

東京大学大学院新領域創成科学研究科

環境学研究系自然環境学専攻

地球環境モデリング学分野

平成 24 年度

修士論文

西シベリアにおける大気中メタンの

起源に関する研究

Studies on the emission sources of
atmospheric methane in West Siberia

提出 2013 年 2 月 28 日

2012 年度 3 月修了

指導教員 今須良一 准教授

47-116617 高見澤秀樹

目次

1 はじめに	1
1.1 メタン	1
1.2 西シベリア	2
1.3 大気輸送モデル	3
1.4 本研究の目的	3
2 手法	4
2.1 本研究に用いる大気輸送モデル	4
2.1.1 NICAM-TM	4
2.1.2 NICAM-TM のメタンの化学反応系	5
2.1.3 NICAM-TM の入力データの取り扱い	5
2.1.4 NICAM-TM の設定	6
2.2 メタンの輸送検証	6
2.2.1 TransCom-CH ₄ Experiment	6
2.2.2 入力データ	7
2.2.3 計算設定条件	9
2.2.4 観測データ	10
2.3 西シベリアにおけるメタンデータ解析	12
2.3.1 メタン排出源の種類による分類	12
2.3.2 メタン排出領域の区分	12
2.3.3 評価方法	12
3 モデル検証結果	15
3.1 モデル内のメタン質量収支	15
3.2 他機関モデルとの比較	18
3.3 地上観測データとの比較	21
3.4 上空観測データとの比較	26
3.5 鉛直プロファイルデータとの比較	28
3.6 気柱濃度データとの比較	30
4 西シベリアにおける大気中メタンの起源の解析	32
5 西シベリアからのメタン排出が北極圏に与える影響の解析	34
6 まとめ・今後の展望	36
謝辞	37
参考文献	40

1 はじめに

1.1 メタン

環境問題の一つとして地球温暖化が叫ばれる中、気象庁 (Japan Meteorological Agency (JMA), 2012) によると 2010 年は全球年平均気温が 1891 年の統計開始以来 2 番目に高い年であった。世界気象機関 (World Meteorological Organization (WMO), 2012) によると、2011 年温室効果ガスである二酸化炭素 (CO_2)、メタン (CH_4)、一酸化二窒素 (N_2O) の世界平均濃度はいずれもこれまでの最高濃度を更新し、それぞれ 390.9 ± 0.1 ppm、 1813 ± 2 ppb、 324.2 ± 0.1 ppb に達した。これらは工業化 (1750 年) 以前より、それぞれ 40 %、159 %、20 % も高い値である。中でも著しく濃度が増加しているメタンは、単位分子あたりの放射強制力が CO_2 の約 25 倍 (100 年間基準) であり、1750 年から 2005 年までの増加による放射強制力 0.48 W/m^2 は、長寿命温室効果ガスの増加による放射強制力 2.66 W/m^2 の 18 % を占め、 CO_2 に次ぐ温暖化への影響物質とされている (Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), 2007)。また、メタンは大気中で強い酸化力を持つため、対流圏におけるオゾン形成や、成層圏における水蒸気の増加を引き起こし、これら付随的な非直接放射強制力は 0.13 W/m^2 と推定されている (IPCC, 2007)。

メタンの主な排出要素には、湿地、バイオマス燃焼、水田、反芻動物、エネルギー産業があり、IPCC (2007) では全球におけるメタンの年間排出量を 582 Teragrams (Tg) (5.82 億トン) と推定しているが、その量は大きな不確実性を持つとされる。その主な理由は、世界のほとんどの地域におけるメタン濃度の観測数が不足していることによる。図 1.1 に、温室効果ガス世界資料センター (World Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG)) にてデータが公開されている、メタン濃度の固定観測点を示す。

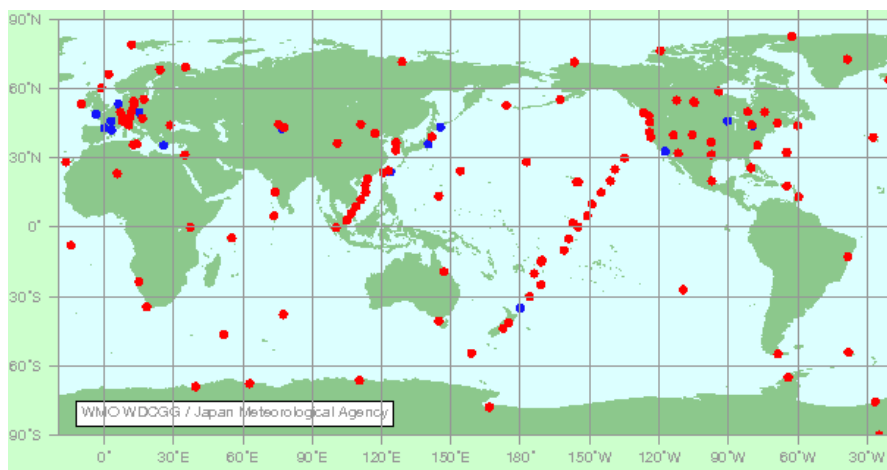


図 1.1 : WDCGG にてデータ公開されているメタン濃度の固定観測点

赤○ : データが 1 年以内に更新された観測点 (2013 年 1 月現在)

青○ : データが 1 年以内に更新されなかった観測点 (2013 年 1 月現在)

(http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg/jp/wdcgg_j.html) よりダウンロード

図 1.1 より、観測点がまばらな地域の一つに北半球高緯度域がある。この緯度域は、永久凍土下に炭素が豊富な土壌と湖が存在しており (Zimov *et al.*, 2006)、温暖化が進むことで、凍った泥炭層の霜が取れたり、雪に覆われていた湖が拡大して、蓄積された多量の有機炭素が大気中に放出されて温暖化がさらに促進するという、正のフィードバックが働く懸念されている (Walter *et al.*, 2006)。北半球の温暖な気候の湿地からのメタン排出量は、2003 年から 2007 年にかけて年間 4.2 ± 1.2 Tg 増加していると思われている (Bloom *et al.*, 2010)。

1.2 西シベリア

西シベリアは北半球高緯度域に位置するメタンの大きな排出源であり、温暖化の正のフィードバックが懸念されている地域の一つである。西シベリアの泥炭地は世界中の地表に蓄えられたメタンの 4 分の 1 に相当する 70000 Tg のメタンを含み、現在の西シベリアのように湿潤な気候だと、メタンは酸化されずに直接大気中に放出される (Fred Pearce, 2005)。西シベリアは人間活動によるメタン排出である、天然ガス産業からの排出も大きい地域でもある。天然ガスは近年エネルギーとして注目されている物質であり、その成分の 90 %以上がメタンである。その採掘過程をはじめ、不活性ガスを燃焼させるガスフレア、地盤沈下や劣化に伴う輸送パイプラインの破損により、天然ガスが大気中に放出されている (Goodland, 2005)。ロシアは 2010 年天然ガス生産量が世界第 2 位 (世界総生産量の 18 %)、確認埋蔵量が世界第 1 位 (世界総確認埋蔵量の 24 %) の天然ガス大国であり (British Petroleum (BP), 2011)、その 8 割を西シベリアにて生産している (日本国際問題研究所 (Japan Institute of International Affairs (JIIA)), 2012)。また、JIIA (2012) によると、ロシアは 2030 年までのエネルギー戦略として、2008 年度比で 33 ~ 42 %天然ガス生産量増加を見込んでおり、今後も天然ガス採掘に伴うメタン排出量の増加が予測される。

西シベリアでは近年大気観測網が拡大している。地上観測としては、国立環境研究所 (National Institute for Environmental Studies (NIES)) によるタワー観測 Japan-Russia Siberian Tall Tower Inland Observation Network (JR-STATION) (Sasakawa *et al.*, 2010) や、シベリア鉄道を利用した Trans-Siberian Observations Into the Chemistry of the Atmosphere (TROICA) project (Tarasova *et al.*, 2005) にてメタン濃度が観測されている。上空観測としては、NIES による航空機観測が行われており (Machida *et al.*, 2001)、メタン濃度の鉛直プロファイルが観測されている。衛星によるメタン観測も行われている。衛星観測はメタンの太陽放射の吸収帯により二つの種類に分けられ、近赤外域スペクトルを利用したメタン気柱積算量の測定と、熱赤外域スペクトルを利用した中上部対流圏におけるメタン濃度の測定がある。衛星観測は大きな時空間スケールをカバーする特性を有するが、極域の冬はセンサーの性質上、極夜のために近赤外域を使用した観測は

できなく、放射が弱くなり気温の鉛直コントラストが小さくなるために、熱赤外域を使用した観測も感度が小さくなる。

1.3 大気輸送モデル

大気輸送モデルは、地上から放出された物質が輸送、光化学反応、除去などのプロセスを経ながらどのように全球に分布するかをシミュレーションするものである。北半球高緯度域・シベリアにおける大気中メタンの分布解析として、Xiong *et al.* (2010)はこの地域の中上部対流圏のメタン濃度が、全球的な地上付近の傾向とは対照的に夏に増加する原因を、メタン排出量の季節性と夏の混合層発達による対流が重要な駆動源であると指摘している。また、Sasakawa *et al.* (2010)は西シベリアの地上付近のメタン濃度変化の支配要因を、夏は湿地、冬は化石燃料の排出であることを指摘している。

大気中メタン濃度の観測データと大気輸送モデルを利用した逆解析により、メタンの排出量を推定するインバージョンという手法がある。Bousquet *et al.* (2006)は産業革命以降増加傾向にあった大気中メタン濃度の年間上昇率が、1990年頃より減少している要因を、湿地からの排出量の減少によると指摘している。Chen and Prinn. (2006)は1996年から2001年にかけて、エネルギー生産によるメタン排出量は減少し、水田やバイオマス燃焼による排出量が増加していたことを指摘している。

1.4 本研究の目的

メタン排出源として重要な西シベリアにおけるメタン濃度の季節変化・高度分布に対する各排出領域の影響を定量的に評価する。また、西シベリアからのメタン排出が温暖化が懸念されている北極圏に与える影響についても、排出要素間の違いに注目して定量的に評価する。本研究成果が、将来メタンの排出源強度推定（インバージョン解析）につながる知見となることを目的とする。

2 手法

本研究は以下の二つの構成から成る。まず、本研究に用いる大気輸送モデルのメタン輸送の基本的な特性を評価するために、国際モデル比較プロジェクトのプロトコルに則った検証を実施する。検証実験後、そのモデルを用いて西シベリアのメタン濃度・排出の特性を考察するためのメタン輸送シミュレーションを実施する。

2.1 本研究に用いる大気輸送モデル

2.1.1 NICAM-TM

本研究では、Nonhydrostatic ICosahedral Atmospheric Model (NICAM) (Tomita and Satoh., 2004, Satoh *et al.*, 2008) をベースとして開発された大気輸送モデル NICAM-based Transport Model (NICAM-TM) (Niwa., 2010, Niwa *et al.*, 2011a) を用いる。NICAM は正二十面体を分割して格子 (グリッド) を生成するため、全球において局所的に格子が集中することがなく計算を行うことができる。その解像度は、正二十面体からの分割回数で決めることができ、5 回分割した格子の水平解像度のレベルは glevel-5 (格子間隔約 240 km) と呼ばれる (図 2.1)。

