## 相模湾上空における大気中二酸化炭素濃度の航空機観測\*

町 田 敏 暢\*<sup>1</sup>, 矢 澤 健 司\*<sup>2</sup>, 田 頭 剛\*<sup>3</sup> 井 上 元\*<sup>1</sup>, 田 丸 卓\*<sup>3</sup>

# Airborne Observation of Atmospheric Carbon Dioxide over Sagami-Bay, Japan\*

Toshinobu MACHIDA \* 1, Kenji YAZAWA \* 2, Takeshi TAGASHIRA \* 3

Gen INOUE \* 1 and Takashi TAMARU \* 3

## ABSTRACT

In order to ascertain temporal and spatial variations in atmospheric carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) levels near the Tokyo metropolitan area, air samples have been collected by airplane since December 1996, over Sagami-Bay (35.0-35.1°N, 139.2-139.4°E) in Japan. Sampling was carried out monthly from December 1996 to May 1997 and twice a month from June 1997 to December 1999, at eight altitudes from 0.5km to 7km. The CO<sub>2</sub> concentration in these samples shows clear seasonal variation and secular increase. In the seasonal variations, larger amplitude and earlier phase were observed at lower altitudes. Annual average of CO<sub>2</sub> concentration is higher at lower altitudes, suggesting that the ground surface around the observed area acts as a source of atmospheric CO<sub>2</sub>. Extremely high CO<sub>2</sub> concentrations accompanied by high concentrations of CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CO and H<sub>2</sub> were observed several times at lower altitudes, implying that anthropogenic air from the Tokyo metropolitan area often reaches to Sagami-Bay.

Keywords :carbon dioxide, airborne observation, carbon cycle, air pollution

## 概 要

燃焼主要生成物であり社会的にも問題視されている温度効果ガスの二酸化炭素について,3年間にわたり相模湾で高度7kmまでの鉛直分布を観測した結果について報告する。航技研機を用いて1996年12月から1999年12月までほぼ月2回のペースで大気採取を行い,採取大気を国立環境研究所において分析した。ここでは高度および季節による変動などを解析した結果について報告する。

## 1.序 論

大気中の二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) 濃度は18世紀にヨーロッ パで起こった産業革命を契機として人類が化石燃料を本 格的に使用を始める以前には約280ppmv でほぼ一定で あったが,以降は増加の一途をたどり(例えば, Etheridge et al., 1996), 1993 年には全球平均で約 357ppmvにまで達している (Conway et al., 1994)。化石 燃料の燃焼によって放出されたCO<sub>2</sub>は全てが大気中に残 留しているわけではなく,放出量の約半分は海洋や陸上

<sup>\*</sup> 平成 12 年 6 月 15 日受付 (received 15 June 2000)

<sup>\*1</sup> 国立環境研究所 (National Institute for Environmental Studies)

<sup>\*&</sup>lt;sup>2</sup> 飛行研究部 (Flight Division)

<sup>\*&</sup>lt;sup>3</sup> 航空エンジン研究部 (Aeroengine Division)

生態系に吸収されている。これら海洋や陸上生態系によ るCO<sub>2</sub>の吸収量は毎年一定ではなく,数年規模で大きく 変動していることが最近の研究で明らかになっているが (Keeling et al., 1995; Francy et al., 1995; Lee et al., 1998), 吸収量の年毎の変動量はこれらの結果を導き出した研究 者の間で大きく異なっており,どれも定説にはなり得て いない。地球表層の炭素循環は上記のように未解明の部 分が多く,将来起こりうるであろう気候変動を予測する ための大きな障害になっている。

