

## アジア・オセアニア域における微量温室効果ガスの多成分長期観測

## 独立行政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	上級主席研究員	野尻幸宏
地球環境研究センター	炭素循環研究室	向井人史
環境計測研究センター	動態化学研究室	横内陽子
地球環境研究センター	主席研究員	遠嶋康徳
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	寺尾有希夫
地球環境研究センター	炭素循環研究室	梶田陽子

平成19～23年度合計予算額 124,912千円（全課題分）  
（うち、平成23年度当初予算額 24,726千円（全課題分））

〔要旨〕地球温暖化原因物質として重要な二酸化炭素以外の長寿命温室効果ガスについて、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長寿命気体成分と比較して進んでいない状況にある。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のうち対流圏オゾンとブラックカーボンおよび一酸化炭素について、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・変化を明らかにすることを目的にしている。観測の空白域であるアジア・オセアニア域の系統的なデータは近年急増している東アジアからの排出量の逆推定に貢献することが期待される。

5年間にわたるモニタリング観測では、日本－オセアニア航路・日本－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継続するとともに、キャビティリングダウン式分光計によるメタンの連続観測ならびに、反射型光散乱検出方式によるブラックカーボンの連続観測を行った。両航路で得られた観測データの比較から、東南アジア域ではメタンや亜酸化窒素の濃度が特に高いことが確認された。代替フロン類についても、東南アジアが大きな発生源となっていることが明らかになった。対流圏オゾンについては、東南アジアの熱帯域で活発な光化学生成が起こっていることが明らかにされた。新規な計測手法や測定の高高度化に関しては、連続測定とボトル分析の併用により一酸化炭素の長期トレンドを導出可能なシステムを確立できた。メタンの分光式連続計測では、高湿度条件下における水蒸気干渉の存在が分かり、室内実験やボトル分析との比較により干渉を除去する手段を見出した。ブラックカーボンについては、検出形式を変更することで海塩粒子による干渉を改善した。今後、多成分連続観測の継続により、熱帯域特有の発生源情報が得られることが期待できる。

〔キーワード〕 東南アジア、一酸化炭素、ブラックカーボン、メタン、亜酸化窒素

## 1. はじめに

産業革命以降人間活動の拡大によって大気中の温室効果ガス類の濃度が増加し、地球温暖化の現象は既に現れ始め、さまざまな分野への影響の大きさから、気候変動は21世紀最大の地球環境問題と考えられるようになってきた。二酸化炭素と比較すると、その他の微量温室効果ガスの収支や気候影響メカニズムの定量的な解明は未だ進んでいない。IPCC第三次報告書によると、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、 $1.52 \text{ W/m}^2$  にもなる。二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) の放射強制力 ( $1.46 \text{ W/m}^2$ ) に匹敵する大きさとなり、これら非 $\text{CO}_2$  ガス・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、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）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) が香港ー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・間接温室効果気体、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物質・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）を用いて放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定期貨物船を用いて洋上大気中の微量温室効果気体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、メタン、亜酸化窒素、人工のハロゲンを含む炭化水素類を対象として、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いる他の太平洋域の貨物船観測と合わせて、北緯53度から南緯40度におよぶ広域の観測が可能であるので、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影響を把握する。また、温室効果ガスである対流圏オゾンなどの光化学反応に関係する大気化学的寄与が考えられるその他の炭化水素類についても、対象物質と合わせて化学分析されるものを研究対象とする。

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気体と異なり、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されている。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、東南アジア航路の貨物船 FUJITRANS WORLD 号（㈱鹿児島船舶所属）を利用した大気観測を2007年9月より開始している。FUJITRANS WORLD 号は、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（タイーフィリピン間）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、一例としてアジア航路における設備について簡単に述べる。

#### (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ている。二酸化炭素とオゾン連続計、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などが利用している。また、船の操舵室上のコンパステ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。

FUJITRANS WORLD 号の観測開始によって、これまで継続実施してきた日本ー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。当

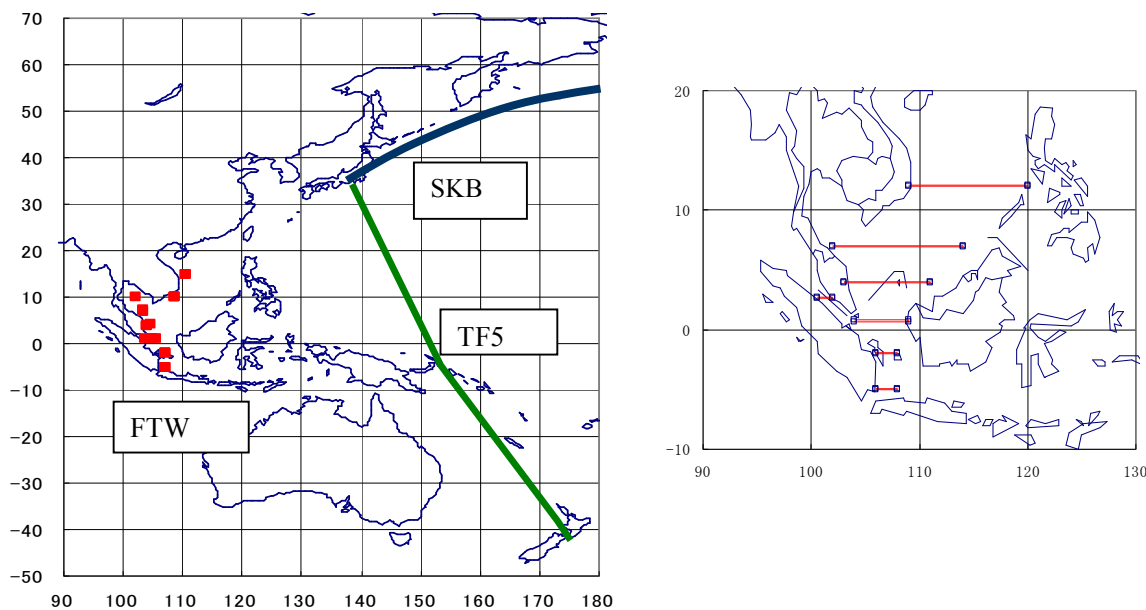


図2 東南アジア航路（左図 FTW）でのボトルサンプリング位置（右図）

面、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 ( $\text{SF}_6$ ) 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2 に東南アジア航路のサンプリング地点を示した。図3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) などにより分析される。

また、炭化水素類の分析のためのサンプリングも 2007 年 9 月の航海から開始しており、本年度も継続した。2008 年 7 月までのサンプリングには、真空排気したステンレス容器 (Silico Can、6 L) を用い、船員に依頼して操舵室の脇の甲板上に風を受けて立ち、容器の口を開け風上から来る大気を採取するグラブサンプリング方式により毎航海 10 サンプルを採取した。同年 8 月以降は、日本-オセアニア航路と同様に加圧サンプリングとして、採取地点を北緯 14.8 度と北緯 9.8 度～南緯 5.2 度間における 3 度毎の 7 か所に設定した。一方、2005 年から継続している日本-オセアニア航路の定期貨物船 TRANSFUTURE 5 号の炭化水素類のための大気サンプリングでは、GPS 測位装置と連動して緯度毎に自動採取する加圧大気サンプリングシステムを用いており、北緯 30 度と南緯 30 度の間で 10 度毎において 3L のステンレス製キャニスターに (ECB) に加圧で



図3 東南アジア航路での大気採取装置

大気を採取し、1航海当たり7サンプルを得た。実験室に持ち帰ったサンプルは、大気濃縮-ガスクロマトグラフ/質量分析計 (GC/MS) によって、ハイドロクロロフルオロカーボン(HCFC)類、ハイドロフルオロカーボン (HFC) 類、六フッ化硫黄 ( $\text{SF}_6$ ) など約 20 種類のハロカーボン類が測定された。測定対象化合物は、HCFC 類(HCFC-22、HCFC-142 b、HCFC-141 b)、HFC 類(HFC-23、HFC-32、HFC-134a、HFC-152a)、 $\text{SF}_6$ 、PFC 類 (PFC-116、PFC-218、PFC-318)、塩化メチル、臭化メチル、ヨウ化メチル、テトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、クロロホルム、ジメチルスルフィド(DMS)、イソプレン、n-ペンタン、ベンゼンとした。これらのガス類については、両航路の貨物船による結果を比較することができる。

### (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、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4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れる。図5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



図4 連続測定器の大気採取口と屋外配管

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・製作する必要がある。以下に詳細を述べる。

#### ① 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持ちられ、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



図5 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）

100 ppbv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  $\mu\text{m}$ 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、CO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>O 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 ppmv 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。

## ③キャビティリングダウン式分光計によるメタン連続測定器

航空機や船舶に計測機器を搭載してメタンを連続計測した報告例は今までに多数ある。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、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、





図 6 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）

定期的な観測が行われないことから時間的・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6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 $\alpha$ 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。図7にキャビティリングダウン式分光計を含めたメタン計測システムの概略を示す。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

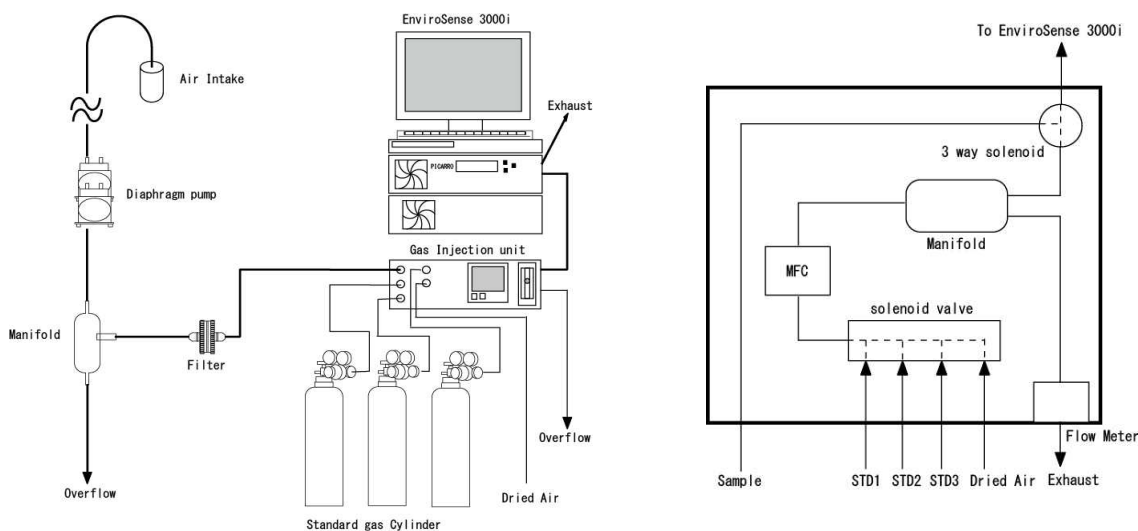


図7 左：メタンの連続計測システム概略図。右：ガスインジェクションユニットの詳細。

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。

本研究では3種の濃度の異なるCO<sub>2</sub>とCH<sub>4</sub>を含むエアベースの10Lサイズのシリンダー(STD1、STD2、STD3)を用いており、それぞれの標準ガスのCO<sub>2</sub>とCH<sub>4</sub>の濃度は船舶に搭載する直前に国立環境研究所で管理している標準ガスに対して濃度が検定されている。STD1、STD2、STD3のCO<sub>2</sub>とCH<sub>4</sub>の濃度はそれぞれ、CO<sub>2</sub>: 365.76 ppmv, 379.72 ppmv, 409.37 ppmv; CH<sub>4</sub>: 1742.59 ppbv, 1882.60 ppbv, 2103.03 ppbvである。

#### 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<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>、およびブラックカーボン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<sub>2.5</sub>とPM<sub>10</sub>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ボン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。

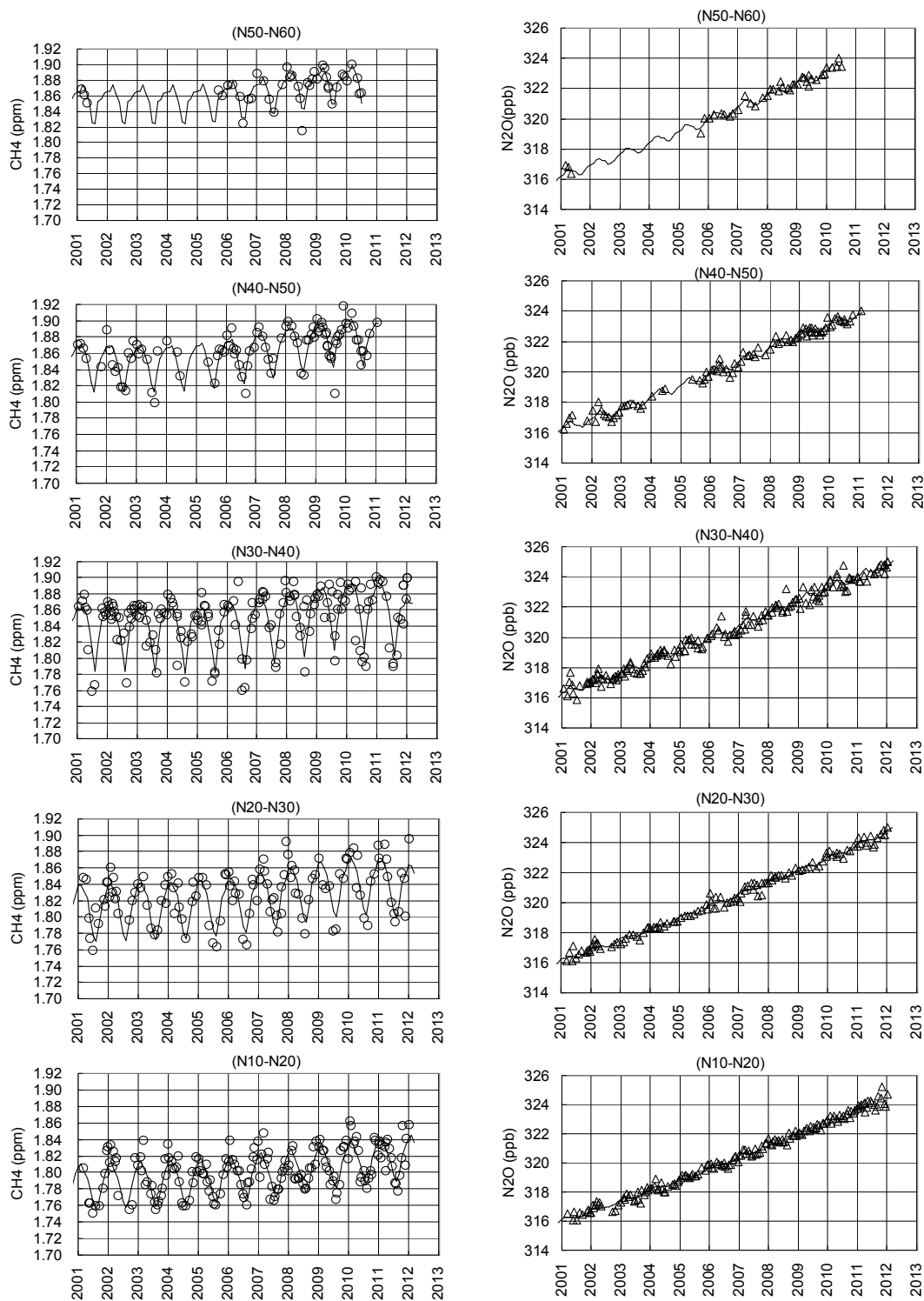


図8 オセアニア航路におけるCH<sub>4</sub>とN<sub>2</sub>Oの緯度別時系列変化(北半球)