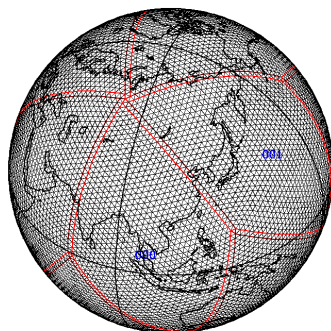


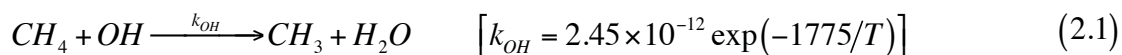
図 2.1 : NICAM (glevel-5) における格子系
(赤線 : 計算上分割する領域例、青文字 : 領域番号)
地球面上に張り巡らされた格子一点一点にて計算が行われる。

物質の大気輸送計算に対する NICAM の優れた性質として質量保存性が挙げられる (Niwa *et al.*, 2011a)。本研究の対象物質であるメタンは、大気寿命が約 12 年 (IPCC, 2007) と長いため、モデル内の質量保存性は重要である。モデル内の化学物質はグリッドスケールの風速場による移流と、サブグリッドスケールの積雲対流、鉛直拡散によって輸送される。また、その生成・消失源 (地球表面でのフラックスや OH など) は外部からの入力データとしてモデルに与える。

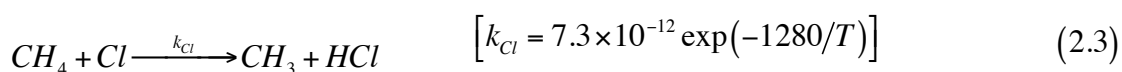
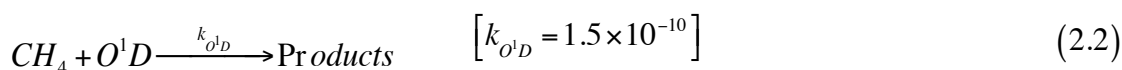
2.1.2 NICAM-TM のメタンの化学反応系

メタンは、対流圏、成層圏での化学反応と土壌への吸着により消失する (IPCC, 2007)。NICAM-TM にはメタンの化学反応系として、以下の三つの反応式が組み込まれている。

<対流圏>



<成層圏>



$$[k_{str}] = [k_{O^1D} \times [O^1D] + k_{Cl} \times [Cl]] \quad (2.4)$$

対流圏における OH との反応化学系数 k_{OH} は Sander *et al.* (2006) を、成層圏における O^1D 、Cl との反応化学系数 k_{str} は Cambridge 2-D model (Velders., 1995) に基づくパラメタライズされた式 (2.4) を用いている。また、これらの化学反応式、反応化学系数はいずれも本研究の輸送検証に用いた実験である TransCom-CH₄ Experiment (Patra *et al.*, 2011) (詳細 2.2.1 節) に則ったものである。

2.1.3 NICAM-TM の入力データの取り扱い

モデル内でメタンは地表から排出され、大気中における消失関与物質 (OH, O^1D , Cl) との反応および地表面への吸着を経ながら輸送される。メタンの地表からの排出量・分布データ (以下、排出シナリオ、又はシナリオと呼ぶ)、消失反応に関わる OH, O^1D , Cl の大気中数密度・分布データ、および吸着量・分布データを NICAM-TM に与えて計算することで、メタンの大気中濃度が求められる。

それぞれのデータは緯度経度格子データから成るため、NICAM-TM に入力する際は正二十面体格子データに変換する必要がある。本研究では各格子を中心とし、代表的な NICAM-TM の格子間隔 r_0 を直径とした領域内における緯度経度格子のデータを平均して、その値を格子の値とする。また、メタン排出シナリオについて、大陸起源のものは陸地の格子、海洋起源のものは海洋の格子に位置するようマスキングを行い、全球でのフラックス総量をあわせるためのスケーリングを行った。

本研究で用いるメタン排出シナリオ、消失関与物質データ、吸着データは最も細かい時間分解能でも月毎のものである (詳細 2.2.2 節)。これらのデータを直接用いると、月の変わり目のみ値が変化してしまうが、NICAM-TM では各月の値を半月毎に区切り、前月の

後半月と当月の前半月の値を利用して線形内挿することによりこれらが滑らかに扱われる。

2.1.4 NICAM-TM の設定

本研究は、メタン輸送の検証、西シベリアにおける解析において、共通した NICAM-TM の設定を用いた。水平解像度は `glevel-5` (格子間隔約 240 km)、モデル内での鉛直層数は 40 層に設定した。水平方向の移流スキームに Miura スキーム (Miura., 2007) を、積雲対流パラメタリゼーションに prognostic Arakawa - Schubert (Arakawa and Schubert *et al.*, 1974) を、乱流パラメタリゼーションに MYNN Level 2 (Mellor and Yamada., 1974, Nakanishi and Niino., 2004, Noda *et al.*, 2009) を用いた。計算間隔は 20 分とした。また、ナッジングと呼ばれる手法を用いてモデル値を再解析データに近づける強制力を与え、モデル内に現実の輸送場を再現した。その再解析データは JMA が提供している Japanese 25-year ReAnalysis / JMA Climate Data Assimilation System (JRA-25 / JCDAS) (Onogi *et al.*, 2007) のモデル面データ (解像度 T106) を NICAM-TM の格子上へ内挿して用いた。ナッジングによる強制力は、水平風に対してのみ鉛直 11 層目以上高にかけた。ナッジングを 10 層目以下にかけない理由は、用いる再解析データが気圧面データである一方、NICAM-TM は terrain - following coordinate という実高度に基づいた鉛直座標を用いているため、再解析データを NICAM-TM の格子上に内挿する際に下層で不整合が起きると、混合層内はサブグリッドスケールの乱流パラメタリゼーションに大きく左右される領域であるためである (Niwa., 2010)。実際、本研究で用いた設定条件は、物質循環に良好な結果を得ている (Niwa *et al.*, 2011b, 2012)。

2.2 メタンの輸送検証

2.2.1 TransCom-CH₄ Experiment

大気輸送モデルの違いが排出量推定結果に与える影響について検証するため、The Atmospheric Tracer Transport Model Intercomparison Project (TransCom) では、二酸化炭素の排出量推定に用いられている多数の輸送モデルを用いて同じ設定の実験を行い、大気輸送におけるモデル間比較などを行なっている (Denning *et al.*, 1999)。近年ではメタンを対象にした大気輸送比較実験 TransCom-CH₄ Experiment が実施された (Patra *et al.*, 2011)。TransCom-CH₄ Experiment では、排出量と大気輸送モデルのそれぞれの不確定性を定量的に評価することを目的として、複数の異なるメタン排出シナリオ、大気輸送モデルを用いた、全球におけるモデル間比較を行っている。

本研究では、TransCom-CH₄ Experiment を実施し、同実験を行った他機関モデルによるメタン濃度分布計算結果と比較した。他機関モデル計算結果は Protocol for TransCom CH₄ intercomparison (Patra *et al.*, 2010) に掲載されている FTP サーバー ([fxp.nies.go.jp](ftp.nies.go.jp))

よりダウンロードした。

2.2.2 入力データ

(1) メタン排出シナリオ

メタンの地表からの排出量・分布データである排出シナリオとは、各メタン排出要素の排出量を組み合わせたものである。TransCom-CH₄ Experiment は排出シナリオ間の違いがどのようにモデル計算結果に影響をあたえるかを評価するために、6 種類のシナリオを用意している (Patra *et al.*, 2010)。これらは、既存の排出量・分布データベースを組み合わせ、フィルタリングを施すことで改良されたものである。本研究では 6 種類のうち 4 種類のシナリオを用いてメタン輸送の検証を行う。TransCom-CH₄ Experiment ではシナリオとしてのデータを提供しており、湿地、人為起源、バイオマス燃焼などの排出要素ごとのデータについては、その一部を提供している。今回 2 種類のシナリオを用いない理由は、これらは排出要素ごとのデータに分割し得ないためである。西シベリアの解析では 4 種のシナリオを排出要素ごとに分割したものを、さらに排出領域ごとに分割して利用する (詳細 2.3 節)。表 2.1 に本研究で使用する排出要素・排出シナリオの構成を示す。表 2.1 (a) は排出要素の各タイプがどのようなデータベースから作成されているかを、表 2.1 (b) は各排出シナリオが表 2.1 (a) の排出要素のどのような組み合わせからなるかを示している。TransCom-CH₄ Experiment の排出シナリオはフィルタリングが施されていると先述した通り、例えば、表 2.1 (a) の湿地 B は ORganizing Carbon and Hydrology in Dynamic EcosystEms (ORCHIDEE) MODEL (Ringeval *et al.*, 2010) により推定された排出量を 0.76 倍したものであり、バイオマス燃焼 B は Global Fire Emissions Database (GFED) 2.0 (van der Werf *et al.*, 2006) の推定排出量に GISS BB (Fung *et al.*, 1991) の推定排出量を 0.65 倍したものを足し合わせたものである。これらの排出要素の組み合わせから表 2.1 (b) のような排出シナリオが構成されている。続いて、図 2.2 に各排出シナリオの年間排出量を示す。表 2.1 (b) より、CTL と CTLE4 は人為起源 A と人為起源 B の違いを、CTL と BB はバイオマス燃焼 A とバイオマス燃焼 B の違いを、BB と BBWL は湿地 A と湿地 B の違いを示している。それゆえ、図 2.2 を例にとると、1988 年から 1999 年にかけて CTL が CTLE4 より排出量が多いのは人為起源 A による排出量が多いことを、2001 年から 2007 年にかけて CTLE4 が CTL より大きいのは人為起源 B による排出量が多いことを示している。

(2) 消失関与物質

TransCom-CH₄ Experiment では、消失関与物質についても条件が統一されており、それらのデータが提供されている。対流圏での消失反応に関わる OH データは Spivakovsky *et al.* (2000) により計算された数密度・分布をもとに、2000 年以降は TransCom-CH₄

Experiment 仕様にその絶対量を 8%減少させるスケーリングが施されている (Huijnen *et al.*, 2010)。これらは、月平均値で年変化はないものであり、北半球と南半球 OH の量はおおよそ等しいものになっている (Spivakovsky *et al.*, 2000)。成層圏での消失反応に関わる O¹D、Cl データは Velders. (1995) により計算された数密度・分布であり、これらは OH と同様に月平均値で年変化はない。地表面吸着データは Bousquet *et al.* (2006) により計算されたものであり、これらは月変化、年変化いづれもなく、全球年間吸着量は 27.21 Tg である。

表 2.1 (a) : 排出要素ごとのデータベースとその時間スケールの特徴

排出要素	型	データベース元とその組み合わせ	月変化	年変化
人為起源	A	EDGAR3.2(Olivier <i>et al.</i> , 2001)	なし	あり(1990年、1995年、2000年を基に内挿・外挿)
	B	EDGAR4.0 (http://edgar.jrc.ec.europa.eu)	なし	あり(2006年、2007年値は2005年値を利用)
湿地	A	GISS WL(Fung <i>et al.</i> , 1991)	あり	なし
	B	0.76 × ORCHIDEE MODEL (Ringeval <i>et al.</i> , 2010)	あり	一部あり(1994~2000年) 他の年は年変化なし
バイオマス 燃焼	A	GISS BB(Fung <i>et al.</i> , 1991)	あり	なし
	B	GFED 2.0(van der Werf <i>et al.</i> , 2006) + 0.65 × GISS BB(Fung <i>et al.</i> , 1991)	あり	一部あり(1996~2008年) 他の年は年変化なし
水田	A	REAS RICE(Yan <i>et al.</i> , 2009)	あり	なし
その他	A	GISS termite(Fung <i>et al.</i> , 1991)	あり	なし
		oceanic exchange (Lambert and Schmidt., 1993) (Houweling <i>et al.</i> , 1999)		
		mud volcano emissions (Etiope and Milkov., 2004)		

