

課題名	西部太平洋域の微量温室効果ガス分布と発生源に関する研究		
担当研究機関	独立行政法人国立環境研究所		
研究期間	平成16-18年度	合計予算額 (当初予算額 ベース)	57,704千円 (うち18年度 18,488千円)
研究体制	西部太平洋域の微量温室効果ガス分布と発生源に関する研究 (独立行政法人国立環境研究所)		
研究概要	<p>1. 序 (研究背景等)</p> <p>二酸化炭素以外の微量温室効果ガス (メタン・亜酸化窒素・対流圏オゾン・代替フロン等) は、いずれも大気中の濃度自体は二酸化炭素に比べて微量であるものの、単位体積あたりの温室効果の大きさは、二酸化炭素に比べてはるかに大きい (すなわち強力な温室効果を有する)。そのため、これら微量温室効果ガス全体をあわせた温室効果は、二酸化炭素単独の温室効果の約半分にも相当し、温暖化の主要な原因物質となっている。また、これら微量温室効果ガスの発生源の推移をみると今後のアジア地域からの発生量増加が懸念されるが、そのインベントリの整備・構築は二酸化炭素と比べて大きく遅れている。このためアジア地域を中心として、これら微量温室効果ガスの発生源の特定と発生量の推計手法に資する科学的かつ簡便な技術を早期に確立することが重要である。</p> <p>そこで、本研究では二酸化炭素以外の微量温室効果ガスの発生源をその消滅過程を含めて検証するための新たな観測手法を確立する目的で、西部太平洋域を定期航行する商船に、自動・手動観測による連続観測システムを設置する技術開発及び連続観測を行う。また、観測データの解析により、主にアジア地域から排出される微量温室効果ガスの発生源推定及び発生量推計等の解析を行い、インベントリによる総排出量推定を補完し、互いの精度を検証可能とするような新たな手法の提案を目指す。</p> <p>本研究により、アジア地域からの微量温室効果ガスの発生量を科学的かつ低コストで把握する手法が開発された場合、アジア地域の微量温室効果ガスに関するインベントリの精度を検証し監視する代替手法が提案できることとなり、国際的な温室効果ガスの監視体制の構築への貢献が期待される。また、本研究は、温暖化の主要な原因物質となっている微量温室効果ガスの観測技術・体制の確立を図るものであり、2004年2月に国際合意された「地球観測の10年実施計画」に対応する研究である。</p> <p>2. 研究目的</p> <p>(1) 洋上大気メタン・亜酸化窒素の緯度分布とアジア発生源の影響</p> <p>メタン・亜酸化窒素の西部太平洋域における大気濃度の分布および濃度の経年増加傾向の把握を行う。東アジア地域の人為的影響 (農業・森林火災など) が大気濃度変動に与える影響を評価するために、地上観測点を多数配置するのと同じような効果のある西部太平洋を南北に定期航行する商船で観測を行い、他の研究において観測されている国立環境研究所・米国大気海洋局定点観測と比較を行う。</p> <p>(2) 洋上大気オゾン・一酸化炭素の緯度分布と濃度決定要因</p> <p>洋上大気中のオゾン濃度と一酸化炭素を、西部太平洋を南北に定期航行する商船で連続観測する。対流圏オゾンは温室効果気体のひとつであるが、広い範囲をカバーするような系統的なデータの取得は困難であるため、これまで洋上大気オゾンの濃度観測は乏しく、季節変化等の動態解明は極めて不十分な状況にある。また、一酸化炭素は燃焼起源の良い指標 (トレーサー) として気塊 (エアマス) のキャラクタリゼーションに用いられるが、その放出源には、メタンや非メタン炭化水素の酸化等の自然起源の他、化石燃料の燃焼、焼畑や森林火災等のバイオマス燃焼によるもの、そして薪等の生物燃料の燃焼によるものが含まれるが、排出統計や放出比等を用いたいわゆるボトムアップ型エミッションインベントリにはまだ50%もの不確実性があるといわれており、大気中濃度の測定データが無い洋上など空白域のデータが望まれている。本研究における洋上での連続測定で、オゾンの温室効果影響や一酸化炭素のインベントリの精度向上に資することを目的とする。</p> <p>(3) 洋上大気HFC, PFC, SF₆の緯度分布と南北半球濃度差の要因</p> <p>京都議定書で新たな温暖化ガスとされた代替フロン類であるHFC (水素化フッ化炭素)、PFC (フッ化炭素)、SF₆ (六フッ化硫黄) の大気中濃度の緯度分布と濃度の経年増加傾向把握を行い、人為的放出量の推定、発生源インベントリの合理性の検証を行う。これら反応性に乏しい微量温室効果ガスの場合、両半球にわたる南北濃度差からは、南北半球間大気交換の情報が得られ、二酸化炭素などの温室効果ガスの発生・消滅過程をモデル化する研究にも寄与する。</p> <p>なお、観測結果の解析にあたっては、他の研究にて既に得られている各種の観測結果 (陸上、航空機観測結果) を有効に活用し、解析の精度を高めるものとする。</p>		