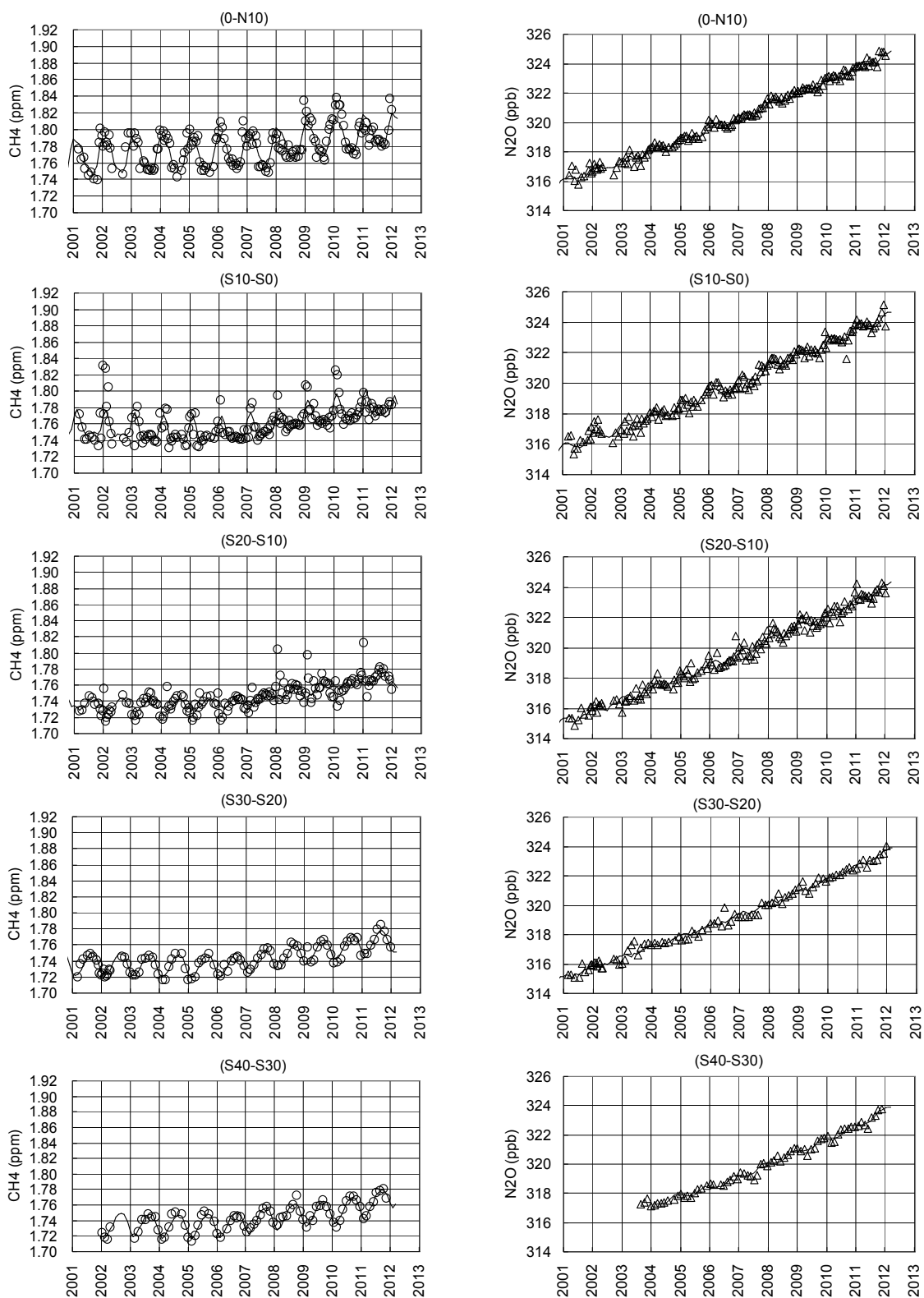


図9 オセアニア航路における CH<sub>4</sub> と N<sub>2</sub>O の緯度別時系列変化 (南半球)

#### 4. 結果・考察

##### (1) アジア・オセアニア地域におけるメタン・亜酸化窒素の変動と分布の特徴

###### ①オセアニア航路におけるメタン・亜酸化窒素などのトレンド

メタンと亜酸化窒素について、日本ーオセアニア航路の TRANSFUTURE5 号、および日本ー北米航路の SKAUBRYN 号や PYXIS 号（別途実施の観測）などにより採取された太平洋上の大気を分析し、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、図 9）。メタン濃度はどの緯度帯においても 2007 年まではほぼ横ばいであったが、2007 年の後半から 2008 年にかけて各緯度帯で 10~20ppbv 程度の濃度増加がみられた。これは、1998 年のエルニーニョ以来の大きな変動といえる。これは世界的規模度で起こっており、大きなイベントであった。近年の動きとしては、例えば 2011 年のメタン濃度の変動は南半球ではまだ増加傾向が見えるが、北半球高緯度では止まってきているように見える。北半球および南半球の中・高緯度帯での増加は 2007 年にはすでに起こっているが、低緯度域での増加は緩やかかもしくは 2008 年の方にずれているように見える。北半球低緯度から中緯度の変化の違いは、気象解析の結果からこの時期に起こっている熱帯の西風の増加に伴う大気の上層への混合の速さが相対的に増加していることに起因するものと推定されている。また、大気の大気南半球への輸送の速度も応答に影響している。メタンの緯度別トレンド曲線からは、本観測は最近 5 年間におけるメタンの急激な変動を良くとらえていた。このような地球規模で起こった 2007 年から 2008 年のメタンの濃度増加に関する理由としては、なんらかのメタン発生量がこの時期に増加したことによると考えられる。降水量やイベント的なメタン発生(2007 ごろからの弱いエルニーニョ)もしくは、高緯度帯の凍土などの融解、湿地からの発生増加などが考えられる。

亜酸化窒素のトレンドは、2010 年にむけてほぼ直線的な上昇傾向があるように見え、赤道の南側に季節変化の大きな部分があることが分かる。亜酸化窒素のトレンドは、最近 5 年間ではほぼ直線的な増加傾向であるが、増加率を緯度別に見ると、亜酸化窒素の発生源が徐々に増加傾向にあることが分かった。特に南半球での増加率の増加が見て取れる。しかし、平均をみると 2009 年以降は 0.84ppbv/year まで増えた後、増加傾向が止まっているようにも見える。ただ、トレンドの端を正確に解析することは困難であるので、近年の発生源の量的変化が止まったのかの判断は、今後のデータに委ねる必要がある。

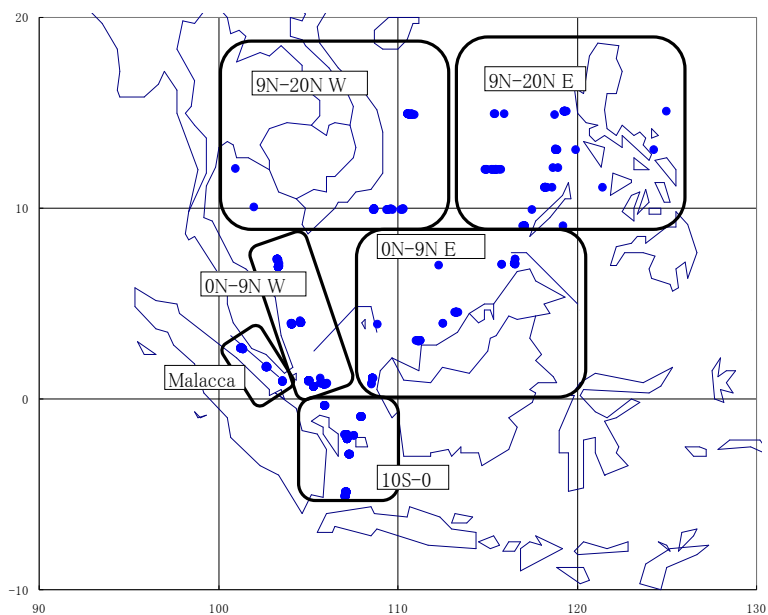


図 10 東南アジア航路での大気採取位置とデータ区分

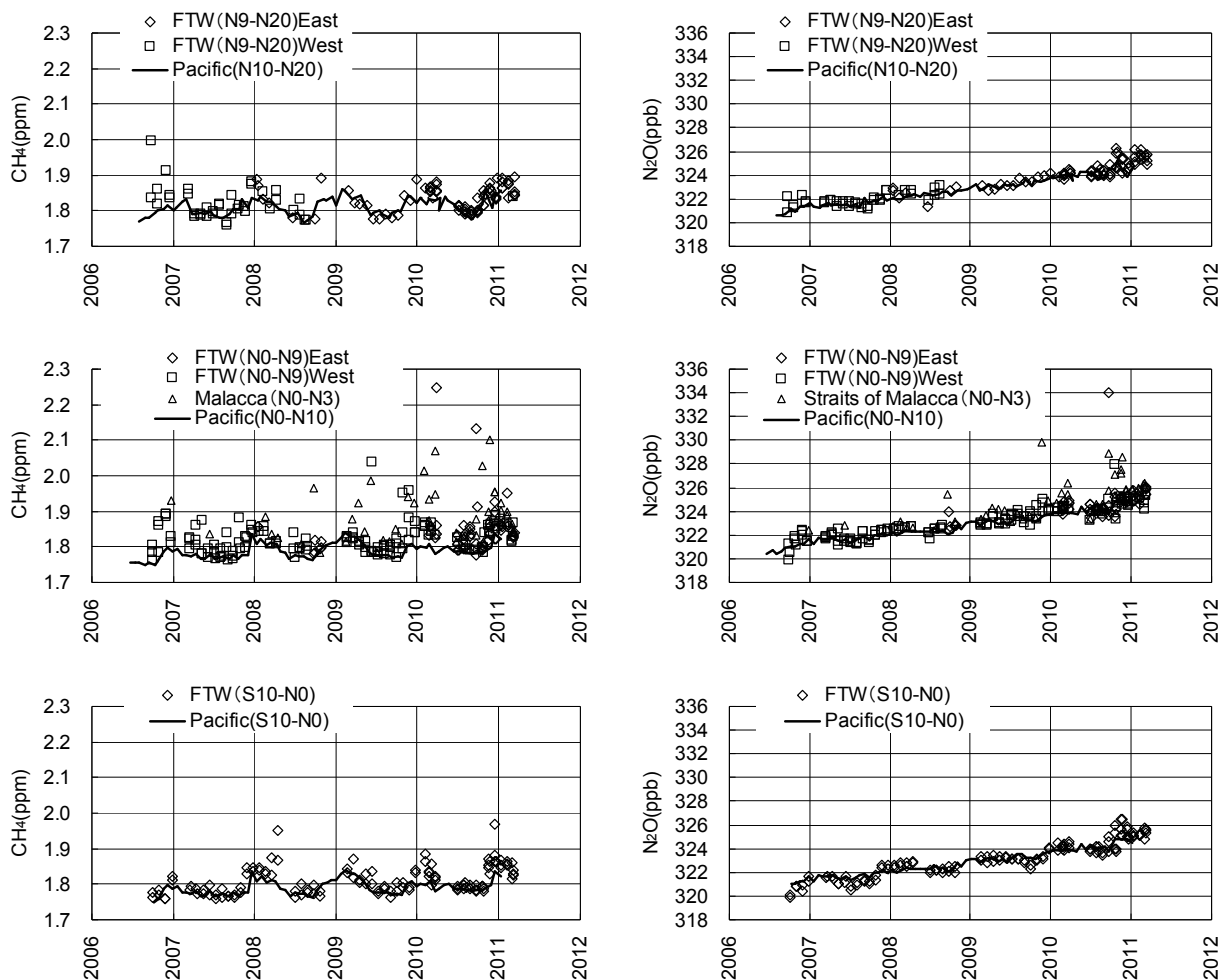


図 11 東南アジア航路 (FTW, Malacca) とオセアニア航路 (Pacific) における CH<sub>4</sub> と N<sub>2</sub>O の濃度変動

②東南アジア航路におけるメタン・亜酸化窒素などの濃度変動

東南アジアでの航路でのサンプリングはこれまで、5°S, 2°S, 1°N, 4°N, 7°N, 10°N, 15°Nで行われていたが、12.5°N, 7.5°N, 4°N, 2.6°N (マラッカ海峡), 0.7°N, 2°S, 5°Sへと変更された。(I) 10°S-0°N (赤道), (II) 0°N (赤道) -9°N, (III) 9°N-20°Nに分類して、オセアニア航路でのデータと比較してこの地域の特徴を示す(図10)。(II)と(III)の区域では西と東にさらに区分してデータを解析した。