表 2.1 (b) : 各排出シナリオとその排出要素の組み合わせ

シナリオ\排出要素	人為起源	湿地	バイオマス燃焼	水田	その他
CTL	A	A	A	A	A
CTLE4	B	A	A	A	A
BB	A	A	B	A	A
BBWL	A	B	B	A	A

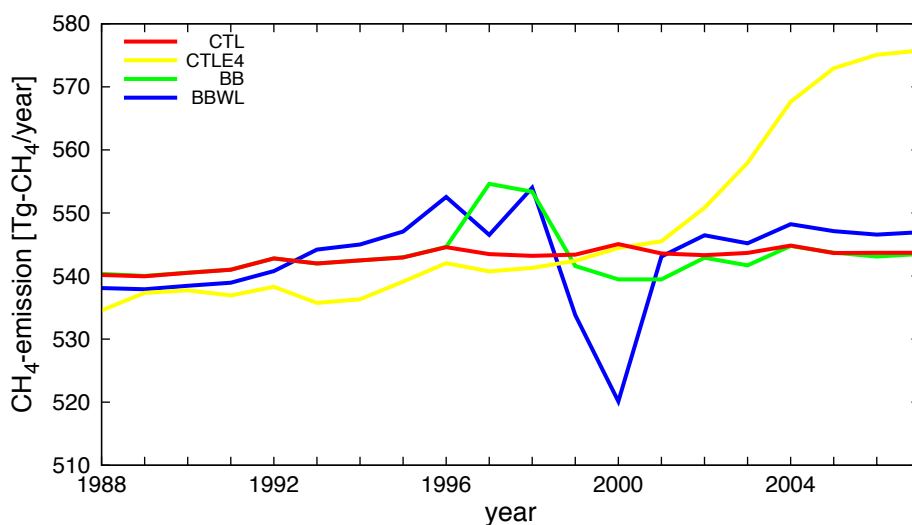


図 2.2： 本研究に用いる排出シナリオの年間排出量の推移
 横軸：時間 [年]、縦軸：排出量 [Tg-CH₄/年]
 排出シナリオごとに年間排出量とその推移が異なる。

2.2.3 計算設定条件

TransCom-CH₄ Experiment は、シミュレーション期間が 1988 年から 2007 年までの 20 年間であり、計算開始から 2 年間（1988 年、1989 年）はスピナップ期間と指定されている。スピナップとはモデル内でのメタン濃度の南北、鉛直分布、およびメタンの排出総量と消失総量が概ね平衡状態となるように計算する期間のことである。計算を開始する 1988 年 1 月 1 日 0:00 の大気中メタン濃度は TransCom-CH₄ Experiment により用意された初期濃度場を利用する。以上、TransCom-CH₄ Experiment の設定を表 2.2 に示す。

表 2.2： TransCom-CH₄ Experiment の設定

期間	1988 年から 2007 年（1988 年、1989 年はスピナップ）
初期値	1988 年 1 月 1 日 0:00 のメタン濃度（TransCom-CH ₄ Experiment 指定）
排出シナリオ	4 種類（CTL, CTLE4, BB, BBWL）
消失反応	対流圏：OH（月平均値、年変化なし） 成層圏：O ¹ D、Cl（月平均値、年変化なし） 土壌吸着：月変化、年変化なし（年間 27.21 Tg）

2.2.4 観測データ

(1) WDCGG

地上付近の観測点におけるメタン濃度の時系列変化の再現性を検証するために WDCGG 上で公開されている地上連続観測データを用いた。今回選択した観測サイトは、Alert (82.45°N, 62.52°W, 210 m)、与那国島 (24.47°N, 123.02°E, 30 m)、南鳥島 (24.30°N, 153.97°E, 8 m)、Cape Point (34.35°S, 18.49°E, 260 m) である。それぞれの観測サイトにおけるデータの提供機関は、Alert が Environment Canada (EC)、与那国島、南鳥島が JMA、Cape Point が South African Weather Service (SAWS) である。本研究では、それぞれのサイトの日間隔データを用いた。

(2) GLOBALVIEW-CH₄, 2009

大規模なスケールの現象である南北半球間輸送の検証をするために、National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) により公開されている GLOBALVIEW - CH₄, 2009 の Marine boundary layer (MBL) というデータを用いた (ftp://ftp.cmdl.noaa.gov/ccg/ch4/GLOBALVIEW/gv_ch4/ref_mbl_mtx.ch4)。GLOBALVIEW - CH₄ のデータは、ローカルな排出源の影響を受けない、バックグラウンド大気のみを測定したメタン濃度データが選択され、Masarie and Tans. (1995) による手法でスムージングがかけられたものである。これにより代表性の高い広域のメタン濃度の変動傾向の情報が抽出されており、排出量推定等にはこのデータセットが利用される場合が多い。本研究で用いた MBL は、特に陸面からの排出影響をあまり受けない海洋上の選択されたサイトのデータからなるものである。

(3) CONTRAIL

上空における長距離輸送の検証をするために、NIES と気象研究所 (Meteorological Research Institute (MRI))、日本航空 (Japan Airlines (JAL)) などが共同で実施している航空機観測プロジェクト Comprehensive Observation Network for Trace gases by Airliner (CONTRAIL) のデータを用いた。CONTRAIL では、上空のメタン濃度観測のために、JAL の東京-オーストラリア間の定期旅客機の貨物室に自動大気採取装置を搭載し、上空およそ 11 km の高度においておよそ 30°N から 30°S にかけて等緯度間隔に 12 箇所で大気サンプリングが行われる (Matsueda and Inoue., 1996)。採取された大気サンプルは NIES や MRI で分析され、メタン濃度が測定されている。本研究では、東京-シドニー間という幅広い緯度帯におけるメタン観測データを用いた。

(4) シベリア鉛直プロファイルデータ

地上から上空にかけてのメタンの鉛直輸送を検証するために、NIES が航空機により観測しているメタン濃度の鉛直プロファイルデータ (Machida *et al.*, 2001) を用いた。NIES によるシベリア鉛直プロファイル観測は 1993 年から実施されており、西シベリアの Novosibirsk (55°N, 83°E)、Surgut (61°N, 73°W) および東シベリアの Yakutsk (62°N, 130°E) において、地上 500 m から 7000 m にかけて月 1、2 回の頻度でサンプリングされている。本研究では、西シベリアの観測点である Novosibirsk のデータを用いた。

(5) シベリア気柱濃度データ

地上から上空にかけての平均的なメタン濃度である気柱濃度の再現性を検証するために、国立ウラル大学(Ural Federal Univ.)の Climate and Environmental Physics Laboratory (CEPL)による地上 Fourier Transform Spectrometer (FTS)によるメタン気柱濃度観測データを用いた。CEPL は西シベリアの Kourvka (57.036°N, 59.546°E) にて、メタン気柱濃度を測定している。この観測地は、Total Carbon Column Observing Network (TCCON)という地上高分解能 FTS による直達太陽スペクトルを記録するネットワークに採用されており、TCCON は人工衛星の観測データの検証に利用されるなど、非常に精度の高いデータを公開している機関である。

以上の使用した観測データのサイトを図 2.3 に示す。

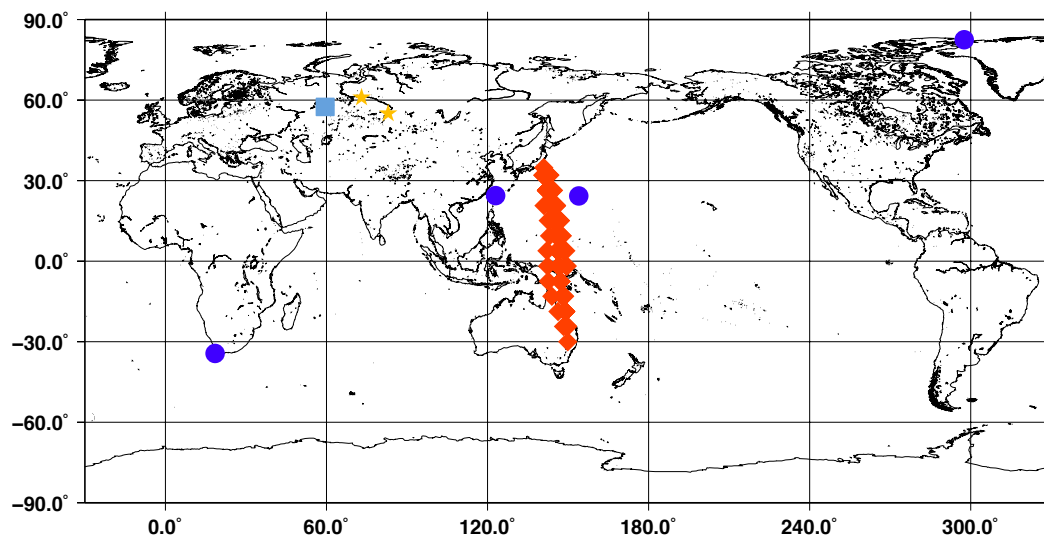


図 2.3 : 本研究に用いた観測データのサイト

青○ : WDCGG (地上連続観測)、赤◇ : CONTRAIL (上空観測)、
黄色☆ : NIES (鉛直プロファイル)、水色□ : Ural Federal Univ. (気柱観測)

2.3 西シベリアにおけるメタンデータ解析

2.3.1 メタン排出源の種類による分類

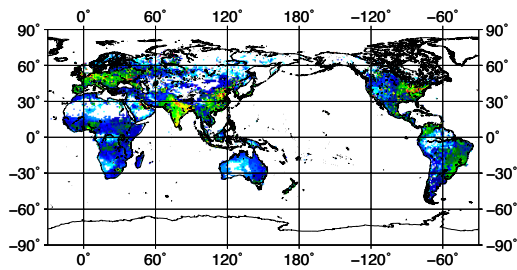
西シベリアの解析に用いる排出シナリオは、全球における年間排出量の多い上位4種(人為起源、湿地、バイオマス燃焼、水田)およびその他排出という分け方をした(表2.1参照)。図2.4に各排出要素ごとの年間排出量の全球分布を示す。図2.4より、人為起源の排出が最も全球わたり分布し、とりわけ、北アメリカ、ヨーロッパ、東アジア、南アジアといった北半球からの排出量が多いことがわかる。湿地からの排出は、湿地Aでは極域を中心に分布しているのに対し、湿地Bでは極域に加え、東アジアをはじめとした全球的な排出分布を推定している。バイオマス燃焼による排出は、バイオマス燃焼Aではアフリカ、南アメリカ、南アジアを中心に分布しており、バイオマス燃焼Bではそれに加えて東シベリア周辺の排出も見られる。水田からの排出は東アジア、南アジア、東南アジアに集中している。その他排出については、アフリカと南アメリカにおけるシロアリによる排出や、極域の海洋における海洋の循環による排出が目立つ。

