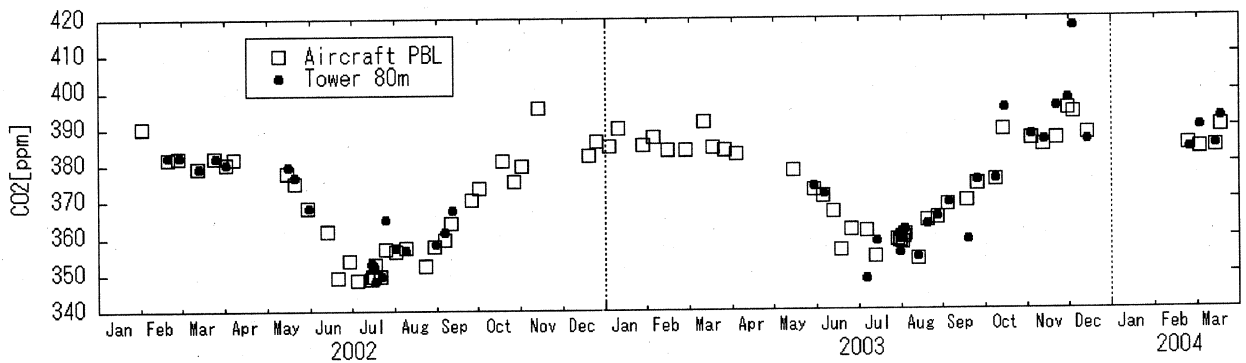


図31 航空機観測が実施された日の日中タワー濃度と航空機観測濃度（PBL）の比較

図31の両者の濃度差を時系列にしたものが図32である。今回比較した45の鉛直プロファイルのうち60%以上のデータが±2ppm以内の差に収まっているが、残りは2003年11月22日の例のように、たとえ晴天であってもタワー観測と航空機観測の結果に大きな濃度差が存在している。

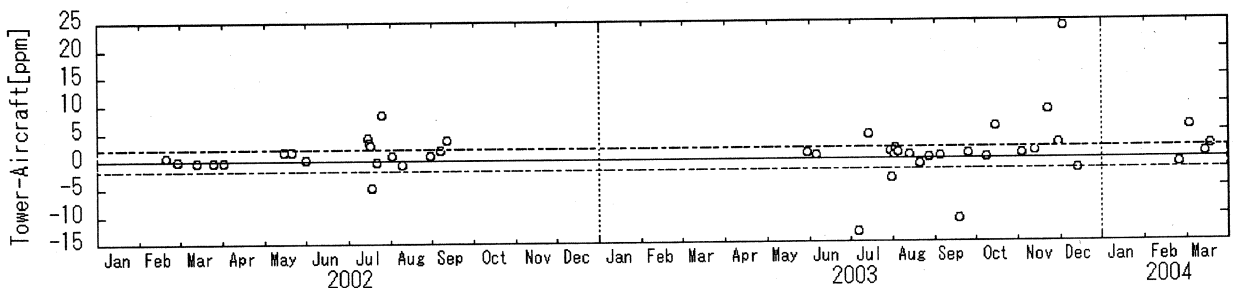


図32 図31における日中タワー濃度と航空機観測濃度（PBL）の差。点線は±2ppmを表す。

冬季において日中タワー濃度と航空機観測濃度との差を作り出す原因は主に接地逆転層の存在である。2003年12月3日には24ppmもの濃度差が観測されたが、この時期は非常に強い寒気が1週間ほどベレゾレチカ周辺に居座り、日中になっても常に逆転層が解消されなかった。冬季の日中に逆転層が存在するとタワー濃度は航空機観測濃度より高くなる。

夏季においてタワー濃度と航空機観測濃度に差が生じる日には、日中のタワーで観測される二酸化炭素濃度が時間と共に大きく変化していることが多い。このような日には時としてタワー濃度が航空機観測濃度より高くなることも低くなることもある。