3. 研究の内容・成果

(1) 洋上大気メタン・亜酸化窒素の緯度分布とアジア発生源の影響

西部太平洋上でのメタン(CH₄)、亜酸化窒素(N₂O)の緯度分布を調べるために、定期貨物船を利用して、北緯55度近辺から南緯30度付近までの大気の本物サンプリングを行った。これにより、緯度分布と時系列変化を求めた。CH₄は2000年まで大気濃度増加が続いてきたが、ここ数年来、増加が止まる傾向にある。依然として南北の濃度差は大きく、北半球高緯度での濃度の高まりが見られる。これは、陸域における湿地などの発生源が高緯度に多く、また、水田、家畜、石炭や天然ガス採掘などの発生源が北半球に偏在していることが関係している。このような緯度分布は、ここ10年でまだそれほど変化していないように見えるが、CH₄の滞留時間を考えると、発生量の変化に合わせて濃度分布の大きさも徐々に変化すると考えられるので、今後の観測は重要である。

本観測では、2001年からのトレンドとして南緯5度以南で減少傾向が見られた。また赤道域から北緯35度までは2004年までは緩やかな増加がみられたが、その後減少に転じている。2002年-2003年の北半球低緯度と高緯度の増加は、この時期のCO₂の増加速度の増加と同期しており、北半球の陸域の温度上昇などが引き金になって、高緯度のメタンの発生量が応答している可能性が高い。CO₂の上昇パターンは、赤道を越えて南半球まで応答するのに比べ、メタンの応答は南半球側では小さく、この時期減少傾向がつづいている。これは、発生源との関係が濃度変動にわずかに影響しているものと考えられる。

このように、CH₄発生量の全体としての大きな増加はなくなってきたことが、グローバルに見てよくわかる状況になってきた。細かな濃度変動を解析することで、増加の変化パターンが陸域の低緯度や高緯度に現れていることがわかってきたことから、アジアなどを含む陸域の気温上昇パターンもしくは森林火災の規模などもCH₄発生量の地域的な変化を作り出す要因であることが推定される。

これまでに観測されたCH₄の季節変化パターンを抽出して、2005年の代表的な濃度として表して図1を作成した。CH₄の濃度の季節変化をみると、南緯10度を境として、南緯10-赤道と南緯20-10度帯は季節変動が鏡像になっており、6月から9月までこの両緯度帯はほとんど同じ濃度になることがわかる。夏季は北半球のOHによる分解が進むため6月後半を最低値とする季節変化が見られる。しかも、その振幅の大きさは25-35度帯で大きい。35度帯は、日本近辺であり、夏の季節風により一瞬25度帯の値に近い値となっていることが観測される。CH₄の発生量は通常夏季に高いので、この季節変化にその部分が含まれているはずであるが、消滅量の寄与の方が大きく、季節变化的には夏季に最小をもつことになっている。赤道域では、OHラジカルの発生と関係する太陽光の強さはむしろ3月、9月に強いはずであるが、そのような季節変動は見られておらず、移流の影響が大きいと考えられる。

N₂O濃度は最近も依然として増加の傾向を示している。平均の増加速度は0.7ppb/年であった。平均的に北半球で濃度が高いが、赤道以南で濃度が下がる傾向がある。1997年と2000年、2003-2004年に増加率の高い緯度帯が見られた。これらは、CO₂と異な