2.3.2 メタン排出領域の区分

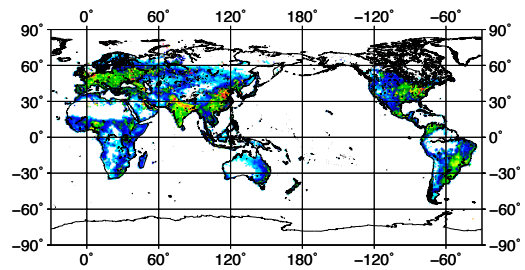
本研究では、西シベリアに焦点を当てた解析を行うため、北半球高緯度を中心に6つの領域(西シベリア、東シベリア、北アメリカ、ヨーロッパ、アジア、(その他陸地+海洋))を設定し、排出要素ごとに分けたデータをこれらの各領域からの排出として更に分割した。一般的に、シベリアを西と東に分ける際は、ウラル山脈からエニセイ川まで広がる西シベリア平原とそれより東方という区分をすることから、本研究では西シベリアの範囲を緯度(50°N~70°N)、経度(55°E~90°E)とした。領域ごとの境界作成は、西シベリアの陸地を切り出した後、TransComの排出量推定にて用いられている42領域(陸31領域、海11領域)を基に行った。図2.5に本研究における領域の分割図を示す。

2.3.3 評価方法

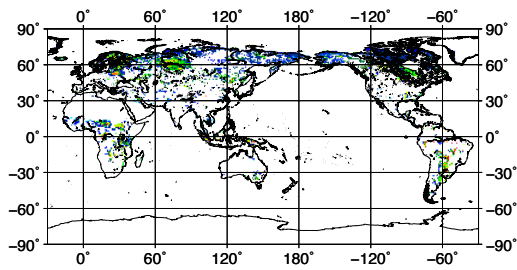
本研究では「寄与率」という指標を用いて、各領域の各排出要素からの影響を定量的に評価した。寄与率とは、解析対象となる年において、各領域・各排出要素からのメタン排出のみを与えた際の計算結果から、メタン排出を一切与えない際の計算結果(バックグラウンド)を差し引くことで、各領域・各排出要素からのメタン排出による濃度増加を求め、それを全排出による濃度増加で割ることにより得られた値(百分率)である。



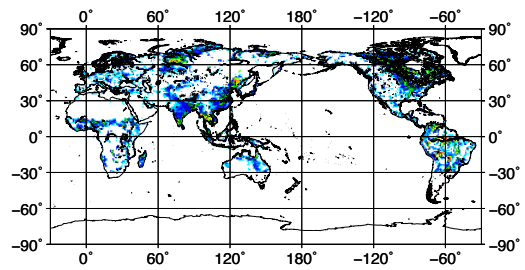
(a) 人為起源 A



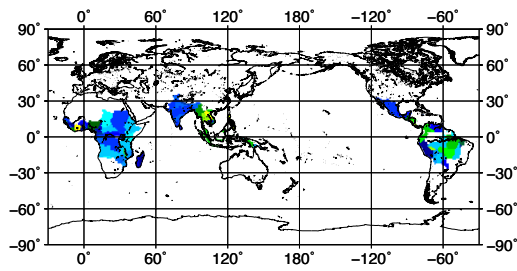
(b) 人為起源 B



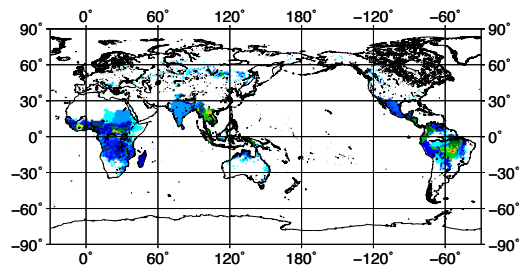
(c) 湿地 A



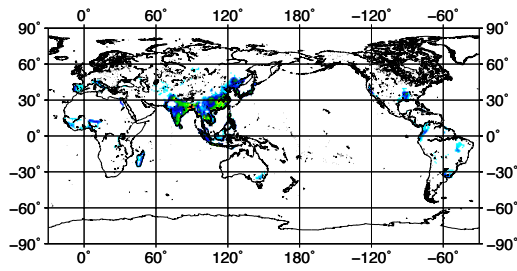
(d) 湿地 B



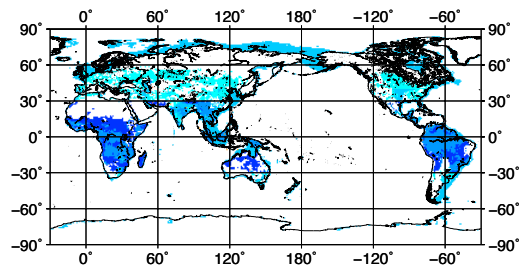
(e) バイオマス燃焼 A



(f) バイオマス燃焼 B



(g) 水田 A



(h) その他 A

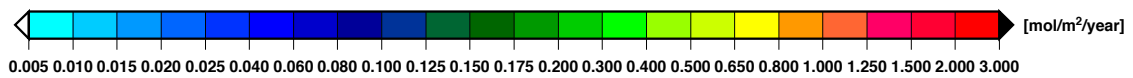


図 2.4： 排出要素別のメタン排出量

期間：2007年（積算値）

カラースケール：1m²あたりの年間メタン排出量 [mol/m²/年]

(a) ~ (h) いずれの図からも各排出要素の特徴が見られる。

同じ排出要素でもシナリオにより排出量・分布が異なる。

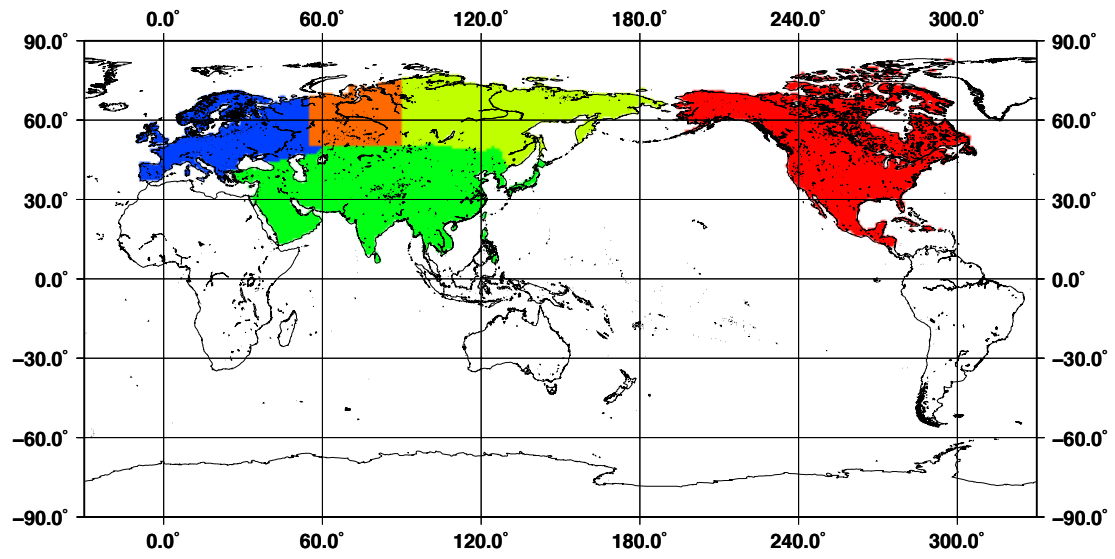


図 2.5： 本研究における領域の区分
色分けされているのが各領域であり、西シベリア、東シベリア、北アメリカ、ヨーロッパ、アジア、その他陸地+海洋 の 6 領域に分けた。

3 モデル検証結果

NICAM-TM のメタン輸送の特性を調べるため、TransCom-CH₄ Experiment を実施した。3.1 節でモデル内のメタン質量収支の定量的な評価を、3.2 節では同実験を実施した他機関モデルの計算結果と比較した。3.3 節で地上付近における連続観測データおよび南北勾配データと比較を、3.4 節では上空における観測データと比較をした。3.5 節で鉛直プロフィールデータと比較を、3.6 節では気柱濃度データと比較をした。

3.1 モデル内のメタン質量収支

化学物質の輸送シミュレーションにおいて、モデル内での物質の質量収支を定量的に評価することは、モデル内で輸送物質が概ね平衡状態に達しているかを把握するために重要である。そこで、NICAM-TM 内での対流圏でのメタンの消失量 (式 2.1)、成層圏でのメタンの消失量 (式 2.2、2.3) および土壌への吸着量 (年間 27.2 Tg) の和を、年間排出量 (図 2.2) から差し引くことで、TransCom-CH₄ Experiment における各年の大気中へのメタン貯留量 (大気中メタンの増加分) を計算した。図 3.1 に各年における対流圏におけるメタンの消失量 (a)、成層圏におけるメタンの消失量 (b)、メタンの大気中貯留量 (c) を示す。

CTL と BB の違いであるバイオマス燃焼 A とバイオマス燃焼 B の違いとして、図 2.2 より 1997年、1998年はバイオマス燃焼 B がバイオマス燃焼 A よりも年間排出量は約 10 Tg 大きいものの、対流圏における消失量は BB は CTL よりも約 2 Tg 大きい程度であり、成層圏における消失量は同程度である。これはメタンが寿命約 12 年であることから、排出されたメタンがその年に一度に消失するわけではないことに対応する。そのため、各年における大気中メタン貯留量 (図 3.1 (c)) は、その年における排出シナリオの影響 (図 2.2) を最も受けている。例として、2000 年における湿地 B からの排出量の減少や 2001 年からの人為起源 B の排出量の増大による影響が、その期間の大気中メタン貯留量の特徴として見られる。

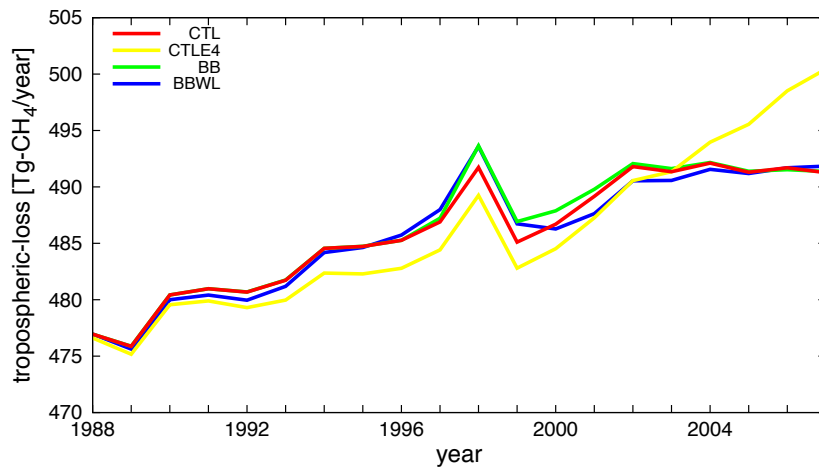
対流圏および成層圏でのメタンの消失量に着目すると、排出シナリオ間で消失量の年変化の傾向に大きな違いがない。例えば、CTL の排出量は年ごとにほとんど変化しないが (図 2.2)、対流圏での消失量は大きな年変化しており、1998 年は全シナリオとも対流圏においてその前後の年よりも約 5 Tg ほど大きく消失している。

図 3.1 (c) について、1988 年のスピニアップ開始から 1990 年の実験開始以降も、各年におけるメタンの大気中貯留量は 0 Tg 以上である。すなわち、CTL を例にとると、年間排出量はほとんど一定であるにも関わらず、毎年モデル内で大気中メタンが増加し続けている。1988 年の計算開始時から年々貯留量は下がっていくものの、2000 年代に入るまでその傾向が続いている。図 3.1 (a) (b) より、1988 年から 2000 年にかけて対流圏および成層圏における消失量は年々増加しており、その期間の排出量はいずれのシナリオもほと