炭素循環を解明するためにはいくつかのアプローチが ある。大気中のCO2濃度の時間変動や空間変動の詳細な 観測を基に大気輸送モデルを使ってCO2の放出源・吸収 源の強度分布を予測する方法は最も有効な手段の一つで ある。このような目的から、米国 National Oceanic and Atmospheric Administration/Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory (NOAA/CMDL)のフラスコサ ンプリングネットワーク (Conway et al., 1994) に代表さ れるような地上定点や船舶の定期航路を使ったCO2濃度 の観測が世界各地で行われている(例えば, Francy et al., 1995, Keeling et al., 1995, Nakazawa et al., 1997). CO2濃度の系統的観測のほとんどがこのような地表にお ける観測点で行われている一方で,大気を3次元的に取 り扱うモデルの制約条件として必要なCO2濃度の鉛直分 布の観測は地表での観測に比べて圧倒的に少ないのが現 状である。地表におけるCO2濃度の観測地点は,例えば NOAA/CMDLのフラスコサンプリングネットワークだ けでも世界に50点以上存在するのに対して, 航空機を使 って地表から離れた地点で行われている定期観測はオー ストラリアCommonwealth Scientific and Industrial Research Organization (CSIRO) によるタスマニア・Cape Grim 上空 (Francy et al., 1999), NOAA/CMDLによる コロラド上空,東北大学による日本上空 (Nakazawa et al., 1993), 国立極地研究所・東北大学による南極昭和基 地上空 (Murayama et al., 1995), 気象研究所による東京 -シドニー間 (Matsueda and Inoue, 1994),国立環境研 究所によるシベリア上空 (Machida et al., 2000) と数え る程でしかない。

本研究では相模湾上空における大気中 CO2 濃度の時 間・空間分布を明らかにするために航空宇宙技術研究所 所有のドルニエ機とクイーンエア機を用いて高度 0.5-7 kmにおいて大気試料の定期サンプリングを1996年12月 より開始した。相模湾上空の観測は東北大学による日本 上空(仙台-福岡間および仙台沖)の観測と比較的近い 位置で行われているが,東北大学の観測が上層から下層 まで人間活動の影響をほとんど受けないバックグラウン ド大気を対象にしているのに対して,本研究では低高度 での人間活動の影響を強く受けた大気から高高度のバッ クグラウンドに近い大気までを観測対象としている。

相模湾上空の微量気体の定期観測については田丸ら (2000)が観測の概要と初期的なデータを記している。本 稿では航空機で採取された大気試料のCO2濃度の分析方 法について詳しく記すと共に,1996年12月から1999年 12月にかけての3年間に得られたCO2濃度の観測結果を 示し,長期間のデータの蓄積によって明らかになった CO2濃度の経年変動や平均的な季節変動の解析結果を通 して,この間のCO2の放出源・吸収源の挙動や大気の構 造について考察する。

#### 2. 観測方法

本研究では相模湾上空において大気をサンプリング し、実験室で試料中のCO2濃度を分析する観測方法を採 用した。大気のサンプリング方法については田丸ら (2000)に詳しい記述があるので,ここでは概略のみを記 す。観測に使用した航空機は航空宇宙技術研究所所有の ドルニエ機及びクイーンエア機で、機体頂部に空気取入 口を取り付けてダイアフラムポンプで大気を吸引しパイ レックスガラス製のサンプリングフラスコに0.2MPaの 圧力で加圧採取する。空気採取地点は相模湾 (35.0-35.1°N, 139.2-139.4°E) 上空の高度 0.5, 1, 1.5, 2, 3, 4, 5.5, 7kmの8点である。0.5-2kmの低高度では気圧が高くポ ンプの流量が十分確保できるので、それぞれの高度で2 本のフラスコに, 3-7 kmの高高度では気圧が低くポンプ の流量が小さくなるので、それぞれの高度で1本のフラ スコにサンプリングを行った。観測頻度は1996年12月 から1997年5月までは月に1回であったが、1997年6月 以降は月に2回とした。