これらの条件をいくつかの代表的な例についてまとめたものが表1である。

表1 日中タワー濃度と航空機観測濃度の差とその条件。2ppm以上の濃度差にハッチを施した。

	Date	濃度差	Remarks
冬季	2002/2/20	0.58	逆転層なし、日変化ほとんどなし
	2002/2/28	0.25	逆転層なし、日変化ほとんどなし
	2002/3/26	0.29	逆転層なし、日変化ほとんどなし
	2002/4/3	0.64	逆転層なし、日変化ほとんどなし
	2003/11/22	8.85	逆転層
	2003/11/30	2.90	逆転層
	2003/12/4	23.97	逆転層
特殊な事例	2002/9/27	3.52	Tower データ間隔長い
	2003/10/15	6.29	明方極端にCO2高濃度
	2003/7/8	-4.05	昼間に極低濃度
	2003/6/7	1.11	夜に入ってしまう濃度増加傾向
冬季以外	2003/7/15	-0.47	フライト前3時間の変化 1ppmv
	2003/7/31	0.48	フライト前3時間の変化 1ppmv
	2003/8/21	-0.10	フライト前3時間の変化 1ppmv
	2003/8/28	0.08	フライト前3時間の変化 1ppmv
	2002/9/7	2.01	フライト前3時間の変化 1ppmv
	2002/8/3	0.00	フライト前3時間の変化 2ppmv
	2003/9/26	0.92	フライト前3時間の変化 2ppmv
	2003/10/9	-0.49	フライト前3時間の変化 2ppmv
	2003/5/31	1.17	フライト前3時間の変化 2ppmv
	2003/11/13	1.55	フライト前3時間の変化 2ppmv
	2002/6/1	2.11	フライト前3時間の変化 2ppmv 増加傾向
	2003/9/5	-0.44	フライト前3時間の変化 3ppmv
	2002/5/22	2.30	フライト前3時間の変化 4ppmv
	2003/9/19	2.43	フライト前3時間の変化 3ppmv 濃度減少傾向あり?
	2003/11/4	1.65	フライト前3時間の変化 5ppmv
	2002/8/10	-2.52	フライト前3時間の変化 9ppmv
2002/8/31	0.15	フライト前3時間の変化大 12ppmv 気塊の入れ替わり	

表1から、2002年2月から2004年3月までにベレゾレチカにおいて観測された例では、1) 冬季においては日中に逆転層が存在しないこと、2) 冬季以外の季節では、フライト前3時間にタワーで観測された二酸化炭素濃度の時間変化が3ppm以内という条件を満たしてれば、タワーで観測

された日中の最低濃度は航空機で観測された大気境界層内の平均濃度と2ppm以内でおおむね一致していることがわかる。

以上のようにある特定の条件を満たせばタワーで観測された濃度であっても大気境界層の濃度を代表できることが本研究の観測結果によって示された。この事実は比較的安価で2次元に展開しやすく、高頻度でデータを取得することが可能なタワー観測だけでも（航空機観測がなくても）大陸上の代表的な二酸化炭素濃度の変動を観測しうることを証明するものである。

#### (4) モデルとの比較

環境研-地球フロンティアが開発した3次元炭素循環モデル<sup>4)</sup>を利用してモデルでシミュレートされた二酸化炭素濃度の変動をベレゾレチカで観測された結果と比較した。大気の輸送はNCEPの12時間毎の風のデータを、生態系のフラックスにはBiome-BGCモデルのdailyデータを、海洋からのフラックスはTakahashi et al (1999)<sup>5)</sup>のデータを、化石燃料からのフラックスはCDIACの月毎のデータを使用した。

炭素循環モデルは日変動を表現するのに十分な時間・空間分解能を持ち合わせていないので、日中濃度だけを表現した。また、入力データの制限から計算結果は2002年の1年分のみである。