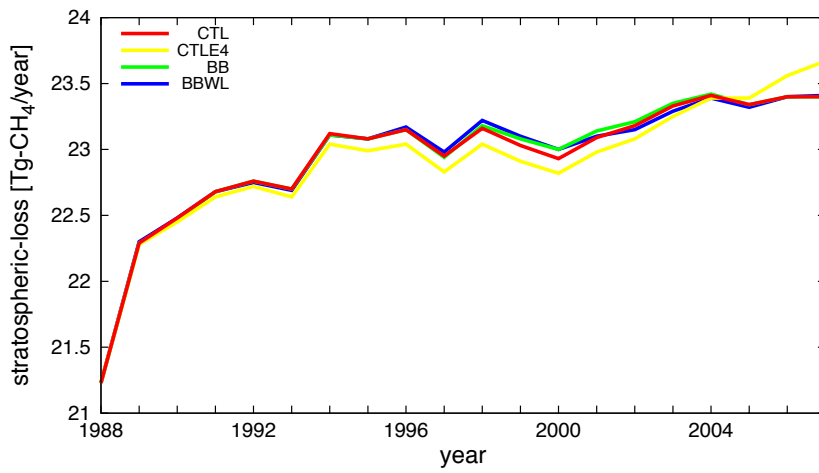
んど増加していないことから（図 2.2）、スピニング期間が足りていないことが示唆される。

TransCom-CH₄ Experiment では、予め用意された 1988 年 1 月 1 日 0:00 におけるメタン濃度を利用し、1988 年から 1989 年の 2 年間で計算することで、スピニング期間としているが、本モデルはこの 2 年間では地表からの排出と大気中での消失量が平衡状態になっておらず、1990 年以降も大気中にメタンが貯留され続けている。安生. (2008) では、年変化のない排出シナリオ使用時に、メタンの大気中初期濃度を 0 とした状態からスピニングを開始しメタン排出量に対する消失量が 95 %にするまで約 40 年かかっている。44 年目にその値が 98 %となることから、その年のシミュレーションを行なっている。本研究のメタン排出シナリオは年変化があることから完全な平衡状態にはできないが、貯留量がある程度安定させる必要はある。図 3.1 より各消失量と貯留量は、CTLE4 を除き、各シナリオとも 2002 年以降は値が安定している。CTLE4 が安定していない理由は、2000 年以降の排出量が大きく増加するためである。

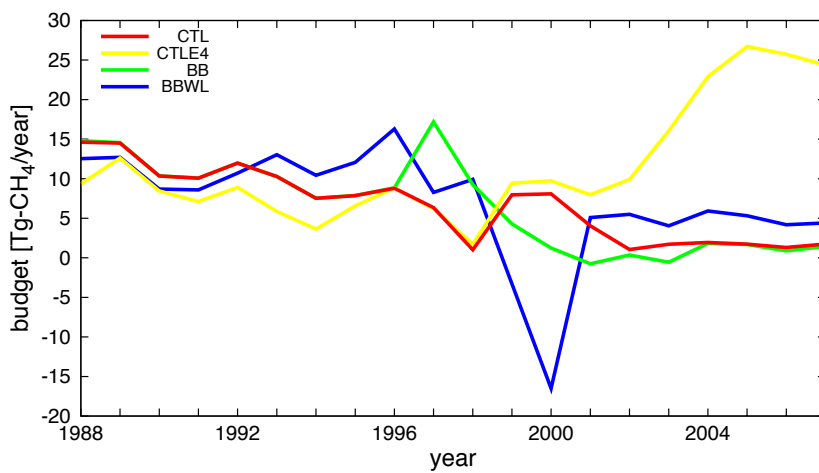
本研究では、1988 年から 2006 年までをスピニング期間として位置づけ、輸送検証および西シベリアの解析は、TransCom-CH₄ Experiment の最後の年である 2007 年の計算結果と観測データを用いて議論する。



(a) 対流圏におけるメタンの消失量



(b) 成層圏におけるメタンの消失量



(c) メタンの大気中貯留量

図 3.1 : モデル内でのメタンの大気中消失量、大気中貯留量の年変化
 横軸 : 時間 [年]、縦軸 : (a,b) 消失量[Tg-CH₄/年] (c) 貯留量 [Tg-CH₄/年]

3.2 他機関モデルとの比較

モデル間比較の目的は、モデル計算における不確実性がどこにあるかを明らかにすることである。そこで、TransCom-CH₄ Experiment を実施した他機関モデルの計算結果と比較することで NICAM-TM のメタン輸送特性を把握する。モデル間での南北方向および鉛直方向への輸送を比較しやすくするために、赤道上 900 hPa を基準とした緯度帯平均メタン濃度（偏差）にて比較した。2007 年の CTL による NICAM-TM のメタン濃度の緯度帯平均偏差を図 3.2 (a) に、他機関モデルのメタン濃度の緯度帯平均偏差を図 3.2 (b) 示す。メタンの排出は地表からであるため、メタン排出量が多い北半球高緯度域における最下層（900 hPa）の濃度がどのモデルも最も高い。この高濃度のメタンは上空に輸送されながら南進し、大気中での分解反応を通じて南に向かうにつれてメタン濃度が徐々に減少している。いずれのモデルも赤道付近に上空まで北半球と南半球を隔てるようなメタン濃度勾配が存在しており、これは熱帯海洋上に多く存在する OH との反応を示している。今回、年平均値として比較したため、いずれのモデルも大気中メタン濃度場は年間スケールでこのような傾向を示している。また、他機関モデルとの比較から NICAM-TM のメタン濃度の南北方向・鉛直方向分布はモデル間の中間的な傾向にある。

TransCom-CH₄ Experiment では、実験設定としてメタンの化学反応系および物質データはモデル間で統一されており、異なる点は各モデル方程式系と気象場の再現に利用されるナudgingデータである。モデル間の違いとして特徴的であるのは、両半球中高緯度の約 200 hPa より高い高度におけるメタン濃度である。この気圧面付近は対流圏と成層圏の圏界面であり、赤道域では気温が高いため対流圏界面の高度が高くなる。それゆえ、この気圧面における大きなメタン濃度勾配が存在する高度は概ね圏界面を示しているといえる。図 3.2 (a) より CAM と MOZART は圏界面高度が高く、ACCESS と CCAM は圏界面高度が他のモデルと比較して低い。圏界面高度の違いは各圏におけるメタン濃度の変化要因となるが、NICAM-TM は圏界面高度もモデル間の中間的な傾向にある。

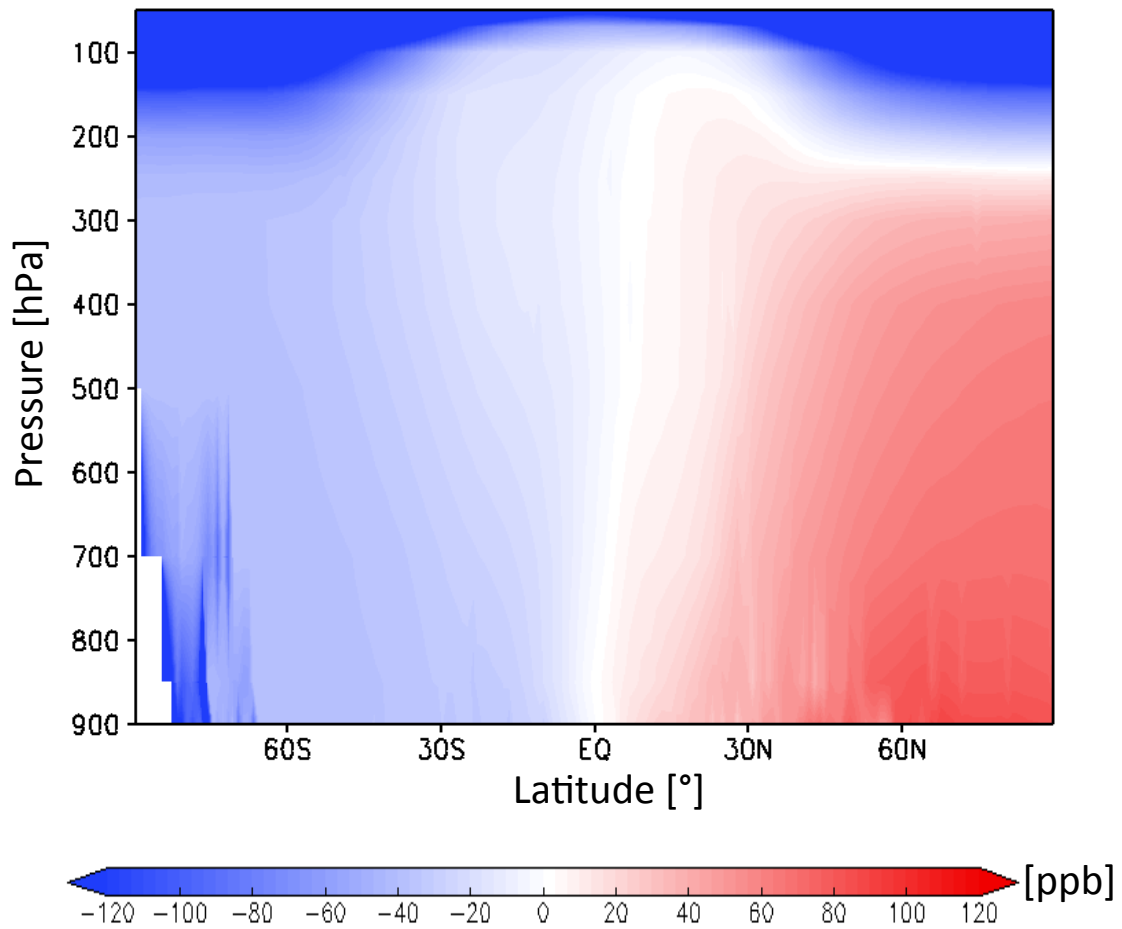


図 3.2 (a) : NICAM-TM によるメタン濃度の緯度帯平均偏差
 期間 : 2007 年 (年平均) 横軸 : 緯度 [°]、縦軸 : 気圧 [hPa]
 カラースケール : 赤道上 900 hPa のメタン濃度を 0 とした時の差分 [ppb]
 シナリオ : CTL
 メタンの排出量が多い北半球高緯度域の下層のメタン濃度が最も高い。