メタンは、地域(II)や(III)での濃度は2007年の9~12月、2008年の4~6月ごろ、(I)では2009年3~4月ごろに大きな値が観測されていることが分かる(図11)。(III)におけるメタン濃度に見られる冬季極大はアジア大陸からの季節風の吹き出しに伴っていることが推定されるが、それ以外のものは何らかの発生源の影響が考えられる。今回の観測からサンプリングを始めたマラッカ海峡でのメタン濃度が冬季以外に高いことが分かる。これは、この近辺の発生源の影響と考えられ、森林燃焼や都市汚染の影響を捉えている可能性がある。一酸化炭素や亜酸化窒素の増加もメタンの増加時に少なからず観測されるため何らかの燃焼による影響が想定される(図12)。しかし亜酸化窒素の濃度増加は小さく(1 ppbv程度)、かなり精密な測定が必要であることが分かる。2009年の秋季のマラッカでのデータは一酸化炭素濃度も高く森林燃焼の傾向が強く出ていると考えられた。

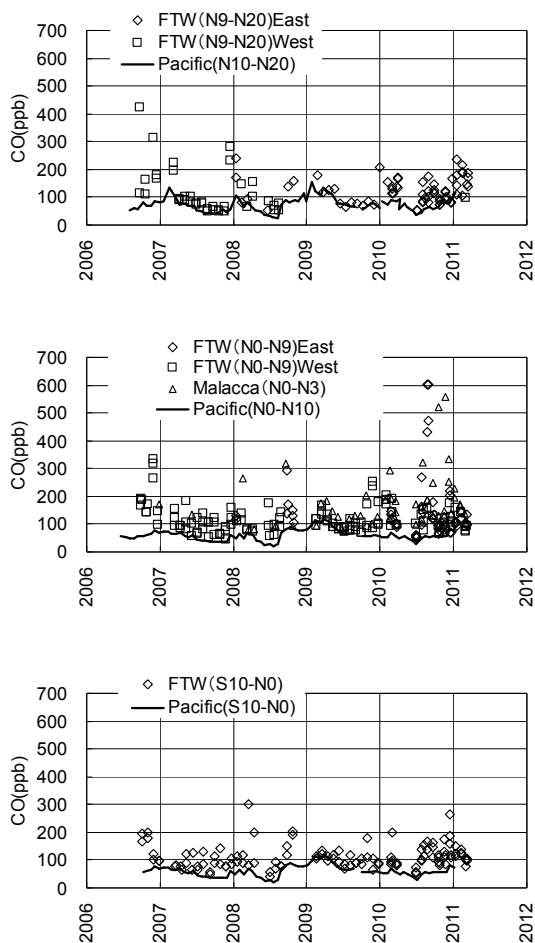


図 12 東南アジア航路 (FTW, Malacca) とオセアニア航路 (Pacific) における CH<sub>4</sub> と N<sub>2</sub>O の濃度変動

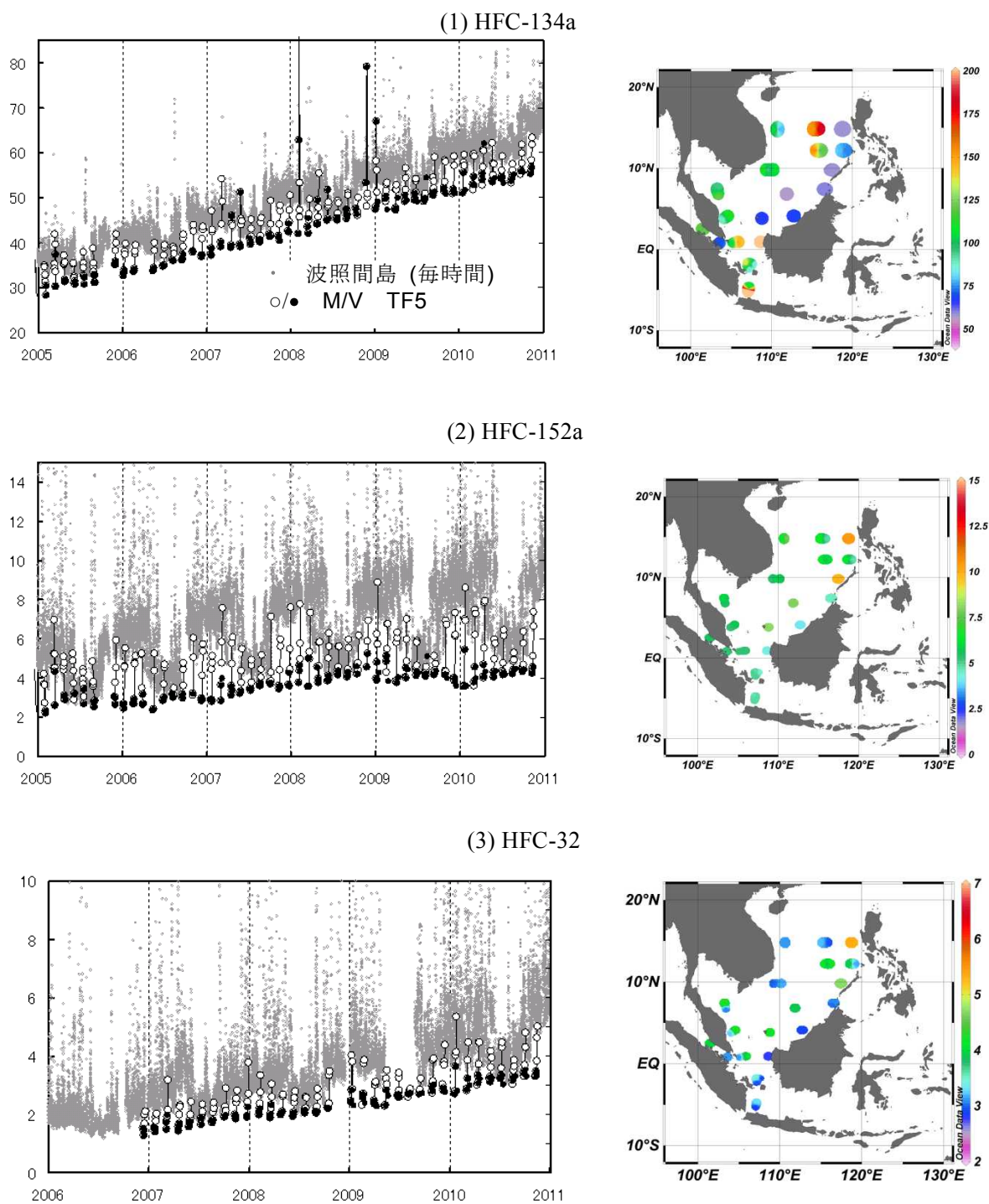
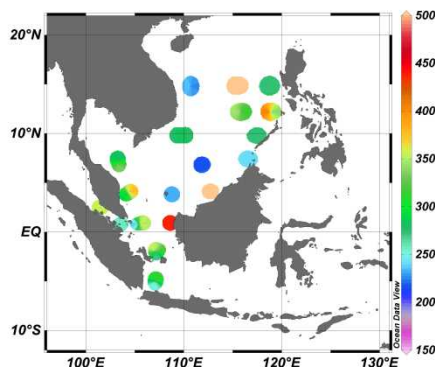
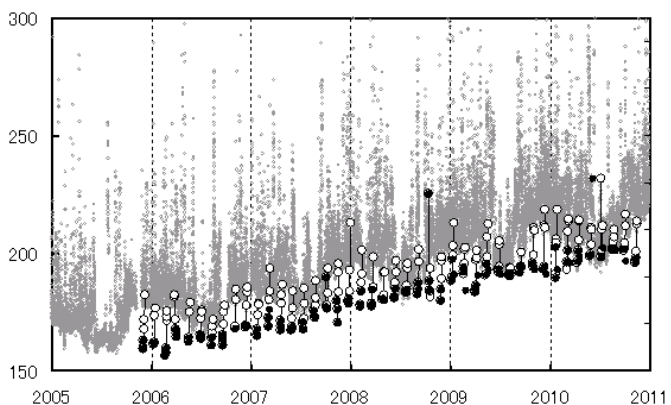


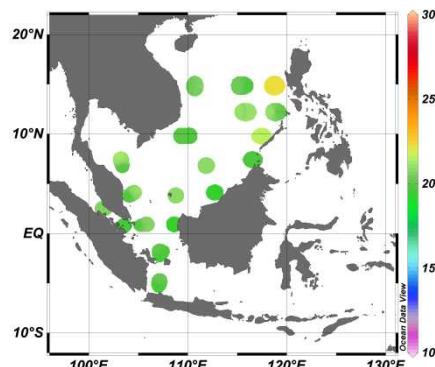
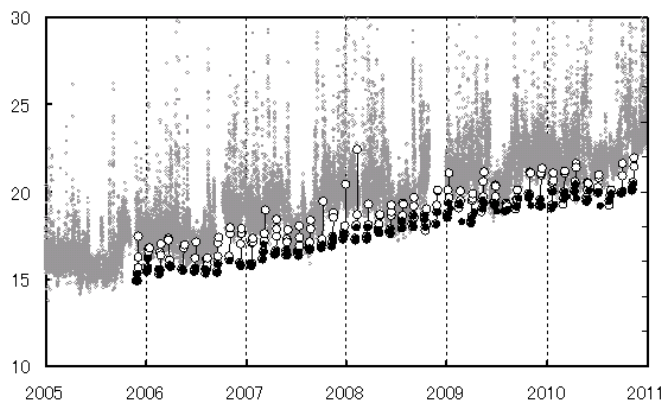
図 13 オセアニア航路におけるハロカーボン濃度の時系列変化(北緯 20 度～南緯 30 度)と波照間における毎時間観測との比較(左)および東南アジア域で観測されたハロカーボン濃度の分布(2009～2010) (1) HFC-134a (2) HFC-152a, (3) HFC-32



(4) HCFC-22



(5) HCFC-142b



(6) HCFC-141b

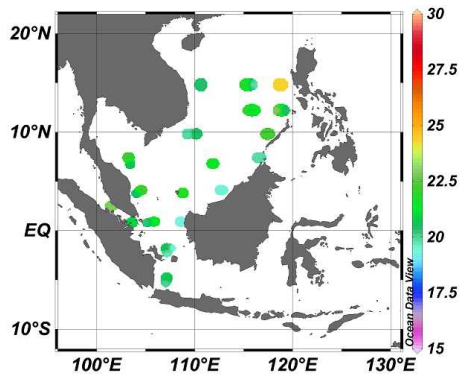
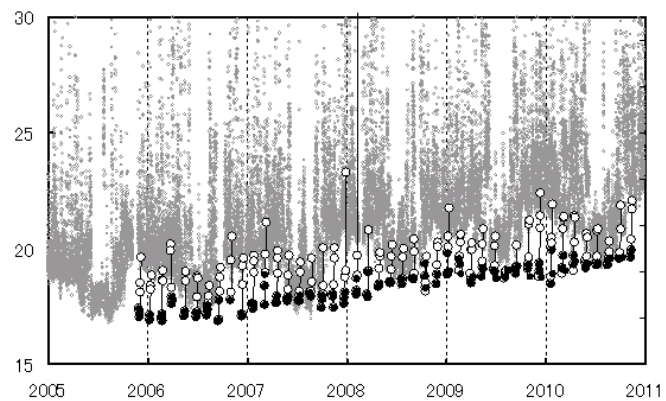


図 13 (続き) (4) HCFC-22, (5) HCFC-142b, (6) HCFC-141b

## (2) アジア・オセアニア地域におけるハロカーボンの変動と分布の特徴

### ①オセアニア航路におけるハロカーボンのトレンド

オセアニア航路におけるサンプルの測定からは、それぞれの緯度帯におけるハロカーボンのベースライン濃度の経年変化が得られた。HFC-134a、HFC-152a、HFC-32、HCFC-22、HCFC-142b、HCFC-141b の観測結果を 20°N～0°と 10°S～30°S に分けて、波照間島(123.8°E, 24.1°N)における毎時間測定データと比較すると、北半球 (<20°N) のベースライン濃度はおおむね波照間における観測値の下限に一致して変動し、夏よりも冬に高くなる傾向があるが、南半球 (10°S～30°S) では HFC-152a を除くハロカーボンに顕著な季節変化は見られず、毎夏の波照間における下限濃度を結ぶようにほぼ直線的に増加していた。OH ラジカルとの反応性が高い (大気中寿命=約 1.4 年) HFC-152a には南半球でも夏に濃度が減少する傾向がみられた (図 13 左)。

### ②東南アジア航路におけるハロカーボンの濃度変動

東南アジア海域では、オセアニア航路の同緯度帯に比べて、しばしば高濃度のハロカーボンが検出された。特に、冷媒として広く使用されている HCFC-22 と HFC-134a については、大半が波照間島の冬季の濃度レベルを上回った。上記 6 化合物の 2009 年～2010 年におけるグリッド濃度分布からは、HFC-32、HCFC-142b と HCFC-141b について、フィリピン西海域を除いて、ほぼ均一な分布が見られた (図 13 右)。

アジア航路の FTW88～93, FTW95, FTW96, FTW98, FTW99 航海で観測された HFC-152a 濃度の緯度分布を同時期のオセアニア航海 (TF22～TF29) から得られた結果と比較すると、東南アジア航路における HFC-152a 濃度は同緯度帯におけるオセアニア航路のデータよりやや高くなる傾向が見られた(特に秋～冬)。これらのデータを 2004 年以降の波照間におけるモニタリング結果と合わせて時系列を調べたところ、オセアニア航路におけるサンプルの 30°N データは波照間におけるベースライン濃度とよく似た変動を示し、夏に低く、冬に高くなっていた。一方、最低濃度を示す南半球のデータは南半球の夏にやや低くなり、波照間とは位相が逆転していた。東南アジアの HFC-152a 濃度も概ね波照間のベースラインに近い季節変動を示した。