サンプリングされた大気試料は国立環境研究所におい てCO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CO, H<sub>2</sub>の各濃度とCO<sub>2</sub>の安定同 位体比の分析がなされる。図1はCO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CO, H2濃度の分析ラインの概念図である。分析ラインは試料 導入系, CO・H2分析用ガスクロマトグラフ, CH4分析 用ガスクロマトグラフ, N2O分析用ガスクロマトグラ フ, CO<sub>2</sub>分析用の非分散型赤外分析計 (NDIR),標準ガ スより構成されている。NDIRはLI-COR社製のタイプ LI-6252を使用している。分析ラインの配管は1段目の 水蒸気トラップを除いて全て金属製で,ほとんどの部分 にステンレスを,一部に銅と真鍮を用いている。分析手 順は以下の通りである。サンプリングフラスコを試料導 入系に接続し、ロータリーポンプにより1×10-2Pa以下 まで配管を真空引きした後に大気試料を導入する。大気 試料は1段目の低温トラップによって水蒸気が除去され る。水蒸気トラップは外径1/4インチのパイレックスガ ラス製で、トラップ効率を向上させるために内部に直径 1mmのガラス管が多数入っており、エタノール冷媒を



図1 微量気体分析ラインの概念図

用いたドライアイスによって約-80℃に冷却されてい る。圧力計により試料のサンプリング圧が十分に高いこ とを確認した後にマスフローコントローラによって流量 を制御しながら分析計に試料を導入する。マスフローコ ントローラの流量は40cm3/min.に設定し、4分間だけ試 料を導入するので1回の分析あたり160cm<sup>3</sup>STPの試料を 使用することになる。マスフローコントローラの後段に 位置する2段目の水蒸気トラップは1/8インチの銅管で 1段目の水蒸気トラップと同じエタノールバスに浸って いる。2段目の水蒸気トラップで最終的な除湿がなされ た試料空気はCO・H2分析用ガスクロマトグラフの計量 管, CH4分析用ガスクロマトグラフの計量管, N2O分析 用ガスクロマトグラフの計量管を通ってNDIRのサンプ ルセルへと導かれる。NDIRは分析ラインの最後段に位 置するので、NDIRのサンプルセルが試料空気で置換で きたことが確認されれば、各ガスクロマトグラフの計量 管も試料で置換されていることが保証される。試料導入 が終了すると2ポジションバルブが切り替わり各計量管 とNDIRのサンプルセルを大気圧解放することによって それまで配管内部にあった圧力勾配がすばやく解消され る。計量管やサンプルセル内の圧力が大気と十分に平衡 に達した後にガスクロマトグラフは分析を始め,NDIR はデータ取得を開始する。NDIRのリファレンスセルに は濃度既知のCO2標準ガスを一定流量で流し続ける。サ ンプルセル中のCO2濃度はリファレンスセルとの差を検 出することによって,分解能の高い分析が可能となって いる。

1つのサンプリングフラスコからは通常このような分 析を3回行って結果の平均値を最終的な分析値とする。 CO2濃度の3回の分析値の標準偏差は平均で0.02ppmv 以下である。試料空気の分析の前後には4本ある標準ガ スの分析を同様な手順で行い,標準ガスの濃度に対して 試料空気の濃度を決定している。標準ガスはCO2, CH4, N2O, CO, H2と純空気の混合ガスで, CO2の濃度はそ れぞれ350.03, 355.44, 371.03, 376.96ppmvである。CO2 以外の成分も大気中濃度の変動幅を含む濃度範囲で混合 されている。NDIRの出力と標準ガスのCO2濃度との関 係は通常は2次関数を使って近似している。近似した2 次関数と標準ガスの濃度との差は0.02ppmv以下である。 試料空気の濃度が標準ガスの範囲外になった場合には,



図2 本研究で用いた CO<sub>2</sub> 濃度時系列データのフィッティング手順。図は相模湾上空 7km で得られた CO<sub>2</sub> 濃度データの例。 a が観測で得られた時系列データを, b-hがフィッティングの過程を, iが最終的に得られたフィッティングカーブを表す。

2次関数を使用すると近似式と実際の濃度との差が拡大 する恐れがあるので、1次関数で直線近似をしている。 近似した1次関数と標準ガスの濃度との差は標準ガスの 濃度範囲内では0.05ppmv以下である。