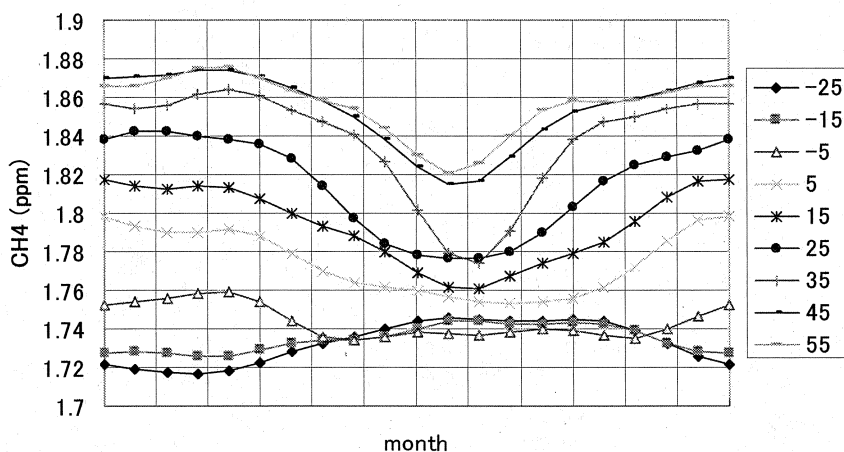


図1 西部太平洋の定期貨物船で観測した大気中 CH₄ 濃度の季節変化 (2005年の代表値に換算)

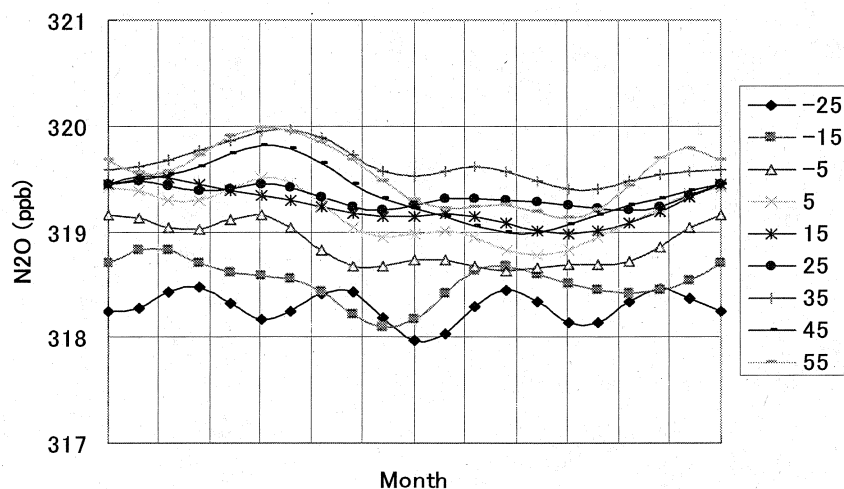


図2 西部太平洋の定期貨物船で観測した大気中 N₂O 濃度の季節変化 (2005年の代表値に換算)

るパターンであり、CO₂の増加がみられた直後か、直前かのどちらかに対応している。例えば2002-2003年に多くの緯度帯でCO₂の増加が大きいことが観測されているが、N₂Oの場合は、その直後の2003年-2004年に増加のピークが見られる。ここでの観測では、赤道から南緯10度のあたりにそのピークがあるように見える。一方、2000年はCO₂濃度増加が通常どおりかそれ以下であったが、N₂Oには、北半球高緯度帯に濃度増加が大きいところが見られる。このような変動は自然起源のN₂Oの発生量が、気象の変動に応じて応答しているように見える。しかし、特に発生量が大きいとされる海洋からの放出量は、エルニーニョやラニーニャ現象によって変化すると考えられるが、ここでは、1998年の大きなエルニーニョのあとの大きなラニーニャ時の増加がそれほどでないことが観測された。一方、2003-2004年の増加は全部の緯度帯にわたっており、その変化規模が大きいことがうかがわれる。

いろいろな消失過程を合わせてN₂Oの実質の滞留時間は100年程度と考えられていることから、ここでの観測結果から自然と人為起源をあわせて年間17Tg-N程度の発生源があると考えられる。ここで観測される増加率が0.4ppbから1.1ppbまでの±40%程度の大きな変動として見える場合でも、発生/吸収量の変化としては年間2-5Tg-Nとなり、変化率は10-30%と計算される。もし人為起源のN₂Oの発生が全体の20%程度しかないとする、その変動が50%の大きさぐらにならない限り、観測されるような変化を起こすのは不可能である。したがって、このような観測で見られる大きな変動パターンは、大気の大循環過程の変化による影響や、気象により自然起源N₂O発生量の変化が起こっていることに起因していると考えられる。しかし、このようなN₂Oの変動パターンが、どのような機構によってもたらされるのかを推定することは、大気の観測からではまだ難しく、今後詳しいモデル解析などの手法を用いる必要があると考えられた。