HFC-134a はカーエアコンの冷媒として急速に利用が広まっている。この化合物も北半球で南半球よりも高濃度となる傾向があるが、HFC-152a の場合ほど顕著ではない。東南アジア海域の HFC-134a は、4 月と 7～10 月を除いて、同緯度の西太平洋データと近い濃度を示したが、7～10 月には 100～300pptv の高濃度が観測された。2004 年以降の波照間におけるモニタリング結果と合わせてみると、オセアニア航路におけるサンプルについては、HFC-152a の場合と同様に、30°N データは波照間におけるベースライン濃度とよく似た変動を示すが、最低濃度を示す南半球のデータには季節変化は見られなかった。4 月と 7～10 月の東南アジア航路におけるデータは波照間におけるベースライン濃度からは大きく外れ、波照間に中国から汚染気団が流入した場合に匹敵あるいはそれらを上回るレベルにあった。このことは、東南アジア域が HFC-134a の大きな発生源になっている可能性を示唆する。

## (3) アジア・オセアニア地域における対流圏オゾンの変動と分布の特徴

### ① オセアニア航路における対流圏オゾンのトレンド

図14に2003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。データの期間がまだ10年未満なので長期トレンドの解析はできないが、特に中緯度帯（南北両半球）において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。

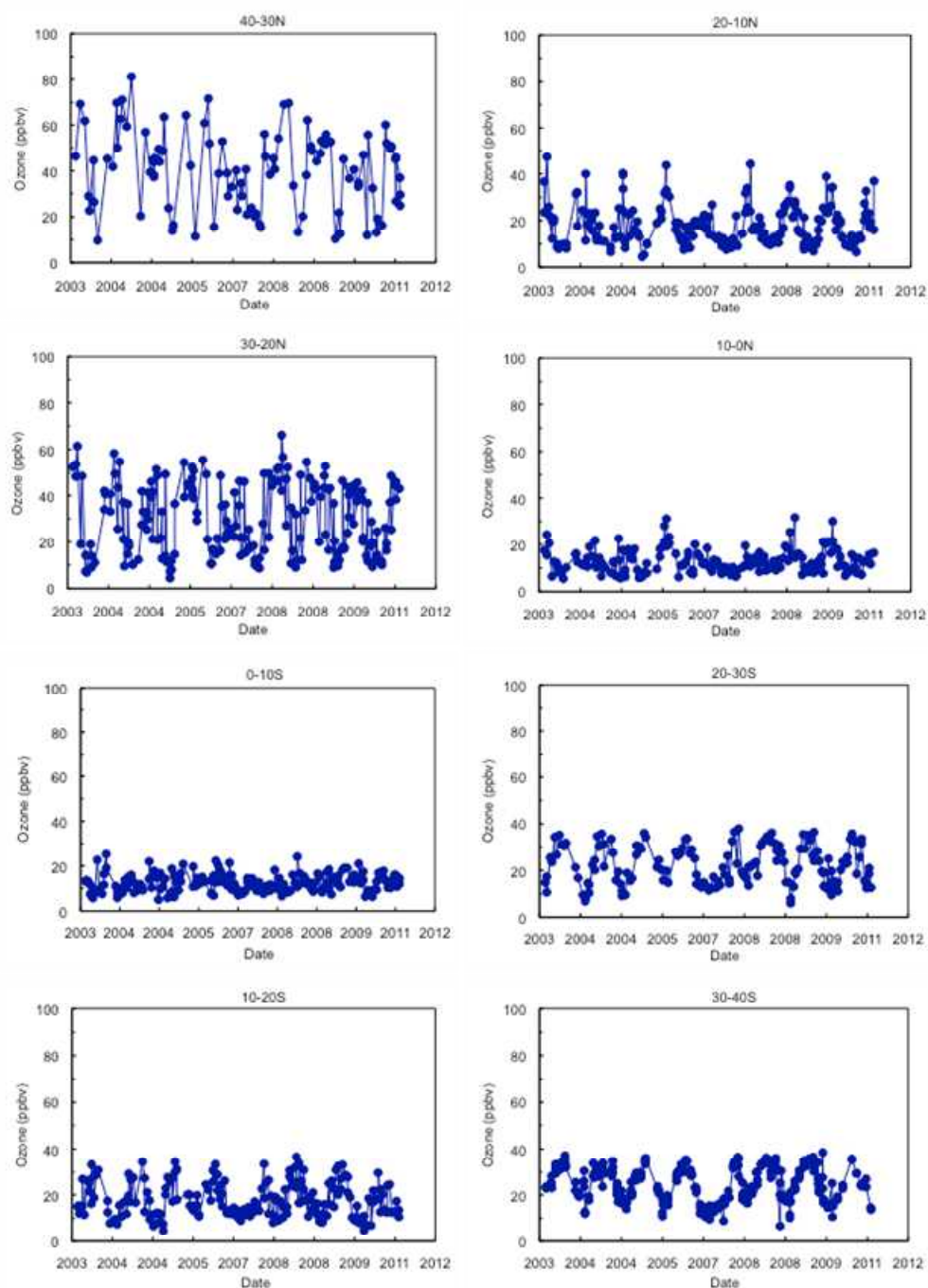


図 14 オセアニア航路における対流圏オゾンの緯度帯別トレンド

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を行って明らかにしていきたいと考えている。

## ② 東南アジア航路における対流圏オゾンの濃度変動

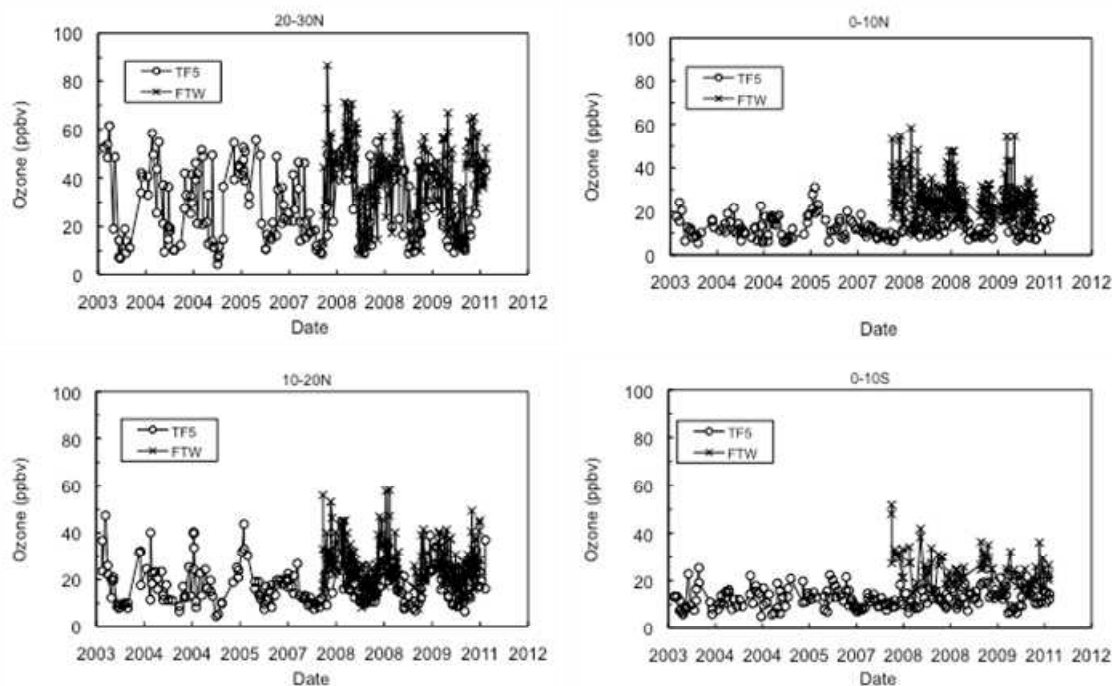


図 15 東南アジア航路とオセアニア航路における対流圏オゾン濃度変動の比較

アジア航路上での測定範囲は北緯30度から南緯10度までであるため、オゾンデータを10度毎に整理して4つの緯度帯別に時系列を作成した。図15に4緯度帯において、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。データの蓄積が少ないこと、東南アジア航路におけるオゾン濃度は変動が非常に大きいことから、どの季節に最も大きな差が見えるかはまだ明確ではない。しかしながら、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ため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。今後、前駆物質の発生源に関する情報を、一酸化炭素やブラックカーボンなど多成分の比率解析から得ていきたいと考えている。

## (4) アジア・オセアニア地域における一酸化炭素の変動と分布の特徴

## ① ボトルサンプリングと連続測定との比較による一酸化炭素計測の高度化

船舶観測プラットフォームを利用して行われている一酸化炭素の連続観測について、結果の健全性を評価するために、これまで連続測定と同時に行われてきたボトルサンプルの測定結果と比較を行った。採取されたボトルサンプル中のCOは還元気体検出器付きガスクロマトグラフ(GC/RGD)を用いて国立環境研究所にて定量を行っている。この方法はこれまで世界で最も普及しているCOの定量方法であり、GC/RGD法との計測結果の一致性を示すことは船上連続観測の結果

の健全性を示すことを意味する。これまで行ってきたガス相関式非分散赤外吸収法CO計測装置(GFC)を用いた船上連続観測 (in situ CO) とGC/RGDによるボトルサンプル分析 (flask CO) の結果の比較から、両手法による結果の間には有意な違いがあることが分かり、(1) CO標準ガス基準の変更、(2) 標準ガス中でのCOの増加、の2点が主原因となっていることが分かっていた。これらの要因に加え、GC/RGDの線形性の乏しさを原因としてCOの濃度が低い低濃度領域 (< 70 ppbv) でin situ COとflask COに違いが生じている可能性が示唆された。そこで、70 ppbv以下でのGC/RGDの直線性を、広い濃度範囲にわたって優れた直線性を示すことが知られている真空紫外共鳴蛍光法CO計測装置(VUV-RF)を用いて分析し、その結果に基づいてflask COの値に補正をかけた結果とin situ COの比較を再び行った。

図16にTRANSFUTURE 5号(TF5)、SKAUBRYN号(SKB)、及びFUJITRANSWORLD号(FTW)による観測から得られたCOの連続観測測定値(in situ CO)とボトルサンプルのGC/RGDによる測定値(flask CO)の相関を示す。3つの船舶それぞれで最小自乗法により計算された回帰直線の決定係数( $R^2$ ) は0.96以上であり、その傾きはほぼ1を示した。得られた切片についてもゼロではないものの、GFCの典型的な測定誤差( $\pm 10$  ppbv)を考えれば有意な値ではないと言える。in situ COとflask COの関係で1:1の関係から外れているデータの存在が確認できるが、これは連続測定でのCO測定値の算出方法に原因がある可能性がある。連続測定では40分間の測定結果の平均値からCOの濃度を算出しているため、瞬間的なCOの濃度を反映するボトルサンプルとは異なり、COを連続計測している40分間に大気中濃度に大きな変動が生じればその平均値も影響を受けることになる。従って、上記の1:1の関係から外れているデータについては連続測定とボトルサンプルのサンプリング時間の違いで説明できる可能性がある。以上の結果から、ボトルサンプルの分析に用いられているGC/RGDの低濃度領域(< 70 ppbv)での線形性を補正した結果、2つの測定方法はよく一致した結果が得られるようになり、濃度に依存したバイアスも解消された。また、この結果はガラスボトルに試料大気を採取してから分析するまでの間にCO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。

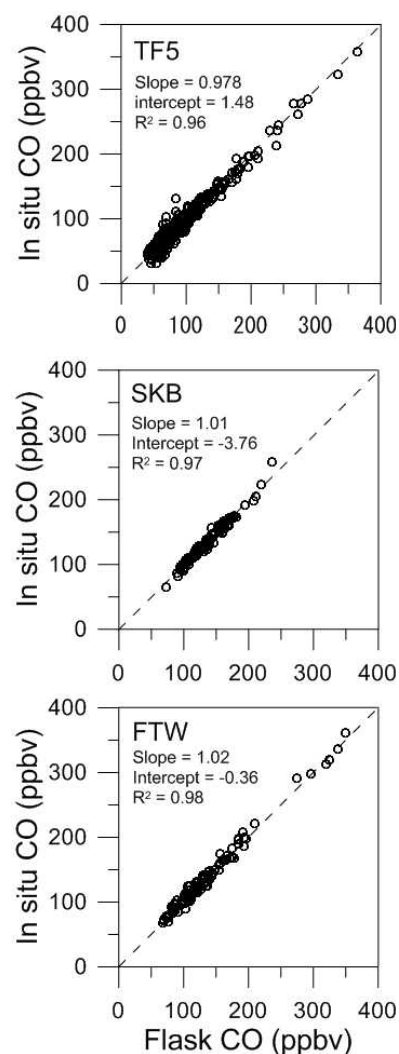


図16 TF5, SKB, FTW における CO の連続測定とボトルサンプル分析の相関。破線は1対1の対応を示す。

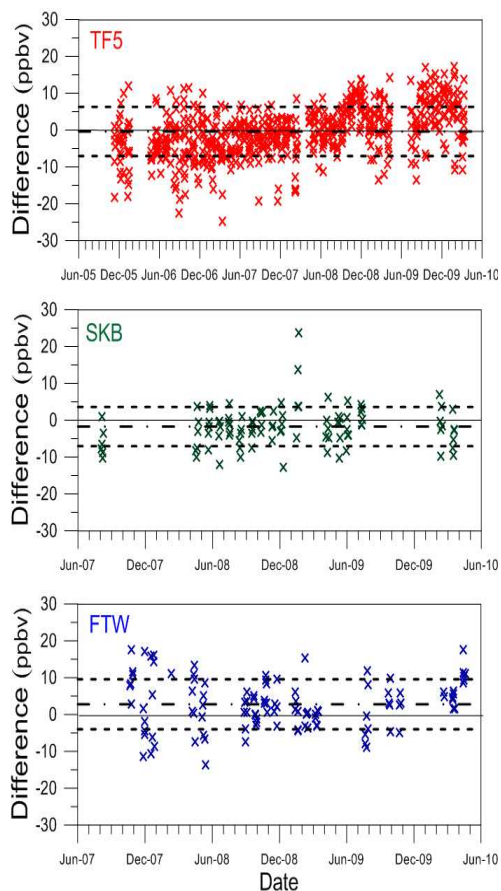


図 17 連続測定とボトルサンプル分析の差分値の時系列変化

②東南アジア航路（ボルネオ島経由）の経路変更

経済情勢の変化により、2009年4月(航海名:FTW101)よりFTWは東南アジア航路での定期便としての航行を停止したが、2009年7月(FTW104)より、再び東南アジア航路における定期便としての機能を再開し、本観測も8月(FTW105)より本格的に再開された（FTW104では一酸化炭素のみの観測を実施）。しかしながら、FTW104からの航路は従来航路に対して一部が変更されており、ボルネオ島を経由するという点で大きく異なる。ボルネオ島経由航路（変則航路）は、名古屋を出てジャカルタまで(名