これら4本の標準ガスは作業用標準ガスと呼ばれ,圧 力混合法で製造されている。作業用標準ガスの濃度は, 精密天秤を利用して重量法充填された一次標準ガスによ って値付けがなされる。本研究に使用した作業用標準ガ スは国立環境研究所が1995年に導入した CO<sub>2</sub>一次標準 ガスの濃度スケール(NIES95スケール)によって値付 けされている。NIES95スケールは1996年に行われた研 究機関間の相互検定により,NOAA/CMDLが採用して いる CO<sub>2</sub> 濃度のスケールとの差が,342.7ppmv から 372.0ppmv の範囲では,0.12ppmv 以下であることが確 かめられている。

## 3. データ解析

大気中CO2濃度の時間変化は季節変動と経年変動が重 なったものと考えることが出来る。本研究ではCO2濃度 時系列データのフィッティングに調和関数と Reinch タ イプのスプライン関数を使って季節変動と経年変動を表 現した。解析手順の概要を以下に記す。例として相模湾 上空7kmで得られたCO2濃度データのフィッティング 手順を図2に示した。最初に、観測で得られた時系列デ ータ(図2a)を1年及び半年周期の調和関数と1次直線 を使って最小二乗法で近似し,おおよその季節変動成分 を推定する(図2b)。次に得られた調和関数を観測値か ら差し引き(図2c),残差をカットオフ周期2年のReinch タイプのスプライン関数でフィッティングして経年変動 成分を推定する(図2d)。先に導出した季節変動成分は 経年変動成分の影響を正しく差し引いていないので, こ こで元の観測値からスプライン関数を差し引き(図2e), 残差を調和関数で最小二乗近似することにより,より確 かな季節変動成分を推定する(図2f)。さらに得られた調 和関数を再び元の観測値から差し引き,残差をスプライ ン関数でフィッティングしてより確かな経年変動成分を 推定する。このような作業は3~4回の繰り返しで収束 する。最後に最終的に得られた調和関数とスプライン関 数を観測値から差し引き(図2g),残差をカットオフ周 期 150 日の Reinch タイプのスプライン関数でフィッテ ィングして季節変動の不規則成分を推定する(図2h)。こ のようにして得られた調和関数,カットオフ周期2年の Reinchタイプのスプライン関数及びカットオフ周期150 日のReinchタイプのスプライン関数の和をCO2濃度時 系列データのフィッティングカーブとしている (図2i)。

本研究のように時系列解析に調和関数やスプライン関 数を使う前提として,観測値は連続に変化し,時間的に 急な変動はないという仮定が存在する。従ってフィッテ ィングカーブからの差が著しく大きいデータは極めて局 地的または一時的な値であり,観測空域の平均的な特徴 を表現する目的には適さない。本研究ではフィッティン グカーブからの偏差が標準偏差の4倍以上の観測値を時 系列データから除外した。

## 4. 結果と考察

相模湾上空で観測された CO<sub>2</sub> 濃度の鉛直分布のうち 1998年5月から1998年9月までの期間と1998年10月 から1999年4月までの期間の代表的な例を示したものが 図3のa, bである。相模湾上空では高度0.5kmにおい て非常に高い濃度の CO<sub>2</sub>が頻繁に観測されている。ま た,高度1kmや1.5kmでもしばしば高濃度が観測され るが,2km以上では濃度は鉛直方向に比較的均一であ る。低高度において高いCO<sub>2</sub>濃度が観測される原因は観 測空域が首都圏の人口密集地に近いので,人為汚染を受 けた大気をサンプリングしたためであると考えられる。 このようなCO<sub>2</sub>濃度の高いサンプルでは同時に分析され た CH<sub>4</sub>,N<sub>2</sub>O,CO,H<sub>2</sub>の各濃度も高くなっている。こ れらの微量気体も自動車の排気ガス,工場や家庭での化 石燃料の燃焼,ゴミの埋め立て等の人間活動によって大 気に放出されていることが知られている。