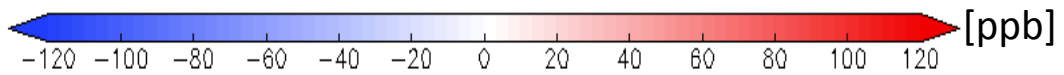
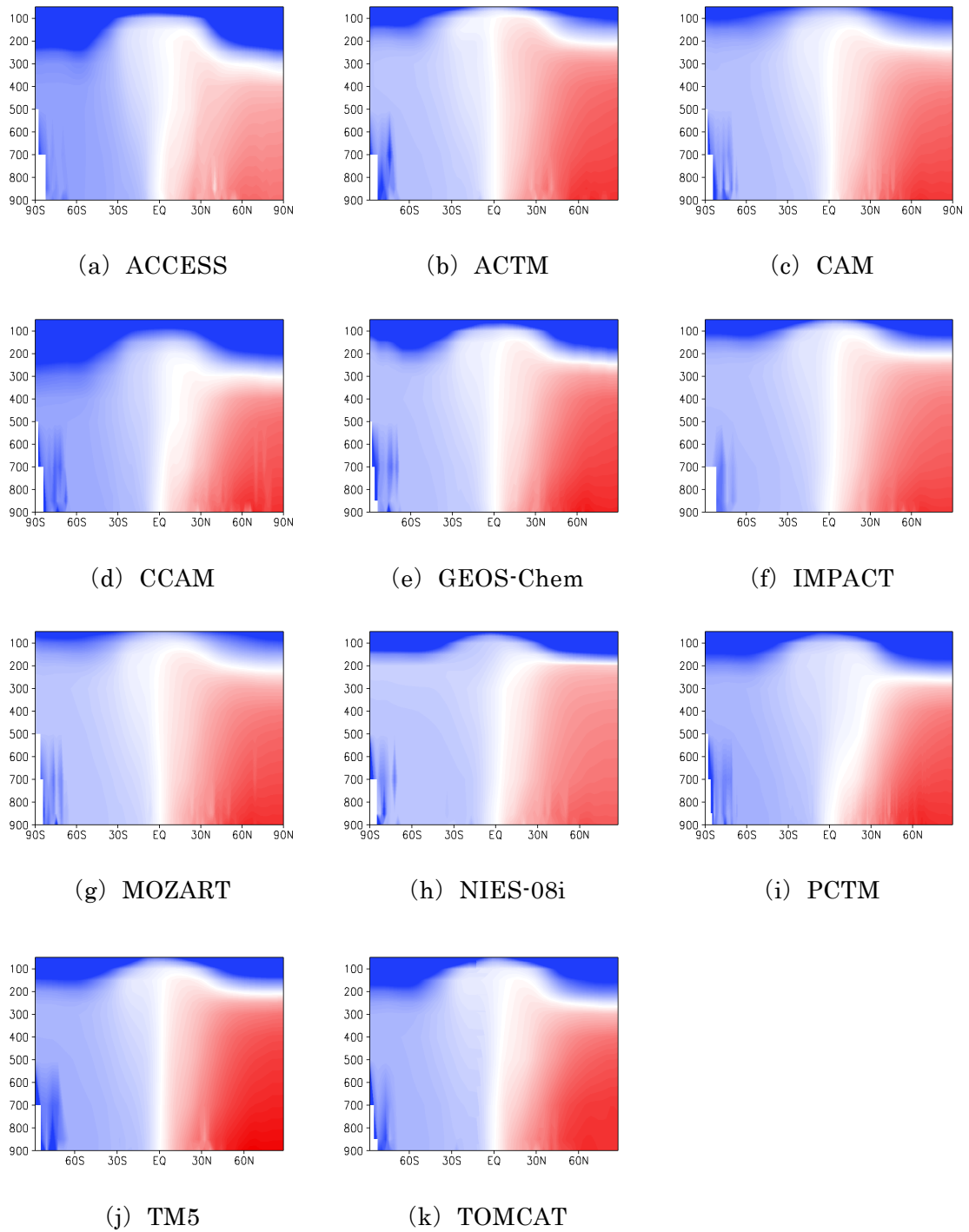


図 3.2 (b) : 他機関モデルによるメタン濃度の緯度帯平均偏差

期間 : 2007 年 (年平均) 横軸 : 緯度 [°]、縦軸 : 気圧 [hPa]

カラースケール : 赤道上 900 hPa のメタン濃度を 0 とした時の差分 [ppb]

シナリオ : CTL

3.3 地上観測データとの比較

メタン濃度の地上観測データと比較することで、NICAM-TM による大気中メタン濃度の再現性を確認する。

(1) 連続観測データ

地上サイトにおける NICAM-TM のメタン濃度変化の再現性を確認するために、Alert (82.45°N, 62.52°W, 210 m)、与那国島 (24.47°N, 123.02°E, 30 m)、南鳥島 (24.30°N, 153.97°E, 8 m)、Cape Point (34.35°S, 18.49°E, 260 m) の四地点における、WDCGG より配布されている連続観測データと比較した。これらのサイトを選択した理由は、いずれも 2007 年に連続観測を行っており、Alert は極域にある北アメリカの湿地付近の観測点、与那国島はアジアの人為排出源付近の観測点、南鳥島は海洋上の代表点かつ地理的に与那国島と近くその比較も行える観測点、Cape Point は南半球における観測点であるためである (図 2.3、2.4)。日間隔の観測データを用いるため、観測サイトにおける 1 時間ごとのモデル計算結果は日平均に変換した。また、排出シナリオ間のメタン濃度の季節変化を検証するために、それぞれの年間平均値による差分として比較した。図 3.3 に 2007 年における各観測サイトにおけるメタン濃度の観測データおよびモデルによる計算結果を示す。図 3.3 について、各観測点におけるモデルによるメタン濃度の再現性を排出シナリオ間の違いと短時間変動との関係に注目しながら見ていく。

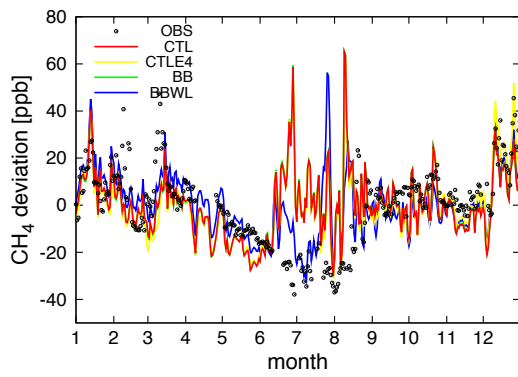
Alert において、シナリオ間の違いとして特徴的であるのは、夏の BB と BBWL の違いである湿地の排出データによる影響である。観測データは 8 月の半ばに特異的に高濃度な日が数日あるのみで 7 月、8 月はいずれも濃度が低い。CTL、CTLE4、BB に用いられている湿地 A は夏に濃度が高く現れる一方で、BBWL に用いられている湿地 B は 8 月に一時的な高濃度となる日があるものの観測データと似た傾向を示している。すなわち、シナリオ間の違いによる現象であり、モデルにより再現できないものではないといえる。その他の時期として、観測データに現れている 2 月から 3 月初頭にかけての濃度の一時的な減少、3 月半ばから 6 月初頭にかけての濃度の減少、11 月から 12 月にかけての濃度の増加がいずれのシナリオによる計算結果にも見られる。

与那国島において、シナリオ間の違いとして特徴的であるのは、年間を通しての人為起源の排出データによる影響であり、CTL に用いられている人為起源 A よりも CTLE4 に用いられている人為起源 B の方がその季節変動幅は大きい。数日スケールのメタン濃度の増減は、いずれも同じタイミングで生じており、シナリオ間の違いによらない現象であるといえる。メタンは寿命約 12 年であり、これまでの結果を踏まえると数日スケールの現象にイベント的にメタンの消失反応は寄与せず、排出源と輸送により大気中メタン濃度の変化はほぼ決定される。すなわち、バックグラウンド濃度に対し数日スケールでイベント的に濃度が増加する現象は、モデル内で輸送されているメタンの高濃度の塊が、風の影響で観測位置に流入して生じているといえる。観測データにもこのようなイベント的なメタン

濃度の増加は見られるもののモデルより頻度が低い。モデルの解像度（本研究では平均格子間隔 ~ 240 km）をより高解像度にする事で、これらの現象の再現性をさらに高めることができると考えられる。数週間スケールについては、観測に見られる 5 月下旬から 6 月上旬にかけての高濃度や、7 月中旬から 8 月中旬にかけての低濃度が現せていないものの、9 月初旬から中頃にかけて濃度が増加する現象や 10 月に入り濃度が 80 ppb 近く増加する現象などは再現している。

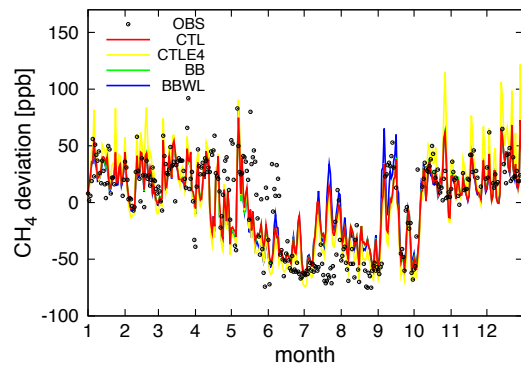
南鳥島において、人為起源の排出要素間の違いが多少あるが、地理的に近い与那国島ほど大きくない。また、与那国島は夏と冬の間での濃度変化が 100 ppb 程度あるのに対して、南鳥島は 70 ppb 程度であり、季節的なメタン濃度変化の振幅も小さい。また、3 月末から 5 月半ばにかけて濃度が減少しているが、与那国島と比較すると年間を通してのメタン濃度変化はなめらかである。4 月下旬や 6 月下旬に見られるイベント的な濃度増加のいくつかは現せていないものの、季節的なメタン濃度の変化をモデルは再現している。

Cape Point において、観測データに見られるメタン濃度の季節変化はとてもなめらかである。Cape Point は南半球にあるため北半球とは夏・冬とは逆となり、夏となる 12 月、1 月、2 月にメタン濃度が低くなるが、モデルはこれらを忠実に再現している。また、この観測点近傍はバイオマス燃焼による排出源が存在するが（図 2.4）、その違いはほとんど見られない。



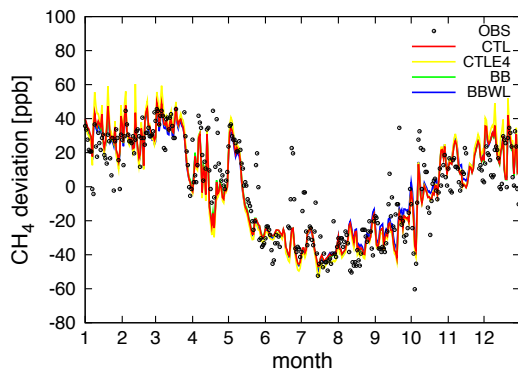
(a) Alert

(82.45°N, 62.52°W, 210 m)



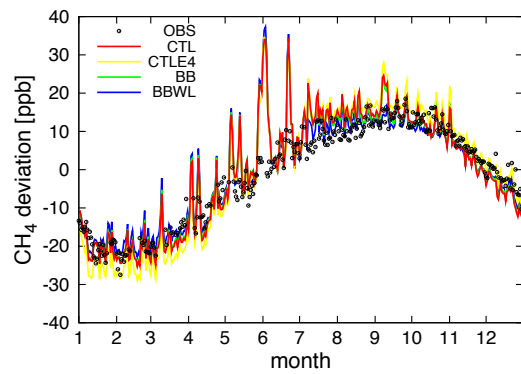
(b) 与那国島

(24.47°N, 123.02°E, 30 m)



(c) 南鳥島

(24.30°N, 153.97°E, 8m)



(d) Cape Point

(34.35°S, 18.49°E, 260 m)

図 3.3： 地上観測点におけるメタン濃度偏差の時系列変化

期間：2007 年

横軸：時間 [月]

縦軸：メタン濃度の差分 [ppb]