図17にin situ COとflask COの差分値の時系列変化を示す。全ての船舶で得られた結果は正規分布を示し、差分値の平均値はゼロに近い値を持った。差分値の標準偏差はGFCの典型的な測定誤差の範囲内であり、この結果は分布がランダムエラーによって支配されていることを示している。差分値の時系列変化は差分値が平均値を中心にそのほとんどが差分値の標準偏差( $\pm 1\sigma$ )の範囲内で変動していることを示している。例外的に、TF5の結果では2008年の6月から差分値が増加しているように見えるが、SKBやFTWの結果ではそのような増加傾向が認められない。この結果はTF5の連続観測装置に問題がある可能性を示しているが、この増加傾向が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、今後も船舶から得られるデータの健全性を維持するために注意深く管理する必要がある。以上の結果から、船舶上でのCOの連続観測の結果にボトル分析の結果を基準とした健全性が実証され、品質保証/管理体制が確立された。

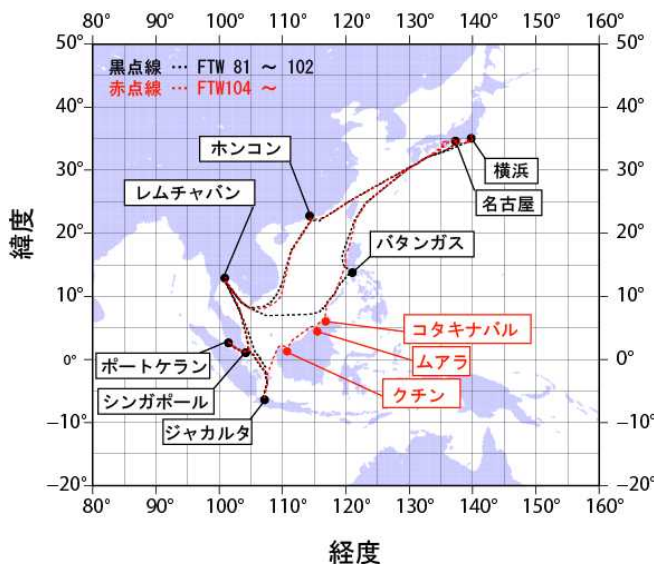


図 18 フジトランスワールド号のボルネオ島経由航路。黒の点線は観測を開始したFTW81 から 102 までの航路を、赤の点線はボルネオ島を経由する FTW104 からの航路を示す。ボルネオ島経由航路のみで停泊する港は赤字で示す。

古屋ーホンコンーレムチャバンーシンガポールーポートケランージャカルタ) は従来航路と同一の航路を取るが、その後、従来航路がレムチャバンーバタンガスー横浜という航路を取るのに対して、ボルネオ島西部、北部の港：クチン、ムアラ、コタキナバルに停泊し、横浜に寄港する航路を取る (図18)。

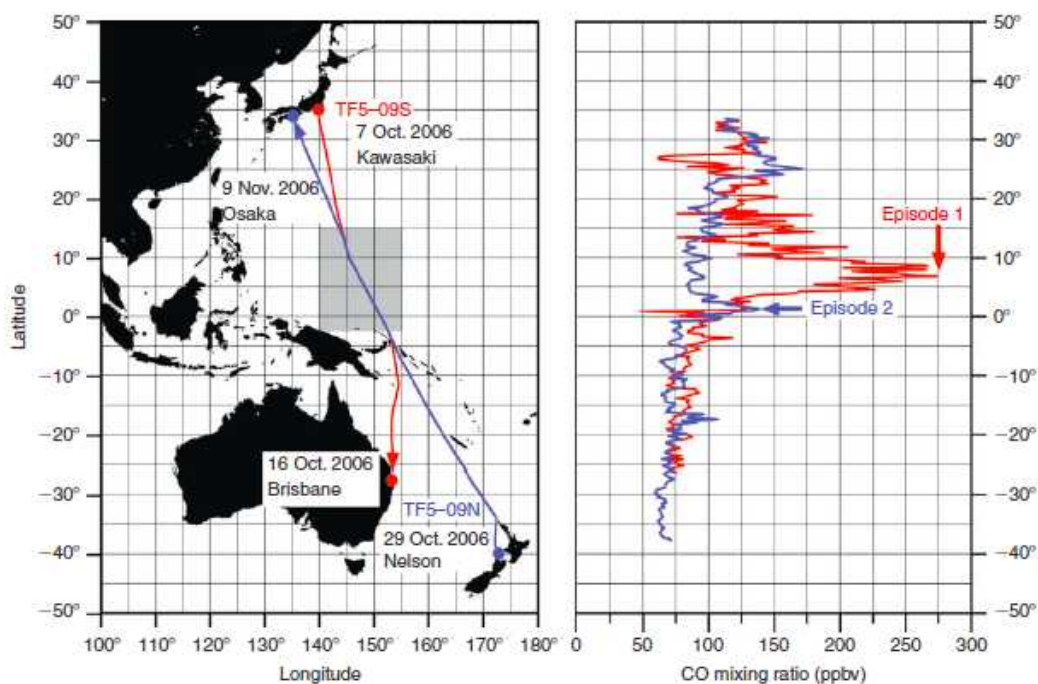


図 19 TRANSFUTURE 5 号で観測された一酸化炭素濃度の緯度分布

### ③インドネシアの泥炭燃焼による一酸化炭素などの温室効果ガスの放出

エルニーニョにあたる  
2006年の10月に、オセアニア航路における観測で高濃度の一酸化炭素が観測された。図19にTRANSFUTURE 5号の航海TF5-09航海で得られた一酸化炭素濃度の緯度分布を示す (日本ーオーストラリアーニュージーランド間の南下航路をS航路とし、ニュージーランドから日本

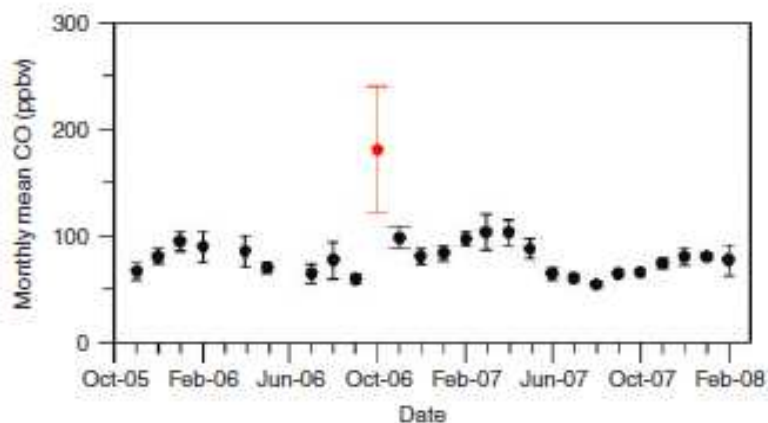


図 20 赤道付近における一酸化炭素濃度の月平均値の時系列

までの北上航路をN航路として示している)。通常、人間活動の影響を受けにくい北緯25度以南では一酸化炭素濃度は50~100 ppbvの範囲で変動しているが、TF5-09Sの南下航路では北緯5から10度で非常に高い濃度(最大約270 ppbv)を示した。同様に、TF5-09Nの北上航路では赤道付近で急

激に濃度が120 ppbvにまで増加している。赤道付近における一酸化炭素濃度の月平均値の時系列を見ると、この期間が通常よりも高濃度になっていることが分かった(図20)。インドネシアでは乾季の終わりの8月から10月にかけて乾燥に伴う自然火災、焼畑農業・森林皆伐等を目的とした人為火災が発生し、10月以降の雨期の到来によって火災が消沈する、というサイクルが繰り返されることが知られているが、特にエルニーニョ時には熱帯域で森林火災が多発することが知られている。

European Space AgencyのESR-2に搭載されたATSR (Along Track Scanning Radiometer)から、ボルネオ島に多数のホットスポットが検出されていた。これらを合わせて考えると、船舶で観測された一酸化炭素の高濃度イベントには、ボルネオ島を中心として生じた大規模な森林火災が影響していると考えられた。

そこで、ラグランジュアン後方流跡線解析を行ったところ、TF5に到達していた空気塊(エアマス)はボルネオ島方面から来ていることが分かった。また、AIRS (Atmospheric Infrared Sounder)衛星センサーによる一酸化炭素カラム量もインドネシア上空で高濃度になっており、ボルネオ島の火災を起源とするプルームの長距離輸送をTF5が捉えたものを考えられた。これは、東南アジアにおける森林火災が長距離輸送によって太平洋外洋域に影響を及ぼし得ることを示している。

図21にTF5で観測された一酸化炭素と二酸化炭素の散布図を示す。2006年10月に観測されたイベント時におけるCO/CO<sub>2</sub>比は、通常観測されるCO/CO<sub>2</sub>比よりも有意に高い値を示し、CO/CO<sub>2</sub>比で171(決定係数:0.60, n=50)であった。一方、現在の化学輸送モデルで最も広く世界中の研究者に使われている、バイオマスバーニングの排出インベントリであるGFEDv2 (Global Fire

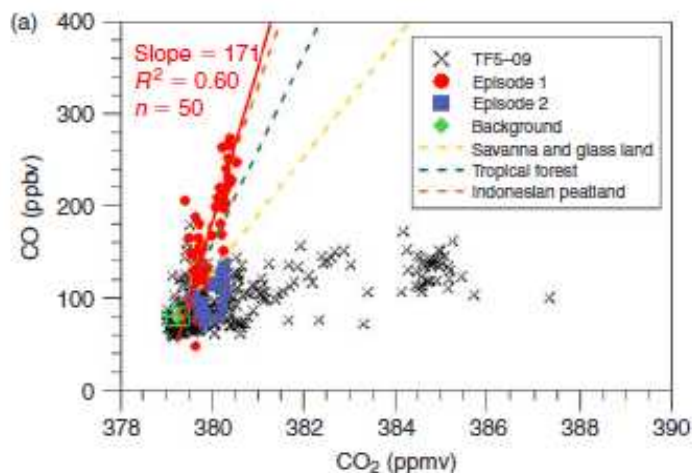
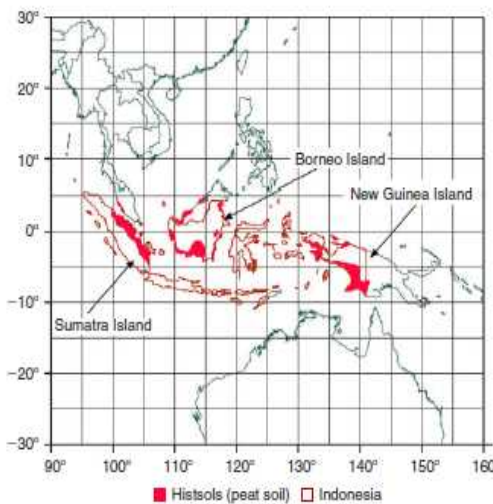
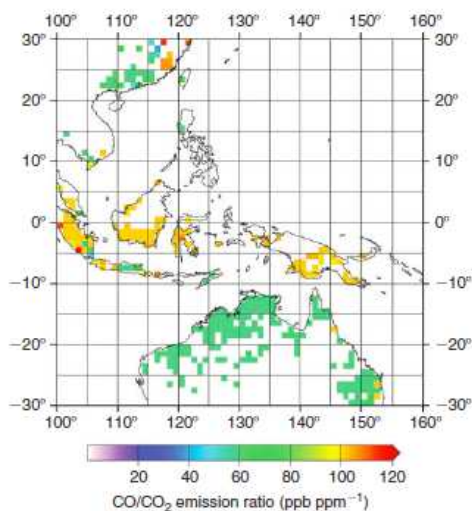


図 21 TF5 で観測された一酸化炭素と二酸化炭素の散布図



Emission Database version2)から得られるCO/CO<sub>2</sub>比は110であった。このことは、GFEDv2がCOの排出を過小評価していると考えられる。この地域における分布を見

図 22 GFEDv2 インベントリによる CO/CO<sub>2</sub> 比 (左) と泥炭の分布図 (右)



てみると、GFEDv2によって排出が予測されている地域に泥炭が豊富にあることが分かる(図22)。

また、ここで観測されたCO/CO<sub>2</sub>比は、熱帯雨林やサバンナの植物を採取し実験室で燃やした際に観測されるCO/CO<sub>2</sub>比(熱帯雨林:103+/-21, サバンナ:63+/-20)よりも高く、泥炭を燃やした際に観測されたCO/CO<sub>2</sub>比(ばらつきは大きく、143, 194-279)に近かった。GFEDv2では、基本的にMODIS衛星センサーから観測されたホットスポットにエミッションファクターを乗じて、各物質の排出量を推計している。実際、衛星センサーによって観測された