モデルによってシミュレートされたベレゾレチカの高度80mにおける二酸化炭素濃度の変動を実際に観測された日中濃度と比較したものが図33である。タワー観測の結果は欠測が多いため、2002年2月から2004年3月までの全ての観測期間において比較することとした。この際、経年変動を表現するためにモデル計算値には2003年の結果に平均的な大気中二酸化炭素濃度の増加率である1.5ppmを、2004年の結果にはその2倍の3ppmをそれぞれ加えた。従って図33では2003年と2004年の短周期変動は比較することができないが、季節変動については考察が可能である。また、モデルの絶対濃度は観測と同じスケールで比較が出来るよう調整してプロットされている。

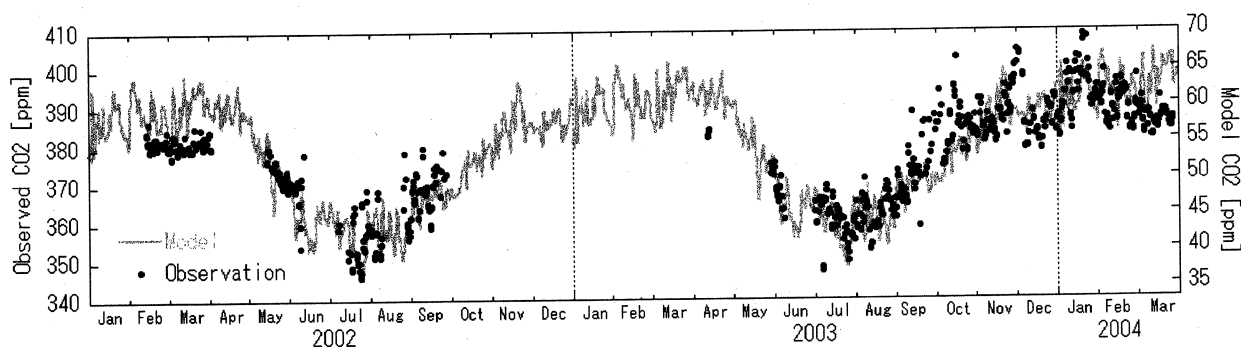


図33 3次元炭素循環モデルによってシミュレートされたベレゾレチカの高度80mにおける二酸化炭素濃度の季節変動の観測結果との比較

モデルの計算結果は二酸化炭素濃度の季節変動の位相を正しく表現できているが、その振幅は実際の観測結果に比べて約半分と過小評価している。季節変動の中で最も違いが大きいのは晩冬の2月から3月にかけての時期で、モデルの濃度はやや高めである。観測された二酸化炭素濃度は既に述べたように11月から翌年1月の大気の安定した時期に最大値を示し、晩冬はやや低くなる。これに対してモデルで表現された季節変動は初冬から晩冬にかけてほぼ横ばいかわずかに上昇している傾向がある。これはむしろ自由対流圏の季節変動の形に近い。すなわち、モデルでは高度

80mの大気境界層内の変動の表現が不完全であり、自由対流圏の影響が少なからず及んでいると考えることが出来る。言い換えれば、モデル中の大気境界層—自由対流圏間の物質交換が実際の大気よりも効率よく行われていることが予想できる。モデルによって計算された季節変動の振幅が実際の観測より小さい原因も自由対流圏との交換にあるかもしれない。

図34はモデルによって計算された総観規模の二酸化炭素濃度の変動を観測結果と比較したものである。濃度変動のスケールは必ずしも一致していないが、変動のパターンはよく表現されている。すなわち、低気圧や高気圧の通過に伴う気塊の入れ替わりや風向の変動といった水平方向の輸送はこのような地域規模でも比較的良く再現できていると言える。