図4に図3の観測と同時に得られた高度3km以下に おける気温の鉛直分布を示す。大気中に逆転層が存在す ると地表から放出された物質は逆転層を突破できなくな



図3 1998年5月から1999年4月にかけて相模湾上空で 観測されたCO2濃度の鉛直分布。矢印は逆転層の 確認された高度と存在が予想される高度。



図4 図3の観測と同時に得られた高度3km以下におけ る気温の鉛直分布。矢印は逆転層の確認された高 度と存在が予想される高度。

り,逆転層の下に高濃度で蓄積すると考えられる。図4 の観測結果は鉛直方向の分解能に乏しいので全ての逆転 層をとらえているとは言えないが,1998年9月8日 (980908)(○)の2.7-3km間,981111(◇)の2-2.1km 間及び990420(●)の2-2.1km間には明瞭な逆転層が確 認できる。また,鉛直方向に気温が等しくなっている高 度帯が図4には9箇所存在している。これらの高度帯の 中には逆転層の存在している可能性が高い。逆転層の確 認された高度と存在が予想される高度を図3と図4中に 矢印で示した。図3から,矢印より上空ではほとんどの 場合その下の高度と比べてCO2濃度が極めて均一である ことがわかる。一方,逆転層の下では地表の影響を強く 受けて鉛直方向にCO2濃度が大きく変化している。

逆転層の下の濃度勾配は図3bの981019(□),981111 (◇),981222(△),990324(▽),990420(●)に見 られるように秋から春先にかけては下層ほど高濃度にな っている。これらの季節は陸上生態系は呼吸・分解の活 動が光合成活動より活発であるので,CO<sub>2</sub>の放出源とし て振る舞う。陸上生態系の活動に加えて人間活動による CO<sub>2</sub>の放出があるので,この時期の地表は強いCO<sub>2</sub>の放 出源となり,地表面近くが高濃度になったと考えられ る。一方,図3aの980721(□)と980908(○)におい ては逆転層直下の濃度はその上部に比べて低くなってい る。これは夏季の陸上生態系の光合成活動により地表が CO<sub>2</sub>の吸収源となっているためである。しかしながら夏 季においても980721の1kmと0.5km, 980908の0.5km といった地表近傍では局地的な人為汚染を受けた高い CO<sub>2</sub>濃度が観測されている。

980604 (◇) には1.2-1.5km 間と1.8-2km 間に等温層 があり、大気の鉛直混合を妨げていると予想される。高 度1km以下と2km以上のCO2濃度に大きな違いはない が、1.5kmだけはその上下よりも3ppmvほど高くなって いる。この特異な鉛直プロファイルを作り出した要因は 明確ではないが、前夜の逆転層内に蓄積した陸上生態系 起源及び人為起源による高濃度のCO2が高度1.5kmにだ け残る一方で、日中の光合成によるCO2の吸収を受けた 地表付近の低濃度の空気が1.2-1.5km間に存在する逆転 層を突破できずに留まった可能性も考えられる。以上の ように大気中のCO2濃度の鉛直プロファイルと逆転層の 存在する高度との関係から、逆転層が実際に大気の鉛直 混合を有意に妨げていることが示された。

逆転層より高高度のCO2濃度に注目すると,春から夏 にかけては日本付近の陸上生態系の盛んな光合成活動の 影響で季節と共に一方的に下がり続ける(図3a)。逆に 夏から翌年の春にかけては陸上生態系の光合成による CO2吸収量よりも呼吸や土壌有機物の分解によるCO2放 出量が多いために全ての高度で濃度が増加している(図 3b)。これらの高度のCO2濃度の鉛直勾配は春から夏に かけてのCO2濃度減少期にはほぼ一定か低高度でやや低 濃度を示すが,夏から翌年の春にかけてのCO2濃度増加 期には低高度でやや高濃度の傾向にあり,いずれの季節 においても常に低高度が先行している。この事実は季節 変動を引き起こしている原因が地表の陸上生態系である ことと整合している。

CO2濃度の観測結果を高度別に時系列データとしてプ ロットしたものが図5である。相模湾上空のCO2濃度は 全ての高度において夏に低く冬から春にかけて高いとい う明瞭な季節変動を伴って年々上昇していることがわか る。観測値のばらつきは一般に低高度ほど大きく, 0.5kmで特に大きい。観測値のフィッティングカーブか らの標準偏差をまとめたものが表1である。前述のよう に低高度においては局所的な人為汚染を受けた空気がし ばしば観測される。地表付近には人間活動以外にもCO2 の放出源や吸収源が空間的に不均一に分散しており、そ れらの影響の強さは逆転層の構造や風向によって大きく 変化すると予想される。観測されたCO2濃度が低高度ほ ど大きくばらついているのはこのような理由からであ る。