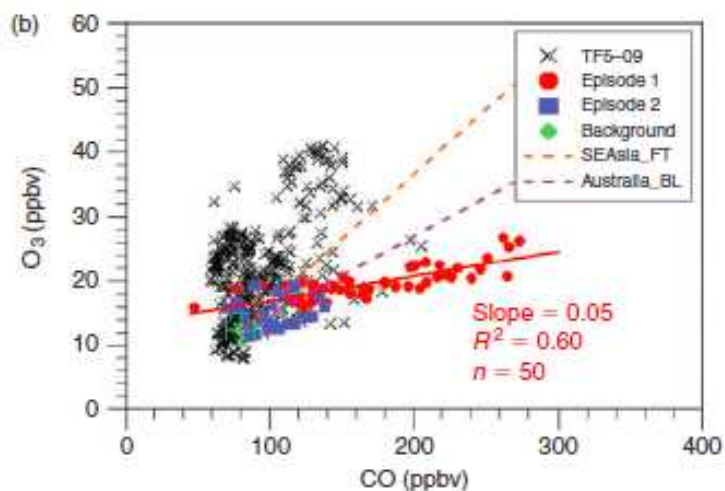


図 23 TF5 で観測されたオゾンと一酸化炭素の散布図

ホットスポットの分布は報告されている泥炭湿地帯の分布によく一致している。しかし、エミッションファクターの値に泥炭燃焼によるものを用いておらず、有名であるが今となっては少々古いレビュー論文であるAndreae and Merlet (2001)で報告されている熱帯雨林の値を用いていたため、CO/CO<sub>2</sub>比を過小評価していたと考えられた。一方、オゾン生成について、COの増加に対するオゾンの増加率を見ると、通常よりも低いO<sub>3</sub>/CO比を示していた(0.05, 決定係数:0.60, n=50)(図23)。過去にこの地域で観測された森林火災プルーム中のO<sub>3</sub>/CO比よりも有意に低い値となったが、これはおそらく水蒸気量の多い海洋境界層内ではオゾン前駆物質である窒素酸化物の湿性除去が早く進むため、長距離輸送されている間に窒素酸化物が枯渇してしまい、結果としてオゾン生成が起こりにくくなってしまったためと推定できる。

近年では衛星センサー等を用いた観測を元に、ボルネオ、スマトラ島やタイ・インドシナ半島等の東南アジア域で発生するバイオマス燃焼の存在が明らかにされており、それらから放出される化合物の量や影響が注目されている。インドネシアのスマトラやボルネオ島に主に存在する泥炭湿地では泥炭が低温・低酸素燃焼をし、燃焼速度が遅いため多くのスモークを発生しながら長期に渡って燃え続ける。東南アジアでは今まで広域に及ぶ定期観測が行われてこなかったことから、発生源の種類、放出強度とその季節性等については未だ理解が不十分な状態であるが、本観測ではボルネオ島で生じたバイオマス燃焼の影響を示す観測結果が得られた。まだ観測結果が十分に蓄積されていないためにボルネオ島の発生源の特徴についてはあまりわかっていないが、今後もこの航路での観測を継続することで特徴を明らかにすることが望まれる。

ボルネオ島以外にもマラッカ海峡内では燃焼プロセスを発生源を持つ化合物の濃度が定常的に高い値を示していることもアジア航路での特徴の一つに上げられる。これは、常に多くの貨物船舶が太平洋とインド洋を繋ぐ海上交通の要衝であるマラッカ海峡を航行することによって放出される排気ガスが原因となっている可能性が高いと考えられる。今までに車や飛行機の排気ガスによる気候変動、大気環境への影響が多く論じられてきたが、この結果は船舶からの排気ガスについても他の排気ガスと同様に注目する必要があることを示している。

## (5) キャビティリングダウン式分光計によるメタンの連続測定

## ①キャビティリングダウン式分光計によるメタン連続測定の見証

東南アジア航路およびオセアニア航路で大気中メタンの連続観測を行うためにキャビティリングダウン式分光分析計(CRDS)をFUJITRANS WORLD号(FTW)とTRANSFUTURE5号(TF5)に設置し、2009年9月より連続観測を行っている。FTWとTF5に搭載されたCRDSは、ともにPICARRO社製のものであるが、TF5に搭載されたG1301型CRDS(以下、G1301)は、FTWに搭載されたEnviroSense3000i型CRDS(以下、ES3000i)のバージョンアップ版となり、ソフトウェア、キャビティの内容積等に違いがある。また、FTW搭載機ES3000iが二酸化炭素・メタン・水蒸気の3成分を測定可能であるのに対し、TF5搭載機G1301はメタンと水蒸気のみを測定可能である。アジア航路観測では船舶の欠航や装置トラブルによって継続的な観測データが得られていないが、オセアニア航路では1年以上にわたって観測データが得られている。このようにCRDSを用いた観測データが蓄積されているが、CRDSによる高時間分解能での洋上大気中メタンの連続観測の実施例は世界初の試みであり、船舶環境での運転がCRDSにどのような影響を与えるかはよくわかっていない。そこで、船上で同時に観測されている他の計測機器からの観測結果と比較することでCRDSから得られた観測結果の妥当性を検証した。

## (a) 水蒸気による干渉の実験的評価

CRDSによるメタン計測ではCO<sub>2</sub>のようにその出力値に水蒸気干渉(pressure broadeningによる)の補正がなされていないため、水蒸気濃度の変動が測定結果に大きな影響をもたらす。確度の高いメタンデータを得るためには水蒸気干渉の大きさを見積もり、測定結果を補正しなくてはならない。そこで、CRDSを各船舶に搭載する前に室内実験を行い、補正式の導出を行った。

実験は異なる水蒸気濃度を持つ濃度既知のメタンを含むエアベースの標準ガスをCRDSで計測することで行われた。標準ガス中の水蒸気濃度は精密湿度供給装置(SRG-1R-10、神栄テクノロジー製)を用いて制御した。図24に各船舶に搭載されているCRDSの水蒸気干渉の大きさを水蒸気濃度の関数として表したものを示す。干渉の大きさは水蒸気濃度がゼロ(厳密には露点-45度以下)の時のメタン測定結果と水蒸気を含む時のメタン測定結果の差分値で定義される。干渉の大きさを水蒸気濃度が約3%までの範囲で調べたところ、水蒸気による干渉は非常に大きな影響を持つことが明らかになった。例えば、最小自乗法で求めた近似式を計算すると、ES3000i、G1301ともに

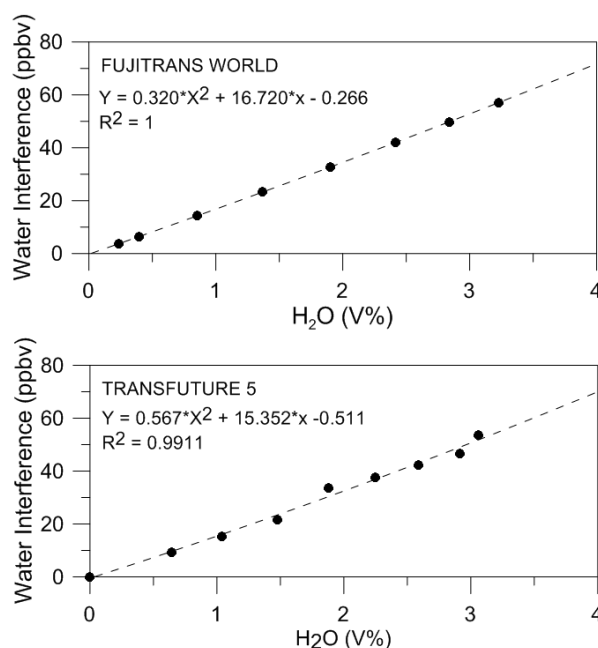


図 24 各船舶に搭載されたキャビティリングダウン式分光分析計によるメタン測定における水蒸気干渉

水蒸気濃度が3%程度では約50 ppbvの干渉の大きさを持つ。北半球における清浄大気中における典型的なメタンの季節変動の大きさは50~80 ppbv程度であることから、水蒸気による干渉が大きな影響を及ぼすことがわかる。また、典型的なメタンの測定精度が0.3 ppbv ( $\pm 1\sigma$ )であることを考えると、ES3000i、G1301で水蒸気濃度がそれぞれ0.04、0.06%以上になると測定精度を超えて有意に測定結果に影響を及ぼすことになる。ES3000iおよびG1301で得られた干渉補正式を比較するために、得られた補正式による補正量、両者の補正量の差分を水蒸気濃度の関数として表すと、ES3000iとG1301の補正量の違いは水蒸気濃度が約2.7%のときに最大となり、2.2 ppbv程度の差が生じていた。既報論文によると、同一機種間での水蒸気干渉補正式は同じもとなるとの報告があるが、この結果は機種によって補正が異なることを示唆している。

### (b) ボトル分析との比較によるキャビティリングダウン式分光計の計測結果の検証

キャビティリングダウン式分光計によるメタン計測をさらに検証するため、水蒸気干渉の補正をかけた計測結果をボトルサンプルの分析結果と比較した。CRDSによって得られた結果をこのボトルサンプルの分析結果と比較するにあたり、ボトルサンプルの取得時間の前後4分（つまり合計9分間）の平均値を比較用データとして算出した。アジア航路で観測されたflask-CH<sub>4</sub>とCRDS-CH<sub>4</sub>の差分値を水蒸気濃度の関数として見ると、アジア、オセアニア航路の双方で水蒸気濃度が低い領域、すなわち除湿した試料の測定結果はゼロを中心とした分布を持っており、そのほとんどが $\pm 5$  ppbvの範囲に分布していた。これに対し、水蒸気濃度が高い領域(>3.0%)になると差分値の分布が明らかに正のバイアスを持って分布しており、実験から導出した水蒸気干渉の補正式が、水蒸気濃度が高い領域においてまだ干渉を過小評価していることを示していた。干渉補正式を導出するための実験は、水蒸気濃度が約3%以下でしか行われていないため、それ以上については外挿で補正量を算出しているが、この結果は水蒸気濃度が高くなる3%以上で干渉の効果がより大きく影響するようになることを示唆しており、再度実験を行って高い水蒸気条件下における干渉の大きさを見積もる必要があることが示唆された。また、水蒸気による測定干渉を軽減するため、

アジア航路・オセアニア航路の双方で試料大気の除湿を実施したところ、両者の一致が0.54  $\pm$  1.6 ppbvまで改善した（図25）。今後、水蒸

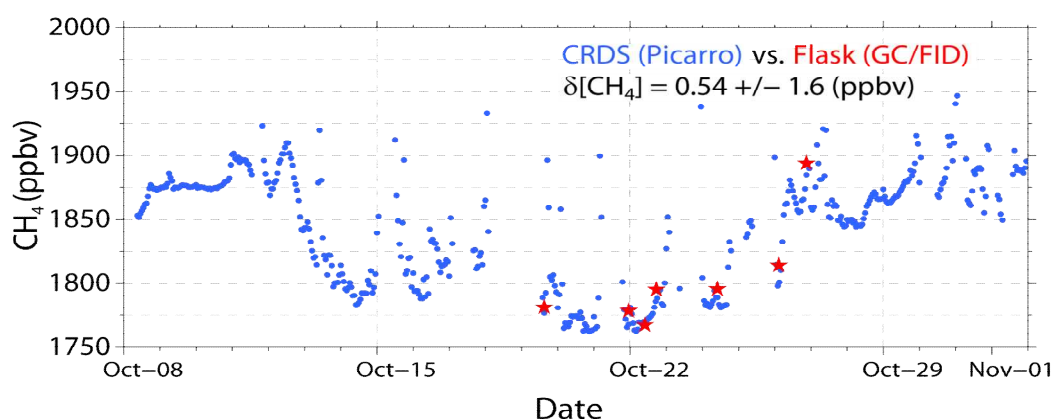


図25 キャビティリングダウン分光計（CRDS：点）とガスクロマトグラフ分析（GC/FID：星印）によるメタン濃度の比較

気干渉補正式を実験から導出することで除湿していないデータの補正を行い、確度の高いデータセットの構築を目指す。また、水蒸気影響をさらに調べていくことでメタン観測の品質保証/品質

管理を進める。

## ②メタン標準ガスの他研究機関との比較

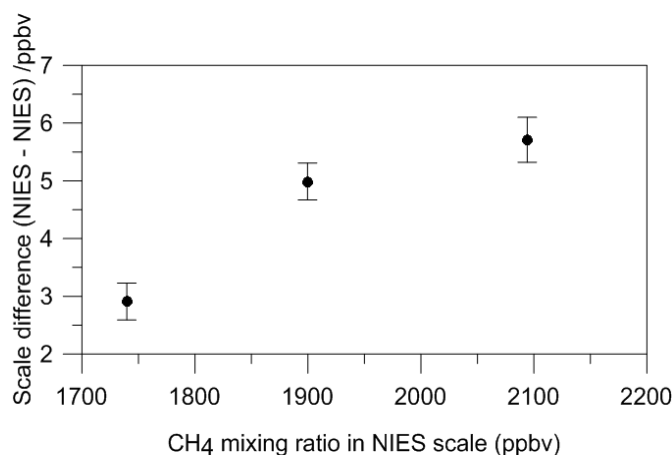


図 26 国立環境研究所とニュージーランド国立水圏大気研究所とで行われたメタン標準ガス相互比較実験の結果。バーは標準ガス測定の標準誤差を表す。

TF5による大気観測では船舶が清浄大気中を航行するため、メタンの観測を行うことで全球規模での平均的なメタン濃度の情報を得ることができる。一般に、大気中におけるメタンの季節変動や経年増加は数十ppbvのオーダーであり、観測されたメタン濃度の変動を議論するには各研究室間でのメタン標準ガス基準の統一、あるいは研究室間での基準間の互換が確保されている必要がある。そこで、TF5搭載のG1301を用いてメタンの標準ガス基準の比較をニュージー

ランド国立水圏大気研究所(National Institute for Water and Atmospheric research: NIWA)と比較を行った。実験はG1301にNIESおよびNIWAそれぞれの研究機関で検定されたメタンの標準ガスを導入することで行われた。図26にNIWAと行ったメタン標準ガス基準の相互比較実験の結果を示す。横軸は国立環境研究所(NIES)において検定されたメタン濃度を、縦軸は双方研究機関の標準ガス標準(NIES - NIWA)の差分を表す。NIESとNIWAとの間に有意なスケールの違いがあり、その違いは3つの濃度においてそれぞれ異なる大きさを持つことが明らかになった。NIWAは米国海洋大気局(National Oceanic and Atmospheric Administration: NOAA)の持つメタン標準ガス基準のNOAA-04を基準としてメタンの値付けを行っている。これに対してNIESは独自に設立した標準ガス標準を維持してきており、今までに行われたNIESとNOAAとの相互比較においてNIESのメタン標準ガス基準はNOAAの標準ガス基準に対して4 ppbvほど低くなるオフセットを持っていることが明らかになっている。従って、NIWAの標準ガス基準が厳密に維持・管理されているのであればNIESとNOAAの間で行われた結果と同じ結果が得られることが期待されるが、得られた結果は少なくとも上記3つの研究機関ごとに異なる標準ガス基準を所持していることを示唆しており、メタン標準ガススケールの統一が必要であることを示している。