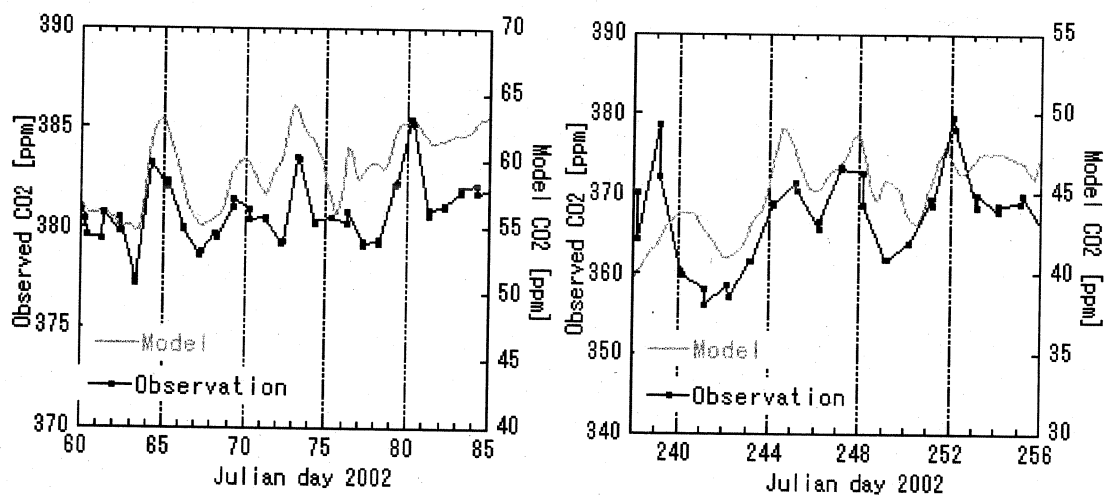


図34 3次元炭素循環モデルによってシミュレートされたベレゾレチカの高度80mにおける二酸化炭素濃度の短周期変動の観測結果との比較

以上のように3次元炭素循環モデルは水平方向の輸送は地域規模でも比較的よく表現することが可能であるが、鉛直方向、特に大気境界層—自由対流圏間の交換については未だ十分に再現できていないことが本研究で得られた観測結果との比較により明らかになった。

#### 5. まとめ（本研究により得られた成果）

平成14年度より本観測に移行したタワーを利用した地上での連続観測と航空機を利用した鉛直分布観測は一部のトラブルによる欠測はあるものの2年の間価値あるデータを提供してきた。これまでに得られた成果をまとめると以下ようになる。

- ・ 本研究で開発したタワー用二酸化炭素観測装置は標準ガスの使用を極めて少なく保ちながら高い精度で観測を行うことができた。
- ・ ベレゾレチカタワーで観測された二酸化炭素濃度の日変動は夏季には振幅が120ppmにも達する。一方で冬季にも平均で2ppmほどの振幅を持った日変動があり、極低温下の冬季シベリアにおいて有意な二酸化炭素の放出があることがわかった。
- ・ ベレゾレチカタワーで観測された二酸化炭素の日中濃度は明瞭な季節変化を示した。高度5m