東北大学による1984年から1990年にかけての日本上 空のCO2濃度の観測値も本研究と同様に時系列データの フィッティングカーブからの偏差は低高度の方が大きく なっている。しかしながらその標準偏差は高度0-2, 2-4,



図5 相模湾上空で観測された CO2 濃度の時系列。○は 観測値,実線はフィッティングカーブ,点線は経 年変動を表す。

表1	CO2濃度観測値とフィッティングカーブとの差の
	標準偏差

高度(km)	標準偏差(ppmv)
7	0.8
5.5	0.7
4	1.0
3	1.4
2	1.7
1.5	2.7
1	3.7
0.5	6.2

4-6, 6-8, 8km-圏界面においてそれぞれ1.31, 1.00, 0.66, 0.50, 0.62ppmvであり(Nakazawa et al., 1993),本研 究の結果に比べて明らかに小さい。この違いはフィッテ ィングやデータセレクションの方法にも一部依っている が,本研究の観測結果が低高度において局所的な汚染を 強く受けていることに大きく起因していると考えられ る。一方,境界層より上部の自由対流圏においてもフィ ッティングカーブからの偏差は本研究の結果の方が大き い。図5では5.5kmや7kmのような高高度においても 1997年の夏から秋及び1999年の夏に観測値がややばら ついており,これらが標準偏差の増大に寄与していると 考えられる。相模湾上空では夏期になると高度7kmの対 流圏上部までも希に地表付近の影響が及んでいるのかも しれない。

図5の高度毎のフィッティングカーブから季節変動成 分だけを取り出してプロットしたものが図6である。各 高度の平均的な季節変動の振幅を表2にまとめた。相模 湾上空のCO2濃度の季節変動の振幅は地上付近から上空 にかけて次第に小さくなる傾向がある。しかしながら, 高度3kmと4kmの振幅はその上空より小さくなってい る。高度別の季節振幅を東北大学の観測結果と比較して みても,高度4km以上では同程度であるのに対して2-4kmにおいては相模湾上空がより小さい振幅になってい る。これは図5の1997年夏に見られるように,地表付近



図6 相模湾上空で観測された CO2 濃度の季節変動

表2 相模湾上空で観測された CO<sub>2</sub> 濃度の平均的な 季節振幅

于日小小山			
高度(km)	振幅 (ppmv)		
7	7.7		
5.5	8.0		
4	7.1		
3	7.0		
2	8.5		
1.5	10.9		
1	12.1		
0.5	13.8		

にあった高濃度CO<sub>2</sub>が上層へ輸送されることによる濃度 増加が高度 3-4km ではその上空より強くあらわれてい て、極小値が押し上げられていることに起因していると 考えられる。これに対して、晩冬から初春にかけては大 気の鉛直混合が夏期ほど盛んではないので、極大値の押 し上げ効果は小さく、結果として季節変動の振幅が小さ くなってしまったものと推察できる。

相模湾上空におけるCO2濃度の季節変動の位相は高度 と共に遅れる傾向にある。これはCO2の季節変動を作り 出している原因が地表に存在する事実と矛盾しない。季 節変動の極大値は高度1.5kmでは3月上旬,2kmでは3 月下旬,3km以上では4月の中旬から下旬にあらわれて おり、極小値は1.5kmでは8月中旬、2km以上では8月 下旬から9月上旬に観測されている。高度0.5kmと1km はデータのばらつきが大きいのでここでは議論の対象か ら外した。対流圏上部の極大値が観測される時期は対流 圏下部に対して約2か月遅れているのに対して、極小値 に関しては約1か月の遅れになっている。これは晩冬か ら初春にかけての大気の鉛直混合が夏期より弱いために 地表付近の情報が上方に伝わりにくいことが原因の一つ であろう。また、高度2km以下では冬期の強い逆転層が 高濃度のCO2を蓄積することによって見かけ上の極大値 を晩冬に作り出してしまって,対流圏上部との時間差を 拡大している可能性もある。