### (c) 水蒸気による希釈・圧力広がり効果のさらなる検討

加湿ユニットを用いて3台のWS-CRDSモデル(EnviroSence 3000i, G-1301, G-2301)の水蒸気による希釈・圧力広がり効果の補正式を求めた。加湿ユニットでは濃度既知のCO<sub>2</sub>およびCH<sub>4</sub>を含む圧縮大気(圧力広がり効果の推定で用いたものと同じのもの)を露点発生器(model LI-610, Li-Cor, Inc., Lincoln, NE, USA)に通じることで水蒸気濃度を調整することが可能である。加湿ユニットで調湿した試料大気は鏡面露点計(model DPH-503H, Tokyo OPTO-ELECTRONICS CO. LTD.)を經由

して WS-CRDS へと導入される。試料大気中の  $\text{CO}_2$  と  $\text{CH}_4$  の濃度は計測データが安定してから 5 分間の平均値として求めた。

露点発生器では装置内に組み込まれたウォータープールへ試料大気を通じるが、ウォータープールの水温に依存して  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  の溶解度が変化する。 $\text{CH}_4$  の溶解度は非常に小さいためにこの影響は極めて小さいが、溶解度の高い  $\text{CO}_2$  は有意な影響を受けてしまう (Chen et al. 2010)。このため、除湿した試料大気を WS-CRDS に導入する前後に調湿した試料大気を再度除湿して導入し、溶解度の変化によるドリフトを補正した。試料大気の除湿は電子除湿器 (Thermoelectric dehumidifier, DH-109, Komatsu Electronics Inc., Kanagawa, Japan) および過塩素酸マグネシウム (20/48 mesh, Wako Pure Chemical Industries, Osaka, Japan) を充填したケミカルトラップから成る 2 段階除湿ユニットを用いて行った。このユニットでは試料大気の露点を  $-50^\circ\text{C}$  以下に下げる除湿能を

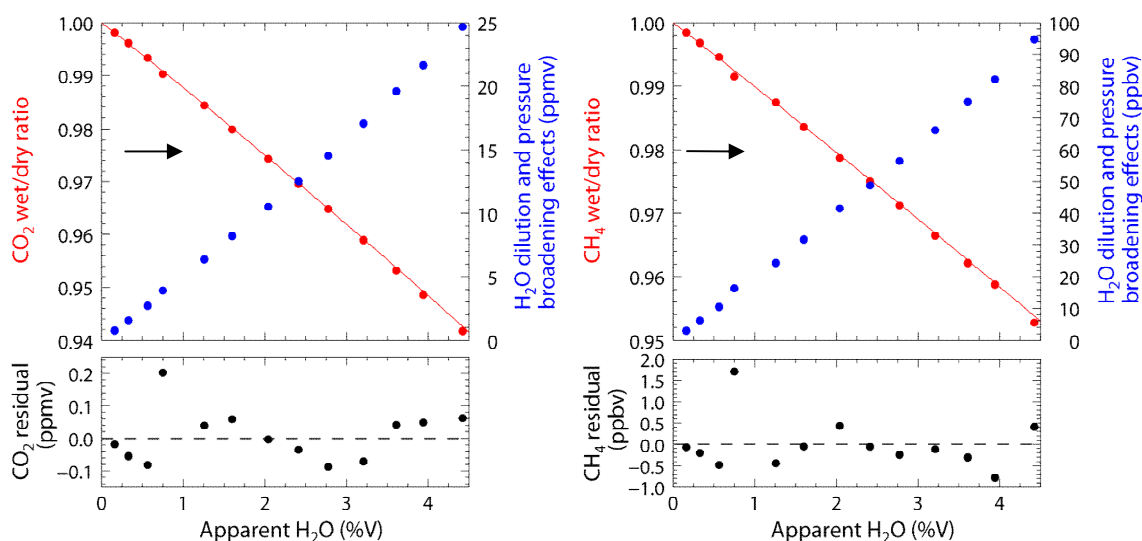


図 27 水蒸気濃度 (WS-CRDS 出力値) と希釈・圧力広がり効果、及びフィッティング残渣の関係 (左:  $\text{CO}_2$ 、右:  $\text{CH}_4$ )。希釈・圧力広がり効果は wet/dry 比 (Y 軸) と混合比換算 (第 2Y 軸) で示した。

有する。

本実験では船舶観測で予想される水蒸気濃度をカバーできるように水蒸気濃度を WS-CRDS の出力値で  $0.16 \sim 4.42\%V$  で調湿した。一例として WS-CRDS (モデル G-1301) に対して得られた水蒸気濃度 (WS-CRDS 出力値) と除湿した試料大気中の  $\text{CO}_2$  計測濃度に対する調湿した試料大気中の  $\text{CO}_2$  計測濃度の比 (wet/dry)、および観測された希釈・圧力広がり効果の関係を図 27 に示す。水蒸気濃度の増加に伴い  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  共に大きな希釈・圧力広がり効果の変化を示した。例えば、水蒸気濃度が  $4.42\%V$  の時、wet/dry 比は  $\text{CO}_2$  で  $0.94$ 、 $\text{CH}_4$  で  $0.95$  にまで減少しており、それぞれ  $25 \text{ ppmv}$ 、 $\text{CH}_4$  で  $95 \text{ ppbv}$  の減少に相当する効果がみられた。水蒸気の濃度は水蒸気分子間での衝突によって生じるスペクトルの自己広がりにより WS-CRDS は高濃度になるほど非線形対応を示す。このため、水蒸気に対する  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  の希釈・圧力広がり大きさ (wet/dry) の関係は 2 次曲線で表される (Chen et al. 2010)。

$$\frac{X_{\text{wet}}}{X_{\text{dry}}} = 1 - a \cdot H_2O_{\text{CRDS}} - b \cdot H_2O_{\text{CRDS}}^2$$

Group	Instrument model	CO <sub>2</sub> – linear (10 <sup>-2</sup> ) / quadratic (10 <sup>-4</sup> ) terms	CH <sub>4</sub> – linear (10 <sup>-2</sup> ) / quadratic (10 <sup>-4</sup> ) terms	Water vapor range (%V)
Chen et al., 2010	G-1301	-1.20 / -2.67	-0.98 / -2.39	0.6 – 6
Winderlich et al., 2010	EnviroSense 3000i	-1.205 ± 0.002 / -2.03 ± 0.08	-1.007 ± 0.005 / -1.45 ± 0.18	0 – 4
This study	EnviroSense 3000i	-1.207 ± 0.004 / -2.4 ± 0.1	-0.999 ± 0.007 / -2.1 ± 0.2	0.15 – 4.45
	G-1301	-1.212 ± 0.007 / -2.3 ± 0.2	-1.002 ± 0.013 / -1.4 ± 0.4	
	G-2301	-1.216 ± 0.009 / -1.6 ± 0.3	-0.968 ± 0.008 / -2.3 ± 0.2	

表 1 本実験で得られた水蒸気補正式

ここで、 $X_{wet}/X_{dry}$  は調湿、除湿試料大気中の CO<sub>2</sub> あるいは CH<sub>4</sub> の CRDS による計測値、 $H_2O_{CRDS}$  は WS-CRDS による水蒸気の計測値を表す。3つの WS-CRDS モデルそれぞれに対して 2 次曲線フィッティングで求めた 1 次、2 次の項の係数(それぞれ a、b)を過去の研究報告例とともに表 1 にまとめる。例に示した G-1301 モデルの 2 次フィッティングによる残差は水蒸気濃度 0.75%V で外れ値がみられるものの CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> それぞれ ±0.8 ppmv、±0.8 ppbv の範囲内に分布しており、決定係数もすべての装置で 0.999 以上の値が得られた。各装置の水蒸気の計測結果を鏡面露点計により校正し、同じ水蒸気のキャリブレーションスケールにおいて 3 台の WS-CRDS の wet/dry 比と校正した水蒸気濃度の関係式を比較した(図 28)。各装置の CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub> それぞれに対する水蒸気補正值は水蒸気濃度に依存して測定精度を超えて有意に異なる補正值を示した。しかしながら、これら補正值の多くは実験誤差の範囲内であり、各モデル間での補正值の違いについては評価できなかった。この一方で水蒸気濃度が低い時には各補正式に有意な違いが見られなかった。例えば、モデル G-1301 の場合、CO<sub>2</sub> は補正值の差分値が水蒸気濃度 0.3%V 以下で、CH<sub>4</sub> については水蒸気濃度 1.2%V 以下で WS-CRDS の典型的な測定精度(CO<sub>2</sub> に対して ±

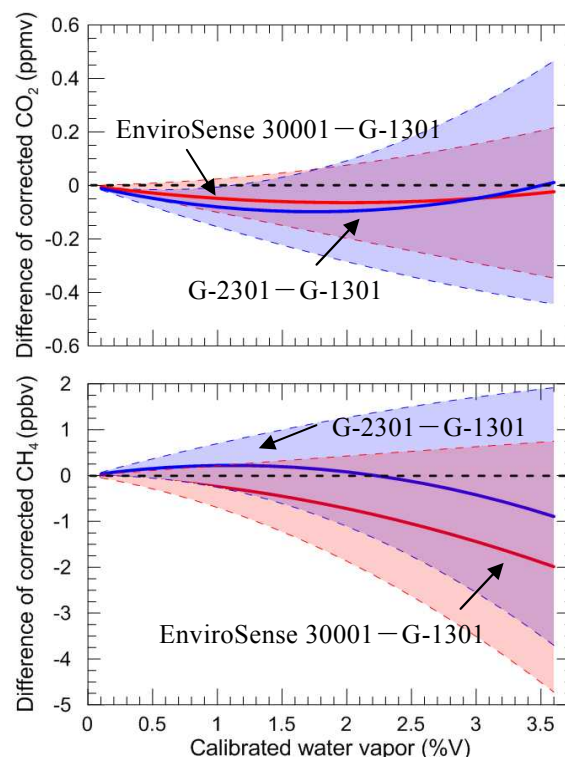


図 28 3つの WS-CRDS モデル間での水蒸気補正值の差分と鏡面露点計で校正した水蒸気濃度の関係(上: CO<sub>2</sub>、下: CH<sub>4</sub>)。赤線は EnviroSense 3000i と G-1301 の差分値を、青線は G-2301 と G-1301 の差分値を示す。青、赤の破線は差分値の誤差の上限と下限(±1σ)の範囲を示している。

0.03 ppmv、CH<sub>4</sub>に対しては±0.3 ppbv)の範囲内となった。この結果は水蒸気濃度が低い時には装置モデルに関係なく同様の補正值を与えることを示唆している。

Chen et al. (2010)では同じ水蒸気のキャリブレーションスケールの下では WS-CRDS 間(model G-1301)で水蒸気補正式に互換性があることを報告している。しかしながら、水蒸気濃度の計測を較正するための国際標準物質が存在していないため、各研究室間で同じ水蒸気のキャリブレーションスケールで観測を行うことが困難である。また、本実験で示されたように、水蒸気補正式を求める際には実験誤差も生じることが予想される。これらのことから、より正確な CO<sub>2</sub> と CH<sub>4</sub> の計測を行うためには試料大気の完全除湿を行うか、あるいは機種間での補正值の差が無視できるような水蒸気レベルにまで除湿して水蒸気補正を行うことが最も確実な方法の一つと言える。

#### (6) 反射型光散乱検出方式によるブラックカーボンの連続測定

2008年10月のシンガポール出港後 (FTW95) から、ブラックカーボン (Optical Black Carbon: OBC) の質量濃度観測を開始した。一例としてFTW95において得られた時系変化を図29に示す。OBCは船舶が陸域に近づく入出港時あるいは停泊時に陸上発生源の影響を受けて高い質量濃度を示すが、外洋域では低い質量濃度を示した。これは、OBCなど粒子状物質の主要発生源が陸上にあり、発生源からの

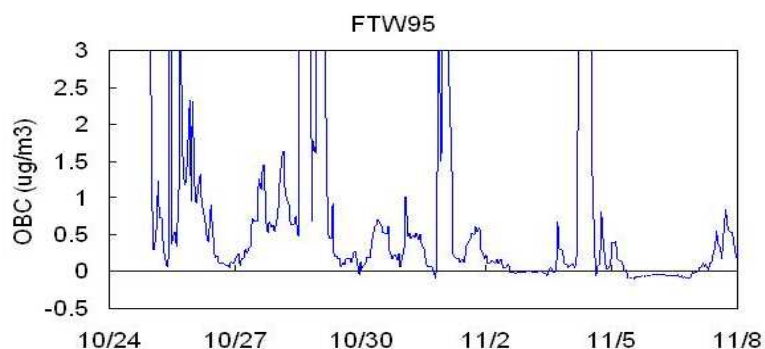


図 29 観測開始時の東南アジア航路 (FTW95) におけるブラックカーボンの濃度変動

距離を反映した結果であると考えられる。FTW95と、続くFTW96ではOBCの質量濃度が負の値を示す現象が観測された。図30に、FTW95においてOBCが負の値を示した時の航路上の地点を示した。また、このイベント期間に得られたPM2.5とOBCのアナログシグナルデータの時系列変化を

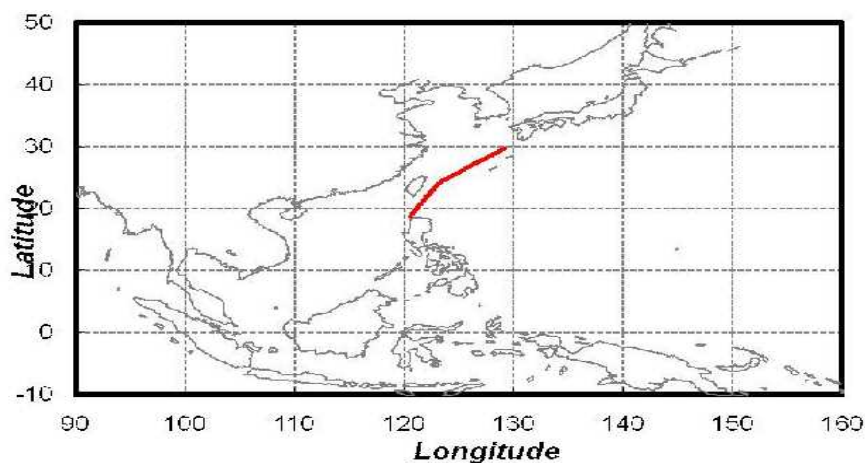


図 30 ブラックカーボン測定に負の値が観測された領域

図31に示す。このイベントはフィリピン海(2008年11月5日 UTC 8:00から 11月7日 0:00)で観測されている。アナログシグナルデータは一時間積算値であり、装置の原理上、データは加算的な挙動を示すべきであるが、積算値が減少する“負の挙動”を示していることがわかる。この負のデータの期間は長期に渡って起こっており (約