(2) 洋上大気オゾン・一酸化炭素の緯度分布と濃度決定要因

本研究では、紫外吸収法によるオゾン(O₃)測定に加えて、非分散赤外線式ガス相関法の原理に基づく一酸化炭素(CO)連続測定装置を導入した。大気中CO₂濃度の洋上連続計測は世界で例のない観測である。2005年11月に船舶(Transfuture 5)の測定室に設置し、以降、日本-オーストラリア-ニュージーランド間の航海において無人下で連続運転を行うことに成功した。南北両半球にわたる幅広い緯度帯における連続データが得られ、南北両半球間の濃度勾配やITCZ(Inter Tropical Convergence Zone)のポジション等、COの基本的な時空間変動が明らかになるとともに、発生源強度との関係性や燃焼起源のトレーサーとしての有用性が確かめられた。

北半球ではオゾンとCOに同様の濃度変化傾向が見られるのに対して、南半球では、O₃とCOの濃度変動の傾向は必ずしも一致しない。すなわち、北半球では、COの濃度増加に伴ってO₃濃度も全体的に増加しているし、変動の微細構造もよく対応しているが、南半球ではCO濃度はほぼ一定であるけれどもO₃濃度が増加している傾向がしばしば観測された。北半球において、O₃とCOが非常に良い正相関を示していることは、定性的には、人為起源のような燃焼起源の前駆物質からO₃が生成していることを示唆する結果である。一方、南半球で観測されたO₃の濃度増大は、このような燃焼起源の影響ではない、他の起源によるものであるということを示唆している。

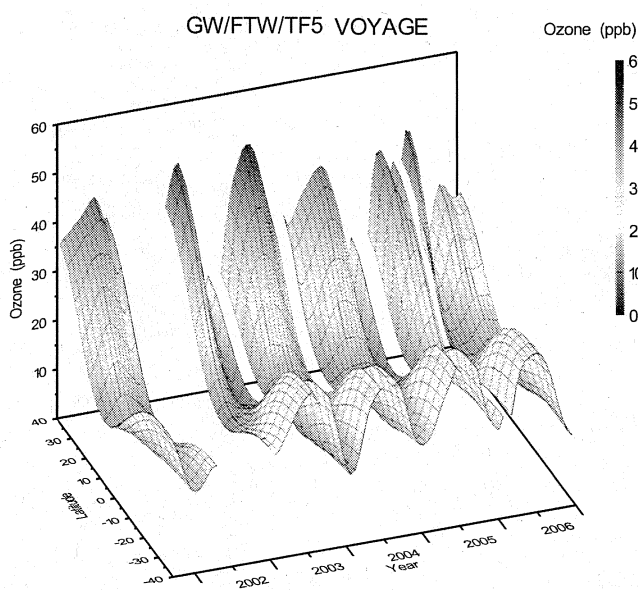


図3 2002年から2006年にかけて西部太平洋上で得られたO₃の南北勾配と経年変化

図3に、2004年から2006年にかけて、本研究で得られたO₃のデータを、これまでに得られているデータとあわせて、2002年以降についてプロットした西部太平洋上におけるO₃の南北勾配と経年変化の様子として示す。5年間にわたって、北半球ではO₃の極大値が35-50 ppbv程度であることが分かる。一方、南半球では、フェーズが逆となり、秋季から冬季にかけて20-30 ppbvの極大値をとることが分かった。より興味深いのは、極大値が年によって異なることである。それは、おそらく、気候の変化(輸送経路や強度の年々による違い)や森林火災などのO₃前駆物質の放出強度・位置の変化と対応しているものと推測され、年々の変動とその支配要因を明らかにするためにも今後、西部太平洋上における本モニタリングを継続するとともに、東南アジア地域におけるこれら反応性気体とその前駆物質ならびにトレーサーの、空間的・時間的に密なモニタリングが重要である。

(3) 洋上大気HFC, PFC, SF₆の緯度分布と南北半球濃度差の要因

大気中ハロカーボン類のうち、PFC類、HFC類、SF₆は温室効果気体として京都議定書によって規制されている。その他のハロカーボンの中にもCFC類やHCFC類のように強力な温室効果ガスが含まれている。これまで観測を継続してきた比較的沸点の高いハロカーボン類に加えて、これら新たな規制対象となったHFC-134a等の低中沸点ハロカーボンについて、計測手法の改良を行い船上サンプリング空気について、信頼できる観測値が得られるようになった。