図7はCO2濃度の経年変動成分を高度毎にプロットしたものである。相模湾上空のCO2濃度は1997年から1999年にかけての3年間常に低高度で高濃度を保っている。 これは観測期間を通じて相模湾周辺が同じ緯度帯の平均的な大気に比べてより多くの人為汚染を受けていることを表している。

観測期間中のCO2濃度は全ての高度において経年的に 上昇をしているが、その割合は一定ではなく、高度3km 以上では1997年後半から1998年にかけての増加率がそ の前後よりも高くなっている。大気中のCO2濃度の増加 率がEl-Niño and Southern Oscillation (ENSO) イベン



図7 相模湾上空で観測された CO2 濃度の経年変動

トに伴って世界各地で通常とは違った特徴的な天候が数 年おきに発生している。このENSOイベントが大気中の CO2濃度の増加率と密接に関係していることは既に多く の観測結果から明らかになっている(例えば Conway et al., 1994; Keeling et al., 1995; Nakazawa et al., 1993, 1997)。相模湾上空で1997年後半から1998年にかけて CO2 濃度の増加率が高いのは 1997 年におこった ENSO イベントに関係している可能性がある。しかしながら, 本研究で採用している時系列データのフィッティング法 は,データの両端において表現が必ずしも適切でなく, 少数のデータに比較的強く影響を受けてしまう特性があ る。従ってENSOイベントのような数年の時間スケール の気候変動との相関によってCO2循環を論ずるためには 3年間の観測では時間的に必ずしも十分とは言えない。 今回観測された1997年後半から1998年にかけての高い 濃度増加率は、今後のデータの蓄積によってより確度の 高い解釈が可能になるであろう。

図8はCO2濃度の年平均値の高度分布である。本観測 はサンプリング間隔が一定ではないので, 平均操作には 観測値ではなくフィッティングカーブを利用している。 前述のようにCO2濃度の年平均値が低高度ほど高いこと が明確に示されている。また、その濃度勾配は低高度ほ ど大きくなっており, 地表付近の強い放出源の影響が上 空に行くに従って拡散している様子がわかる。東北大学 の観測空域における1986年から1990年にかけての高度 6-8kmと0-2kmのCO2濃度の年平均値の差は2-3ppmvで ある (Nakazawa et al., 1993)。これに対して相模湾上 空においては、高度7kmと2kmの濃度差だけでも約 3ppmv であり, 高度 7km と 0.5km の濃度差は 6-8ppmv にも達する。このように対流圏全体の濃度勾配は明らか に相模湾上空が東北大学の観測空域より大きく,相模湾 付近の地表はより多くのCO2の正味放出があるというこ とができる。



図8 相模湾上空で観測されたCO<sub>2</sub>濃度の年平均値の高 度分布

## 5. まとめ

相模湾上空の大気中CO2濃度は低高度において頻繁に 高い濃度が観測されること、フィッティングカーブから のばらつきが大きいこと、年平均値の鉛直勾配が大きい ことなどから、局所的な人為汚染を受けた空気に大きく 影響を受けていることが東北大学が日本上空で行ってい る同様な航空機観測との比較から明らかになった。しか しながら、CO2濃度の時系列からは全ての高度において 明瞭な季節変動や経年変動が観測され、CO2の自然起源 の放出源・吸収源の情報も多く残っていることがわかっ た。

大気の輸送の観点では,特に3km以下では逆転層の存 在が大気の鉛直輸送を大きく妨げていることがCO2濃度 の鉛直プロファイルから明瞭に示された。また,夏期に 高濃度のCO2が高高度まで上昇することがあり,CO2濃 度時系列のフィッティングカーブからの偏差を大きくす ると共に,高度4km付近では季節振幅を見かけ上小さく していた。