の季節変動は34ppmであり、東シベリアのヤクーツクタワーでの観測値25ppmより明らかに大きな値であった。

- ・ ベレゾレチカタワーで観測されたラドン濃度は冬季に最高、春先に最低濃度を持つ季節変動を示した。春先の融雪に伴うフラックスの低下以外は主に大気の混合によって濃度が決定されていることがわかった。これら季節変動と日変動からラドン濃度の変動は大気鉛直混合の指標として有用であることが確かめられた。
- ・ 本研究の観測結果から冬の積雪期にも地表面からのラドンフラックスが存在することが明らかになった。ラドン蓄積量から見積もった冬季のラドンフラックスは6-10mBq/m<sup>2</sup>/sであり、夏季にチャンパーで観測されたフラックスと同程度であった。これはこれまで大気輸送モデルに広く使われてきた仮定を否定するものである。
- ・ ベレゾレチカタワーで観測されたオゾン濃度は春に極大、夏に極小を持つ季節変動を示した。タワーにおけるラドン観測は測定装置の応答速度の速さや大気中濃度の変動量の大きさから、短周期での大気混合度の指標として有効な観測項目であることが実証された。
- ・ 本研究で開発した航空機用二酸化炭素観測装置によって非常に安価に鉛直分布を観測することが可能になり、1年に30回以上の高頻度観測飛行に成功した。
- ・ ベレゾレチカ上空の二酸化炭素濃度の季節変動は同じシベリアの森林地帯に比べて明らかに振幅が大きく、ベレゾレチカ周辺の生態系の活動が盛んであることを意味している。
- ・ ベレゾレチカ上空の二酸化炭素濃度の変動を大気境界層内と自由対流圏に区別して導出することに成功し、季節振幅に2倍以上の差が存在していることがわかった。また、年平均濃度は大気境界層内が自由対流圏より2ppm以上高く、rectifier効果が大いことがわかった。このような高頻度航空機観測によって大気境界層内とその直上の自由対流圏における二酸化炭素の季節変動を比較した例はこれまでなく、信頼度の高いデータの新たな取得方法を提唱できた。
- ・ 航空機を使った二酸化炭素鉛直分布の日変動観測を行い、地表面の加熱に伴う境界層の発達だけではなく、高気圧・低気圧に伴う気塊の移動や積雲対流による混合が境界層内の二酸化炭素濃度の変動に重要な役割を果たしていることが明らかになった。
- ・ タワー観測と航空機観測の結果の比較から、航空機観測が気象条件の整った日にものみ実施されることによる「気象条件バイアス」が存在していることが明らかになった。
- ・ ベレゾレチカでは、冬季においては日中に逆転層が存在しないこと、冬季以外の季節では3時間の濃度変動が3ppm以下という条件を満たしていればタワーで観測された日中濃度が航空機観測で得られた境界層濃度と2ppm以内で一致していた。このようにある特定の条件を満たせばタワーで観測された濃度であっても大気境界層の濃度を代表できることが本研究の観測結果によって示された。
- ・ 3次元炭素循環モデルは水平方向の輸送は地域規模でも比較的良好に表現することが可能であるが、鉛直方向、特に大気境界層-自由対流圏間の交換については未だ十分に再現できていないことが本研究で得られた観測結果との比較により明らかになった。

以上のように本研究では2つの装置の開発を行いその有効性を証明すると共に2年の観測結果から多くの現象が明らかになった。そして目標であったタワー観測と航空機観測の比較とタワー観測の空間代表性にまで言及することができた。ただしこれらはあくまで2002年から2003年にお

ける事象にすぎない。今後同じような高い質のデータを積み重ねていくことによってこれらの現象の普遍性を確かめることが極めて重要となる。

## 6. 引用文献

- 1) Iida, T., Y. Ikebe and K. Tojo (1991) An electrostatic radon monitor for measurements of environmental radon. *Res. Lett. Atmos. Electr.* **11**, 55-59.
- 2) Fedoseev, N, S. Maksyutov, T. Machida and G. Inoue (2001) Continuous observation of atmospheric carbon dioxide near Yakutsk, East Siberia in 1993-1998. *Extended Abstract for Sixth International Carbon Dioxide Conference*, 199-200.
- 3) Machida, T., T. Nakazawa, G. Inoue, S. Maksyutov, N. Vinnichenko, M. Panchenko and N. Fedoseev (2000) Variations of Atmospheric CO<sub>2</sub> Concentration over Siberia, in *Proceedings of the eighth symposium on the joint Siberian permafrost studies between Japan and Russia in 1999* (eds. G. Inoue and A. Takenaka), 294-299.
- 4) Maksyutov, S., T. Machida, H. Mukai, P. Patra, T. Nakazawa and G. Inoue (2003) Effect of recent observations on Asian CO<sub>2</sub> flux estimates by transport model inversions, *Tellus*, **55B**, 522-529.
- 5) Takahashi, T. Wanninkhof, R. H., Feely, R. A., Weiss, R. F. Chipmann, D. W. and coauthors. (1999). Net sea-air flux over the global ocean: An improved estimate based on the sea-air pCO<sub>2</sub> difference. In: *Proc. 2nd International Symposium on CO<sub>2</sub> in the Oceans*. (ed. Y. Nojiri). CGERI037-99, CGER/NIES, Tsukuba, Japan, 9-14.