1.5日間)、OBCの減少が見られる際にはPM2.5の増加が見られる。従って、PM2.5は蓄積されているが、OBCはゼロ点を超えて減少を示すという矛盾が起こっていることになる。OBCの測定原理を考えると、ゼロ点を超えてさらに負の値を示すためには、少なくとも測定対象スポットの状態がゼロ点を決定しているフィルターの赤外光の反射率よりも高い値にならないといけない。この挙動を引き起こす原因として考えられるのが海塩粒子による光散乱である。海塩は境界層下の海洋性大気では至るところに存在

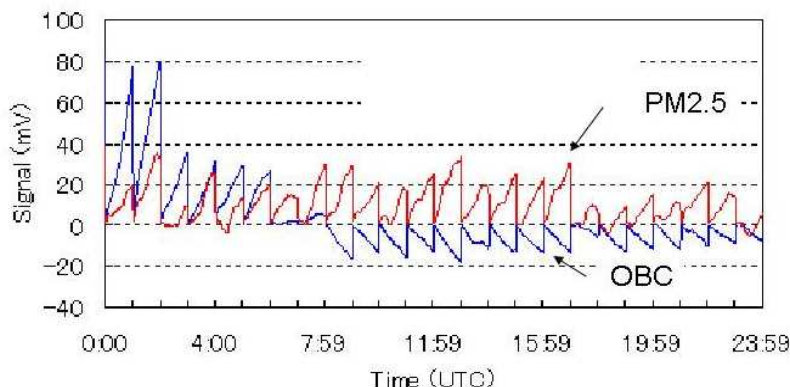


図 31 ブラックカーボン測定に負の値が観測された領域における PM2.5 と OBC の時系列変化

しており、広い粒径分布を示す。海塩粒子がフィルター上に捕集されるとPM2.5として検出されるが、OBCの測定に対しては赤外光を散乱するので、OBCは見かけ上減って行くことになる。図32に、フィリピン海でOBCが負の質量濃度を示した地点でのGDAS (Global Data Assimilation System)のデータを用いたバックワードトラジェクトリーの結果の一例 (2008年11月5日 UTC 8:00、地点：18.74° N、120° E) を示す。トラジェクトリー解析の結果から、観測時のフィリピン海では太平洋からの清浄な空気が流れ込んでいたと推定される。よって、この結果はイベント時に採取した試料大気は典型的な海洋性大気質であったと考えられる。また、計測装置に海塩が析出していることも確認されており、これらの結果は上記の海塩粒子による光散乱の影響の可能性を支持している。このため、FTW97からは海塩粒子によるOBC測定阻害の影響を改善するためにOBCの検出方式を前方散乱光検出型から後方散乱光検出型に切り替えた。これにより、FTW97の観測結果からはOBCが負の値を示すことは見られなくなり、海塩粒子の影響を改善することに成功した。

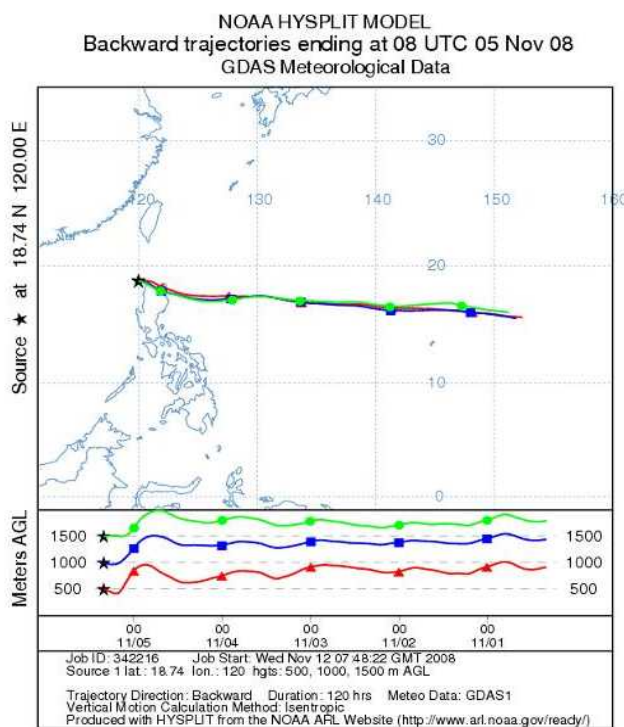


図 32 ブラックカーボン測定に負の値が観測された領域におけるバックトラジェクトリー

FTW100の例を図33に示す。OBCを光学的に計測する装置を船舶に搭載して観測するのは本観測が初の試みであり、観測ではまだ十分なデータが得られていない。夏季には観測航路は清浄なインド洋からの空気が

FTW100の例を図33に示す。OBCを光学的に計測する装置を船舶に搭載して観測するのは本観測が初の試みであり、観測ではまだ十分なデータが得られていない。夏季には観測航路は清浄なインド洋からの空気が



流れ込むと考えられることから、今までに得られた冬季のデータとは異なったプロファイルを示すことが予想される。今後は夏季の観測データを蓄積することで東南アジア域におけるブラックカーボンのクライマトロジーが明らかになることが期待される。

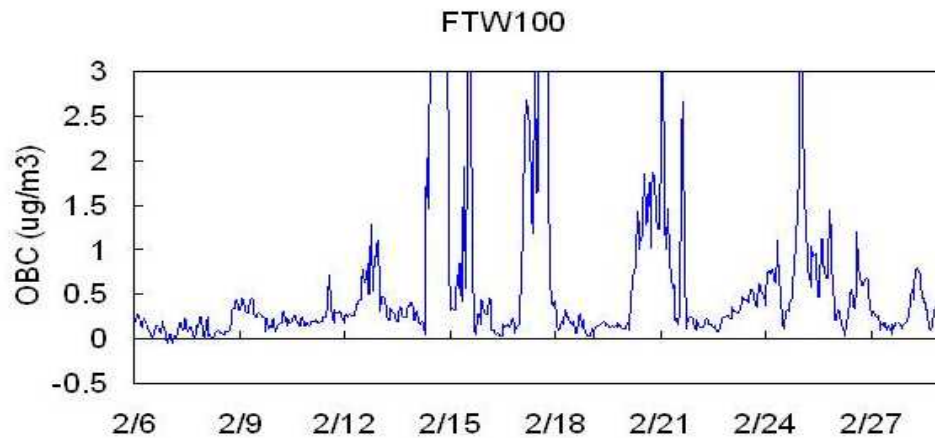


図 33 東南アジア航路 (FTW100) におけるブラックカーボンの濃度変動

## 5. 本研究により得られた成果

太平洋上のバックグラウンド大気中のメタンには、2007年の後半から2008年にかけて、1998年のエルニーニョ年以來となる大きな濃度の増加がみられた。また、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かなり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示唆された。今後、観測を継続することで、メタンと亜酸化窒素の相関解析などから発生源の同定が可能になると期待される。また、カーエアコンの冷媒として使用量が急増しているHFC-134aについて、東南アジア域が中国に匹敵あるいはそれらを上回る大きな発生源になっている可能性が示唆された。対流圏オゾンについては、東南アジアの熱帯域においてバックグラウンド大気濃度を大きく越えるオゾン濃度が観測され、この地域でオゾン生成が活発に起こっていることが示唆された。一酸化炭素については、インドネシアの泥炭燃焼による大規模放出が検出され、その長距離輸送の様子が衛星データや気象データと併せて明らかにされた。本観測データの解析から、現在の化学輸送モデルに最も使用されているバイオマスバーニングの排出インベントリの排出係数が過小評価されていることを指摘した。

ハードウェア面では、ボトルサンプリング装置ならびに連続測定装置はともに、過酷な船舶環境でも長期にわたって比較的安定に使用できた。一酸化炭素については、長期にわたる高精度な計測を可能にする、連続測定とボトル分析によるQA/QC体制が確立できた。東南アジア域からの温室効果気体の排出状況をより良く推定するためには今後、メタンやブラックカーボン、二酸化炭素など、多成分を包括的に連続測定する計測機器の搭載が必要である。キャビティリングダウン式分光計によるメタンの連続測定や、反射型光散乱検出方式によるブラックカーボンの連続測定については実用化に向けた進歩が見られ、今後、船舶における連続モニタリングでの運用が期待される。

## 6. 引用文献

- ① M. O. Andreae, and P. Merlet, Emissions of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochem. Cycles* 2001, 15, 955, doi:10.1029/2000GB001382.
- ② H. Chen, Winderlich, J., Gerbig, C., Hofer, A., Rella, C. W., Crosson, E. R., Van Pelt, A. D., Steinbach, J., Kolle, O., Beck, V., Daube, B. C., Gottlieb, E. W., Chow, V. Y., Santoni, G. W., Wofsy, S. C.: High-accuracy continuous airborne measurements of greenhouse gases (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>) using the cavity ring-down spectroscopy (CRDS) technique, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 375-386, 2010.
- ③ J. Winderlich, Chen, H., Gerbig, C., Seifert, T., Kolle, O., Lavri?, J. V., Kaiser, C., Hofer, A., Heimann, M.: Continuous low-maintenance CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O measurements at the Zotino Tall Tower Observatory (ZOTTO) in Central Siberia, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 1113-1128, doi:10.5194/amt-3-1113-2010, 2010

## [研究成果の発表状況]

## (1) 誌上発表 (学術誌)

- ① H. Nara, H. Tanimoto, Y. Nojiri, H. Mukai, J. Zeng, Y. Tohjima, T. Machida: *Environ. Chem.*, 8, 213-223, doi:10.1071/EN10113, 2011.  
 “CO emissions from biomass burning in Southeast Asia in the 2006 El Niño year: Shipboard and AIRS satellite observations”
- ② Y. Terao, H. Mukai, Y. Nojiri, T. Machida, Y. Tohjima., T. Saeki, S. Maksyutov: *J. Geophys. Res.*, 116, D14303, doi:10.1029/2010JD015467, 2011.  
 “Interannual variability and trends in atmospheric methane over the western Pacific from 1994 to 2010”
- ③ 谷本浩志, 橋本茂, 向井人史: 地球化学, 大気環境学会誌, 44(4), 222-226 (2009).  
 「大気レベルのオゾン標準に関する日本における進展と世界の動向」
- ④ H. Tanimoto, Y. Tohjima, H. Mukai, H. Nara, S. Hashimoto: *Geochem. J. (Express Letters)*, 43, e23-e29, 2009.  
 “Anomalous geographical gap in carbon monoxide mixing ratios over Hokkaido (Japan) in summer 2004”
- ⑤ H. Tanimoto, T. Ohara, I. Uno: *Geophys. Res. Lett.*, 36, L23802, doi:10.1029/2009GL041382 (2009).  
 “Asian anthropogenic emissions and decadal trends in springtime tropospheric ozone over Japan: 1998–2007”
- ⑥ 谷本浩志: 地球化学, 印刷中 (2009)  
 「対流圏における光化学オゾンとその支配要因に関する地球化学的研究」
- ⑦ H. Nara, H. Tanimoto, Y. Nojiri, H. Mukai, T. Machida, Y. Tohjima: *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 2495-2507, 2011.  
 “Onboard measurement system of atmospheric carbon monoxide in the Pacific by voluntary observing ships”

## (2) 口頭発表

- ① H. Nara, H. Tanimoto, Y. Nojiri, H. Mukai, J. Zeng, Y. Tohjima and T. Machida: 第16回大気化学討論会 (2010)  
 「Biomass burning emissions of CO from Southeast Asia in 2006 El Niño year: Views from cargo-ship and AIRS satellite observations」
- ② 谷本浩志: 2010年度地球化学会年会 (2010)  
 「衛星観測を用いたアジアにおける大気化学研究」
- ③ 奈良英樹, 野尻幸宏, 谷本浩志, 向井人史, 町田敏暢, 遠嶋康徳: 2009年度地球化学会年会 (2009)  
 「定期貨物船を用いた太平洋上の大気中における一酸化炭素のモニタリング」
- ④ 奈良英樹, 野尻幸宏, 谷本浩志, 向井人史, 遠嶋康徳, 町田敏暢: 2008年度地球化学会年会 (2008)

「定期貨物商船を用いた西部太平洋洋上大気中一酸化炭素の連続観測」

- ⑤ 奈良英樹, 野尻幸宏, 谷本浩志, 向井人史, 町田敏暢, 遠嶋康徳: 日本地球惑星科学連合  
2009年大会 (2009)

「定期貨物船を用いた太平洋上の大気中における一酸化炭素のモニタリング」

- ⑥ H. Tanimoto: Fourth Japan-China-Korea Joint Conference on Meteorology (2009)

「Observed and modeled decadal changes in springtime tropospheric ozone over Japan, 1998–2007」

- ⑦ 寺尾有希夫, 向井人史, 野尻幸宏, 遠嶋康徳, 町田敏暢, 須永温子: 日本地球惑星科学連合  
2009年大会 (2009)

「西太平洋における大気メタン濃度のトレンドと年々変動: 近年の再増加の緯度による違い」

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

ここが知りたい温暖化「二酸化炭素以外の温室効果ガス削減の効果」、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

(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、宇宙開発研究機構・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持つ。これは、GEO (Group on Earth Observation) の気候変動分野における早期成果の一つとして、2007年11月の地球観測サミットの付属報告書に紹介された。メタン、亜酸化窒素、HFC等の温室効果ガスインベントリ整備は今後途上国にも拡大する必要がある。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。