○点：観測データ（日間隔）（WDCGG よりダウンロード）

線：各シナリオに基づくモデル値（日平均値）

縦軸のメタン濃度の差分は、各データから年平均濃度を引いたものである。

メタン濃度が夏に低くなり、冬に高くなる様子をモデルは再現している。

(2) 南北勾配データ

NICAM-TM の大規模なスケールの現象である南北半球間輸送の検証をするために、GLOBALVIEW-CH₄, 2009 と比較した。本研究では陸面からの排出影響をあまり受けない海洋上の選択されたサイトのメタン濃度データのみを用いて緯度帯ごとにスケーリングされたデータセット Marine boundary layer (MBL)を用いた。モデル値は地上付近のメタン濃度の計算結果に対し陸面をマスキングをすることで海洋上のメタン濃度だけ抜き取り、その値に対して緯度帯ごとの平均をとった。また、各季節におけるメタン濃度の南北勾配を評価するため、観測データは 90°S のメタン濃度を 0 とした時の偏差として、モデル計算結果は海洋上の最南に位置する緯度 (77.5°S) のメタン濃度を 0 とした時の偏差として比較した。図 3.4 に 2007 年の各季節における地上付近メタン濃度の南北勾配を示す。

図 3.4 より、観測データの南北のメタン濃度差は、MAM (3 月、4 月、5 月) は 150 ppb、JJA (6 月、7 月、8 月) は 110 ppb、SON (9 月、10 月、11 月) は 130 ppb、DJF (12 月、1 月、2 月) は 150 ppb であり、JJA の南北勾配が最も小さく、DJF から MAM にかけて南北勾配が最も大きい。また、いずれの季節も北半球中・高緯度から南半球低緯度にかけて濃度が大きく変化する。これはメタンの主な排出が北半球高緯度域に多いことと、南半球に向かうにつれて熱帯海洋上の OH と反応して消失することに対応し、季節性は大気中の OH 数密度が紫外線強度と水蒸気の濃度変化に依存する。以下、特徴的な緯度域について各季節と排出シナリオに注目して見ていく。

南半球はシナリオ間に大きな違いがない。90°S から 30°S は観測データに見られる濃度勾配をモデルはよく再現している。30°S から 0°の MAM、JJA、SON についても再現しているが、DJF は観測データより一様に低い値となっている。地上付近のメタン濃度が下がる原因としては、メタンの分解物質である OH との反応が強いことと鉛直輸送が卓越していることが挙げられるが、メタンの寿命は約 12 年であり、これは数ヶ月スケールでの濃度減少であることから、モデルの鉛直輸送が過大であるといえる。

北半球について 0°から 20°N は季節によりモデルは観測データと異なる様相を示している。JJA は観測データと似ているものの、MAM、SON、DJF は観測よりモデルのメタン濃度が高く、これらは排出シナリオ間の違いによるものではない。すなわち、モデルの鉛直輸送が過小であることがいえる。一方で、20°N から 90°N にかけては MAM、SON、DJF はいずれも観測データに見られる濃度勾配を再現しており、JJA のみ異なる様相をしている。JJA は 10°N から 50°N にかけて観測よりモデルのメタン濃度が低く、これらは排出シナリオ間の違いによるものではないことから、モデルの鉛直輸送が過大であることがいえる。JJA の 50°N から 90°N は観測よりモデルのメタン濃度が高いが、排出シナリオ間の違いが全緯度域、全季節において最も顕著に現れていることから、排出シナリオの不確実性が最たる原因であるといえる。4 種類のシナリオの中では BBWL が最も観測データに近い濃度勾配を示しており、これは 3.3 節における Alert の結果にて、夏の BBWL が

4種類のシナリオの中で最も観測データの再現性の高いものであった結果と対応する。

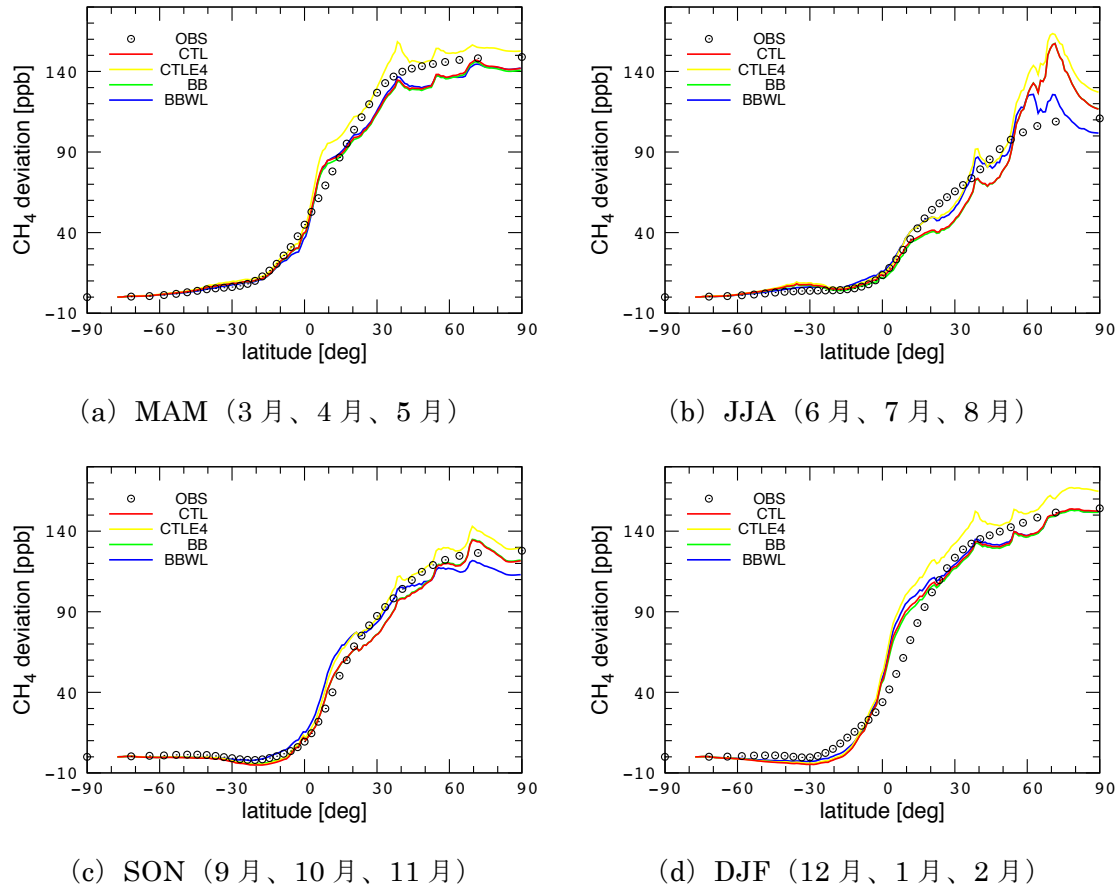


図 3.4 : 地上付近におけるメタン濃度偏差の南北勾配

期間 : 2007 年

横軸 : 緯度 [°]

縦軸 : メタン濃度の差分 [ppb]

○点 : 観測データ (季節平均) (GLOBALVIEW-CH₄, 2009, MBL)

線 : 各シナリオに基づくモデル値 (季節平均)

縦軸のメタン濃度の差分は、各データから (モデル : 海洋上の最南緯度、観測 : 90°S) の濃度を引いたものである。

いずれの季節も北半球の高緯度の濃度が高く、南半球の濃度は低い。

3.4 上空観測データとの比較

NICAM-TM の長距離輸送の検証をするために、上空におけるメタン濃度観測データである CONTRAIL データと比較した。今回、観測データは東京・シドニー間の JAL 定期航空便において観測されたものであり（図 2.3）、各緯度帯でサンプリングされたものを季節ごとに平均化して使用した。観測データと対応するモデル結果として、本研究では、モデルの高度 300 hPa 面のメタン濃度の計算結果を利用し、JAL 定期航空便の航路である 140°E から 150°E を季節ごとに平均化した。また、各季節におけるメタン濃度の南北勾配を評価するために、観測データは赤道近傍の観測緯度（± 2.5°）におけるメタン濃度を 0 とした時の偏差として、モデル結果については赤道濃度を 0 とした時の偏差として比較した。図 3.5 に 2007 年の各季節における上空メタン濃度分布を示す。

図 3.5 より、3.3 節の地上付近とは異なり上空 300 hPa においては排出シナリオ間の違いによるメタン濃度の計算結果の違いはほとんどなく、北半球高緯度になるにつれて多少見られるが、最大で JJA の 10 ppb 程度である。一方で、地上（海洋上）付近のサイトと比べ、季節ごとに大きく異なる特徴を示している。

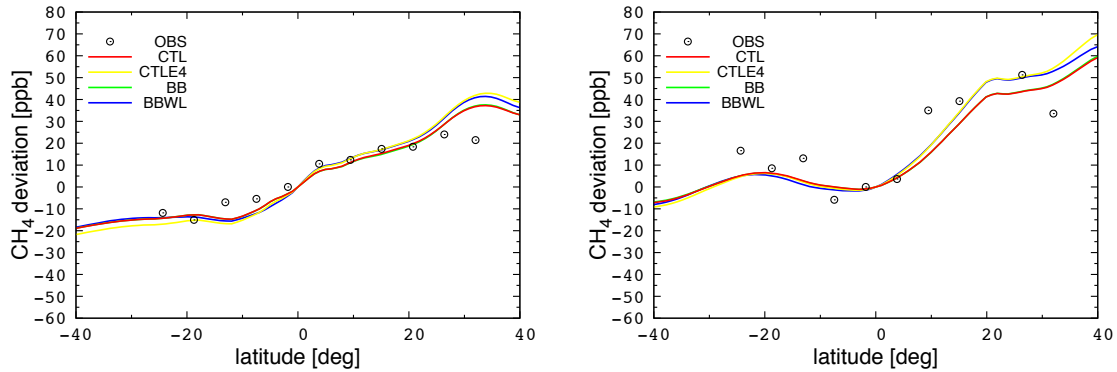
MAM について、観測データは南に向かうほど濃度が低く、北に向かうに向かうほど濃度が高い。モデルもその傾向を示しており、30°S から 25°N にかけて観測データと近い濃度を示しているが、30°N においては観測より濃度が高い。

JJA について、メタン濃度の極小値は赤道付近に見られ、これは熱帯海洋上の OH との反応によるメタン濃度の減少である。モデルもその特徴を再現しており、この結果は図 3.2 のメタン濃度の緯度帯平均偏差にて、赤道付近に上空まで北半球と南半球を隔てるようなメタン濃度勾配が存在していたことと対応する。

SON について、メタン濃度の極小値は赤道付近に見られるが、南半球と赤道付近の濃度差は 20°S にて 10 ppb 程度である。一方で北半球と赤道付近の濃度差は大きく、20°N にておよそ 60 ppb である。モデルもメタン濃度の極小値が赤道付近であり、30°S から 20°N にかけて観測データと近い濃度を示しているが、20°N から 30°N においては観測より濃度が低い。