## [研究成果の発表状況]

### (1) 誌上発表 (学術誌・書籍)

なし

### (2) 口頭発表

- ① 町田敏暢、O. Krasnov、渡井智則、森泉純、下山宏、山本昌則、井上元：第13回大気化学シンポジウム(2003)「タワーと航空機を利用した大気境界層とその上部での二酸化炭素濃度の高頻度観測」
- ② 渡井智則、町田敏暢、O. Krasnov、山本昌則、井上元：2003年度日本気象学会春季大会(2003)「西シベリア・ベレズレチカにおける大気境界層内とその上空のCO<sub>2</sub>濃度観測(1) - 大気境界層内CO<sub>2</sub>濃度変動のタワー観測 -」
- ③ 森泉純、青島弘幸、大倉毅史、O. A. Krasnov、渡井智則、山本昌則、町田敏暢、井上元：2003年度日本気象学会春季大会(2003)「西シベリア・ベレズレチカにおける大気境界層内とその上空のCO<sub>2</sub>濃度観測(2) - 大気中ラドン222濃度変動のタワー観測 -」
- ④ 町田敏暢、O. Krasnov、渡井智則、下山宏、井上元：2003年度日本気象学会春季大会(2003)「西シベリア・ベレズレチカにおける大気境界層内とその上空のCO<sub>2</sub>濃度観測(3) - 航空

機を利用したCO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布観測—」

- ⑤ 下山 宏、町田敏暢、O. Krasnov、渡井智則、井上 元：2003年度日本気象学会春季大会(2003)「西シベリア・ベレゾレチカにおける大気境界層内とその上空のCO<sub>2</sub>濃度観測(4) —夏季集中観測におけるCO<sub>2</sub>濃度鉛直分布日変化—」
- ⑥ 町田敏暢、O. Krasnov、渡井智則、下山 宏、井上 元：第9回大気化学討論会(2003)「タワーと航空機を利用した大気境界層とその上部での二酸化炭素濃度の高頻度観測」
- ⑦ 渡井智則、町田敏暢、O. Krasnov、山本昌則、井上 元：第9回大気化学討論会(2003)「西シベリア・ベレゾレチカにおける大気境界層内とその上空のCO<sub>2</sub>濃度観測—大気境界層内CO<sub>2</sub>濃度変動のタワー観測—」
- ⑧ T. Machida, O. Krasnov, T. Watai, K. Shimoyama and G. Inoue: AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2003, "Measurements of CO<sub>2</sub> Mixing Ratio in and above PBL over the Forest Area in Western Siberia"
- ⑨ T. Watai, T. Machida, K. Shimoyama, O. Krasnov, M. Yamamoto and G. Inoue: AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2003, "Measurement of Atmospheric Carbon Dioxide on Tower in Berezorechka, West Siberian Forest Region"
- ⑩ K. Shimoyama, T. Machida, T. Watai, O. Krasnov, G. Inoue and J. Zeng: AGU Fall Meeting, San Francisco, USA, 2003, "Diurnal variation in CO<sub>2</sub> profile in the lower troposphere above a west Siberian forest."
- ⑪ 町田敏暢、O. Krasnov、渡井智則、下山 宏、井上 元：2004年度日本気象学会春季大会(2004)、「西シベリア・ベレゾレチカにおける大気境界層内とその上空のCO<sub>2</sub>濃度—航空機観測とタワー観測の比較(1)—」(アブストラクト提出済み)
- ⑫ T. Machida, O. Krasnov, T. Watai, K. Shimoyama J. Moriizumi and G. Inoue: NOAA/CMDL Annual Meeting, Boulder, USA, 2004, "Measurements of CO<sub>2</sub> mixing ratio in and above PBL over the forest area in Siberia" (アブストラクト提出済み)

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし

(6) その他成果の普及、政策的な寄与・貢献について

本研究で開発し技術的及び科学的信頼性が確かめられたタワーを利用した二酸化炭素濃度観測手法は地球環境研究総合推進費の戦略研究プロジェクト「21世紀の炭素管理に向けたアジア陸域生態系の統合的炭素収支研究」によって西シベリアの約10カ所に展開されることになった。