HCFC-22、HCFC-142b、HCFC-141b、HFC-152a、HFC-134aの大気濃度観測では、2006年度中に新たな8航海分のデータセットが加わり、大気濃度の時系列変化とその西部太平洋上大気における緯度分布が明らかになった。各成分の濃度の下限値(最南のサンプル)はCape Grimの観測値とほぼ一致し、上限値は波照間における観測値の近傍にある。図4に、一例として、HFC-152aの船舶による観測結果と地上ステーションの観測結果を合わせて示した。HFC-152aは、北半球濃度が大きな季節変動を示しながら増加している。緯度変動の幅は夏季には小さく、冬季に大きくなり、その変動幅も時系列的に増大している。HFC-152aは他の代替フロン類に比べて大気中におけるOHラジカルとの反応性が高いため、大気寿命が約1.4年と短い。このように短寿命であることと、北半球で急速に使用が広まっていることが、南北両半球における大きな濃度差の要因になっていると考えられる。冬季(11~3月)のデータに限った2003年度~2005年度の間濃度は3.0 pptv, 3.6 pptv, 4.51 pptv, 4.5 pptvであり、23年間に約50%の増加を示した。

また、2006年2月以降は、PFC-116, PFC-218, PFC-318, HFC-23, HFC-32, SF₆など極低沸点ハロカーボンの測定も可能になり、計8回分のデータを得た。SF₆は北半球で南半球よりもやや高濃度であり、期間中のSF₆平均濃度として5.9pptを得た。HFC-23の緯度別平均濃度(30°N~30°Sで10°毎)は、南から19.6, 19.6, 19.8, 20.2, 20.7, 21.1, 21.9pptと、南北差が顕著であった。一方、PFC類の全平均濃度は、PFC-116: 3.5ppt、PFC-216: 0.5ppt、PFC-318: 1.2pptであり、いずれも測定精度を上回る有意な南北差を示さなかった。

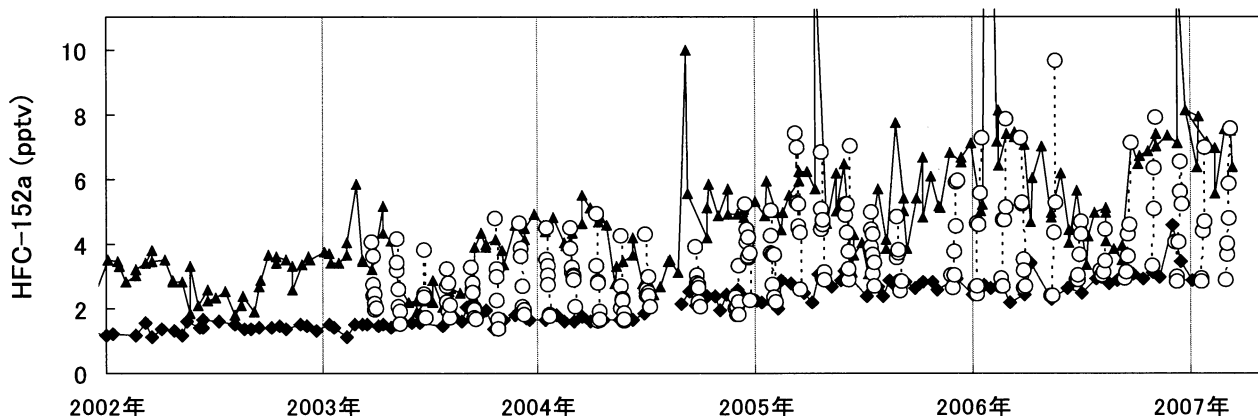


図4 西部太平洋定期航路船による大気サンプリング、タスマニアの大気観測局(ケープグリム)、ならびに、沖縄の大気観測局(波照間)で観測した大気中HFC-152a濃度、○:西部太平洋上、◆:ケープ・グリム、▲:波照間島

4. 考察

(1) 洋上大気メタン・亜酸化窒素の緯度分布とアジア発生源の影響

西部太平洋上で緯度方向別に採取したCH₄濃度やN₂Oの緯度毎のトレンドをここ数年間求めてきた。メタン濃度は、数年間の内に各緯度で増加速度が弱まり、2000年以降の横ばい状態から、2003年以降は減少傾向が、南半球側で強く見られるようになってきた。中緯度付近は濃度変動が大きく2003年の二酸化炭素濃度の濃度増加が報告されているのと同時期に濃度増加の傾向が見られた。これは、温度上昇や森林火災などによるCH₄の放出量の変化がアジア、シベリア域を含む中緯度や高緯度に起こっていることと関連している動きであると考えられた。CH₄の放出量の地球規模的な総量の変化としては近年あまり大きくないことが想像されるが、それでも地域的な変動要因はまだ存在しており、長期的な濃度のトレンドを考えるためには更なる調査が必要と考えられる。