以上のように相模湾上空の観測は対流圏のバックグラ ウンド大気をとらえているとは言えないが、これらの観 測結果は人為汚染を受けた大気が鉛直方向にどのように 拡散し、情報を伝えていくかを知るための貴重な資料と なる。今後もデータを蓄積することによって世界でも数 少ない都市域上空の微量気体の長期観測記録として多く の知見が得られるものと期待される。

本研究の空気採取に関しては,飛行研究部の中村勝飛 行課長(1998年退職),照井祐之飛行統括官,栗栖健研究 飛行専門官,鎌田幸男整備専門官,山本武主任研究官,稲 垣敏治主任研究官および井之口浜木主任研究官,CO2濃 度の分析にあたっては国立環境研究所の酒井美穂,桜井 容子,三反畑尚代の諸氏にご尽力いただいた。また,本 稿の執筆にあたり国立環境研究所の遠嶋康徳,地球人間 環境フォーラムの渡井智則の各氏に助言をいただいた。

#### 参考文献

- Conway, T.J., P.P. Tans, L.S. Waterman, K.W. Thoning, D.R. Kitzis, K.A. Masarie and N. Zhang (1994): Evidence for interannual variability of the carbon cycle from the National Oceanic and Atmospheric Administration/Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory global air sampling network. *J. Geophys. Res.*, 99, 22831-22855.
- Etheridge, D.M., L.P. Steel, R.L. Langenfelds, R.J. Francey, J.M. Barnola and V.I. Morgan (1996): Natural and anthropogenic changes in atmospheric CO<sub>2</sub> over the last 1000 years from air in Antarctic ice and

firn. J. Geophys. Res., 101, 4115-4128.

- Francy, R.J., P.P. Tans, C.E. Allison, I.G.Enting, J.W.C. White and M. Trolier (1995): Changes in oceanic and terrestrial carbon uptake since 1982. *Nature*, **373**, 326-330.
- Francy, R.J., L.P. Steele, R.L. Langenfelds and B.C. Pak (1999): High precision long-term monitoring of radiatively active and related trace gases at surface site and from aircraft in the Southern Hemisphere atmosphere. J. Atmos. Sci., 56, 279-285.
- Keeling, C.D., T.P. Whorf, M. Wahlen and J. van der Plicht (1995): Interanual extremes in the rate of atmospheric carbon dioxide since 1980. *Nature*, 375, 666-670.
- Lee, K., R. Wanninkhof, T. Takahashi, S.C. Doney and R.A. Feely (1998): Low interannual variability in recent oceanic uptake of atmospheric carbon dioxide. *Nature*, **396**, 155-159.
- Machida, T., T. Nakazawa, G. Inoue, S. Maksyutov, N. Vinnichenko, M. Panchenko, M. Arshinov and N. Fedoseev (2000): Variations of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration over Siberia. Proceedings of the Eighth Symposium on the Joint Siberian Permafrost Studies between Japan and Russia in 1999 (G. Inoue and A. Takenaka; editors), 294-299.
- Matsueda H. and H.Y. Inoue (1994): Measurements of atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> using a commercial airliner from 1993 to 1994. *Atmospheric Environment*, **30**, 1647-1655.
- Murayama, S., T. Nakazawa, K. Yamazaki, S. Aoki, Y. Makino, M. Shiobara, M. Fukabori, T. Yamanouchi, A. Shimizu, M. Hayashi, S. Kawaguchi and M. Tanaka (1995): Concentration variations of atmospheric CO<sub>2</sub> over Syowa Station, Antarctica and their interpretation. *Tellus*, **47B**, 375-390.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka (1997): Temporal and spatial variations of the carbon isotopic ratio of tropospheric carbon dioxide in the western Pacific region. *J. Geophys. Res.*, 102, 1271-1285.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka (1993): Time and space variations of the carbon isotopic ratio of tropospheric carbon dioxide over Japan. *Tellus*, **45B**, 258-274.
- 田丸卓, 矢澤健司, 田頭剛, 町田敏暢, 井上元 (2000): 航空機による相模湾上空での温室効果ガス等鉛直分 布測定, 航空宇宙技術研究所資料, TM-745.