N₂Oの時系列の増加トレンドは観測期間中平均0.7ppb程度であり、増加傾向が続いていることが確認された。緯度分布は発生源消滅源との関係により決まっているが、熱帯に発生源があるような濃度の高まりがある。緯度別の濃度変動はかなり小さいものの、1997年や2004年に大きな濃度変化が見つかった。これはラニーニャ現象と関連しているようなタイミングではあったが、その規模から大きなN₂Oの発生が赤道域の太平洋からのみ放出されているとは考えにくい。熱帯の土壌からの寄与も考えられる。同時に季節変動の解析からは、成層圏との混合による変動も予想され、グローバルな大気

輸送現象がこのような大きな変動と関連している可能性もあると思われる。N₂Oの大気中の濃度変化は非常に小さく、発生量に関しては自然起源、人為起源とも未だ十分解析されているとはいいがたい。大気濃度のトレンドや変動の理解には、今後特に自然起源発生量変動を詳しく調査する必要がある。

(2) 洋上大気オゾン・一酸化炭素の緯度分布と濃度決定要因

O₃については、季節によって明瞭に異なる南北分布が見られることが分かった。一例としては、北半球中緯度において春季に極大となる様子が観測された。北半球の春季には、地表O₃濃度が極大となる現象が古くから知られており、その要因については未だ議論がなされているところであるが、清浄な洋上大気中においても同様の傾向が観測されたことは非常に興味深い。春季の緯度勾配については、北半球中緯度から熱帯域に移るにつれ濃度が減少したが、南半球においては亜熱帯から中緯度に移るにつれて濃度が再び緩やかに増大した。

北半球においては、このようなO₃の変動はCOの変動と非常に良い正の相関を示しており、定性的には人間活動やバイオマスバーニングなど燃焼起源の前駆物質からオゾンが生成していることを示唆する結果が得られた。一方、南半球ではO₃の変動とCOの変動が相関しない場合も観測され、O₃の変動を支配する要因が燃焼起源ではなく、他の起源によるものであることが示唆された。これには、例えば成層圏からの沈降などの自然起源が考えられる。このように、O₃に加えてCOの同時測定を行うことで、O₃の起源を分けて議論できる可能性が示唆された。

また、2006年秋季の東南アジアにおけるバイオマスバーニングによるCO濃度の増大については、O₃濃度はそれほど増大しておらず、1997年に同様に起こったバイオマスバーニングとは光化学的活性度など、O₃生成をコントロールする諸要因が異なることが推察される。この原因としては、熱帯の海洋境界層内ではO₃の寿命が中高緯度に比べて短く、生成したO₃が保持されていないことが考えられるが、詳細は他のトレーサーとの比較やモデルによる検討が必要である。得られたデータをNASAのEOS/Terra人工衛星に搭載されているMOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) によって捉えられた2006年10月の850hPa高度レベルにおけるCO濃度の分布と比較したところ、船舶観測から得られた濃度は衛星センサーによる値よりも若干低い値を示した。これは、船舶観測が1000 hPaレベル、衛星観測が850hPaと、高度が異なることを反映している可能性が考えられた。衛星観測よりも高精度な船舶観測のデータを、衛星データの検証等に役立てられる可能性が示唆された。

(3) 洋上大気 HFC, PFC, SF₆ の緯度分布と南北半球濃度差の要因

観測された多くのハロカーボン類は北半球で高濃度となる緯度分布と経年増加傾向を示した。経年増加が顕著なものほど、南北差が大きくなる傾向が見られた。また、HFC-152aのように大気寿命が短く(約1.4年)、排出量が増えている成分については、南北差が拡大していることが分かった。これは、北半球から南半球への輸送が起こりにくいと考えられる。2006年2月から測定が可能になった極低沸点ハロカーボンのうち、エアコン冷媒として最近使用が広まっているHCFC-32は1年間に20%以上の増加と顕著な南北の濃度差を示した。一方、PFC類は南北濃度差もあまりなく、通年の変化も見出せなかった。このように、ハロカーボン類(特に長寿命のもの)の緯度分布は、排出量の変化を反映していると考えられる。新規化合物も含めて、ハロカーボン類の濃度分布を今後も注意深く観測していく必要がある。