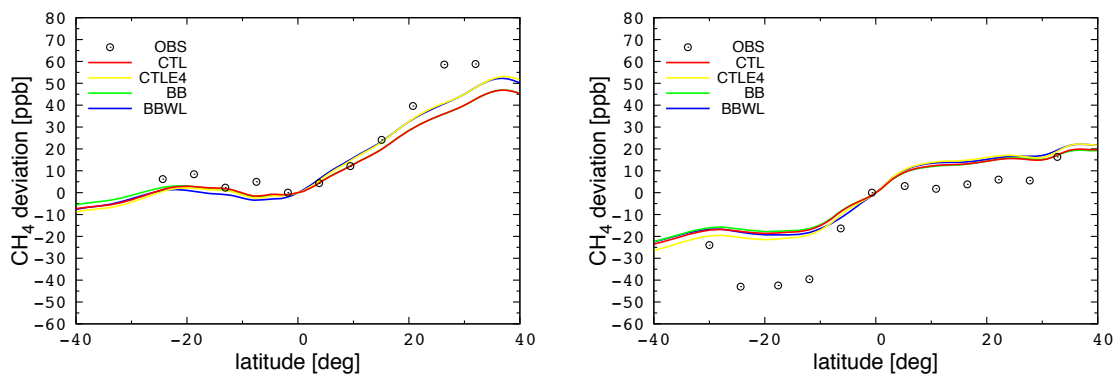
DJF について、メタン濃度の極小値は 20°S 付近に見られる。モデルは赤道域以外の緯度にて観測データよりも一様に濃度が高い。今回赤道におけるモデル結果とその近い緯度における観測データをそれぞれ基準として比較しているため、基準緯度のモデル結果が観測と大きく異なる場合、比較する際に違いが大きく見える影響が出る。しかし、この影響を加味しても 20°S 付近における観測データに見られる低濃度はモデルにて現せていない。この原因の一つとして、鉛直輸送の過大評価が考えられる。メタンの排出は地上付近からのみであるため、上空において観測より濃度が高いことは地上から排出された高濃度のメタンが上空まで輸送されていることに対応する。3.3 節における地上南北勾配の結果にて、DJF のみ 30°S から 0°について観測データより一様に低い濃度となっており、その原因と

して鉛直輸送が大きいことが示唆された。3.3 節と観測地点は異なるものの、同じ季節、緯度帯にて生じている現象であることから、鉛直輸送の過大評価が原因の一つといえる。



(a) MAM (3月、4月、5月)

(b) JJA (6月、7月、8月)



(c) SON (9月、10月、11月)

(d) DJF (12月、1月、2月)

図 3.5： 上空におけるメタン濃度偏差の南北勾配

期間：2007 年

横軸：緯度 [°]

縦軸：メタン濃度の差分 [ppb]

○点：観測データ (季節平均) (CONTRAIL)

線：各シナリオに基づくモデル値 (季節平均)

縦軸のメタン濃度の差分は各データから (モデル：赤道、観測：赤道 ± 0.25° の観測点) の濃度を引いたものである。

季節ごとの特徴が見られ、中でも JJA の赤道域の濃度の減少、DJF の南半球での濃度の減少が目立つ。

3.5 鉛直プロファイルデータとの比較

モデルによるメタンの鉛直輸送を検証するために、NIES が航空機により観測している西シベリアの Novosibirsk (55°N, 83°E) におけるメタン濃度の鉛直プロファイルデータと比較した。観測データは地上 500 m から 7000 m にかけて local time で 14:00 頃に記録されたものであるため、比較用のモデルの計算結果も local time で 13:00 から 16:00 のものを平均して利用した。図 3.6 に 2007 年 8 月 10 日と 2007 年 12 月 30 日の結果を示す。

図 3.6 (a) 8 月 10 日について、観測データは高度約 1 km までメタン濃度が一様であるのに対し、モデルはいずれの排出シナリオも高度約 2 km まで濃度が一様である。また、観測は 1~2 km にかけて、モデルは 2~3 km にかけて濃度が減少し、それより高い高度 (~7 km) では濃度がほぼ一定となる。これは夏の特徴的な現象である、大気が地表面でよく混ぜられ地上付近の高濃度のメタンが上空まで攪拌されて上空でも濃度が高くなることをモデルが再現していることを示しているが、観測データとの比較よりモデルの混合はやや強いといえる。すなわち、全シナリオのうち最も観測に近い CTLE4 を例にとると、~1.5 km にかけて観測より濃度が低いのは、よりメタン濃度の低い上層の大気と混ざり合っているためであり、1.5~3.0 km にかけてはメタン濃度の高い下層の大気と混ざり合っているため観測より濃度が高くなっている。排出シナリオ間の違いに注目すると、CTL と BB の違いであるバイオマス燃焼データ間の違いはなく、BB と BBWL の違いである湿地データ間の違いが 3 km まで現れている。一方で、CTL と CTLE4 の違いである人為起源データ間の違いはいずれの高度にても同程度の濃度差が存在している。

図 3.6 (b) 12 月 30 日について、~1 km にかけてメタンの観測濃度は減少しており、モデルもいずれの排出シナリオにて濃度が減少している。1 km より高い高度では濃度はほとんど変化していない。これは冬の特徴的な現象である、大気が安定するためメタン排出源のある地上付近は大気中メタンが高濃度となり、上空では濃度が低くなることをモデルが再現していることを示しており、観測データとの比較よりモデルのその再現性の高さがわかる。排出シナリオ間の違いに注目すると、CTL と BB の違いであるバイオマス燃焼データ間の違いがないのに加え、BB と BBWL の違いである湿地データ間の違いもない。これは冬は湿地からのメタン排出がほとんど無いことに対応する。夏と同様、CTL と CTLE4 の違いである人為起源データ間の違いはいずれの高度にても同程度の濃度差が存在しており、最も観測に近いのは CTLE4 シナリオによる計算結果である。

以上より、モデルの夏の混合層発達はやや強いことも示唆されたが、冬の安定成層をはじめとするメタン濃度鉛直プロファイルの季節的な特徴をモデルは現せられることが確認された。また、排出シナリオ間の相違から、観測値との比較を通じて、より確からしい排出シナリオを推定できる可能性が示唆された。

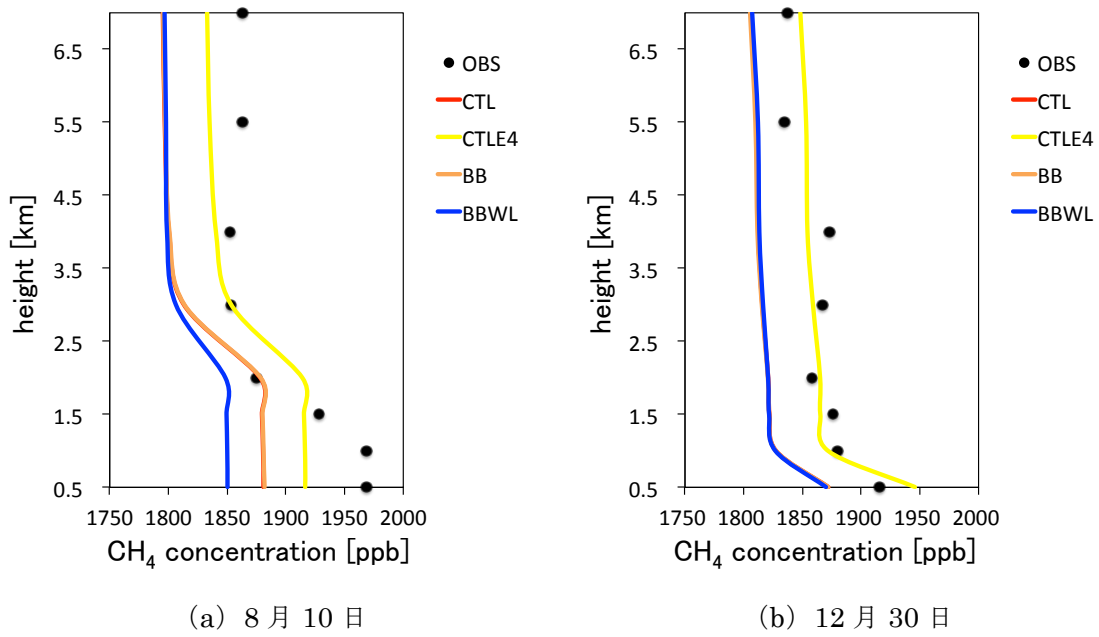


図 3.6 : メタン濃度の鉛直プロファイルと各排出シナリオによるモデル計算結果
 サイト : Novosibirsk (55N°, 83E°)、local time GMT + 6 h

期間 : 2007 年

横軸 : メタン濃度 [ppb]

縦軸 : 高度 [km]

○点 : 観測データ (航空機) (local time 14:00)

線 : 各シナリオに基づくモデル値 (local time 13:00 ~ 16:00 平均)

季節によりメタンが高濃度である高度が異なる。排出シナリオ間の違いも目立つ。

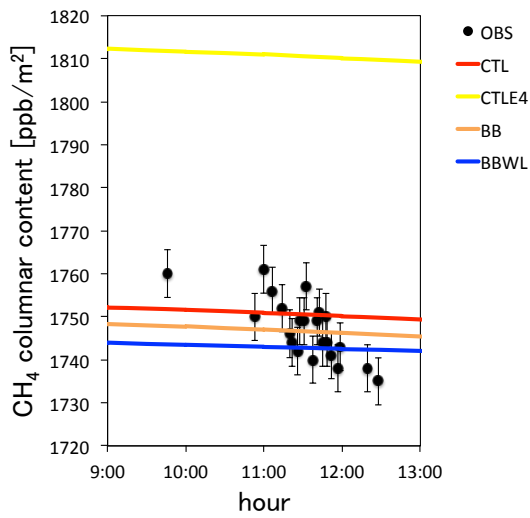
3.6 気柱濃度データとの比較

これまで各高度においてメタン濃度が大きく異なることを確認してきた。鉛直方向に対する濃度の再現性として、地上から上空にかけての平均的なメタン濃度である気柱濃度による評価法がある。すなわち、大気中の平均的なメタン濃度場という観点からモデル計算結果が観測データに近いことがいえれば、そのモデルを利用して計算した結果は、各領域におけるメタン濃度の代表的な指標を示す手段と成ると考えられる。

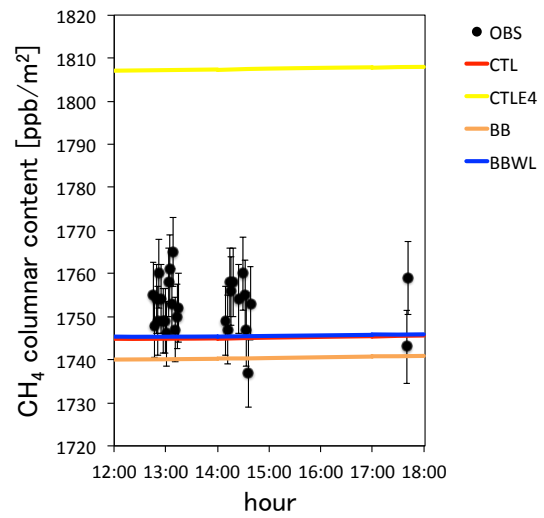
そこでモデルの気柱濃度の再現性を検証するために、CEPL が地上 FTS により観測している西シベリアの Kourovka (57.04°N, 59.55°E) における観測データを用いて比較した。本研究にあたり、CEPL より 2010 年以降の気柱濃度観測データを提供して頂いた。2010 年は、TransCom-CH₄ Experiment における最終年の 2007 年を超えているため、それと対応するモデル結果を用意する必要がある。TransCom-CH₄ Experiment では 2008 年までの排出シナリオを提供しているため、2008 年のシナリオを利用し、2008 年、2009 年、2010 年のモデル計算を追加的に実施した。その際に、大気を再現するためのナッジングデータには 2008 年から 2010 年の各年のものを利用した。観測データは local time で記録されていたため、比較用のモデルの計算結果も local time に換算した。西シベリアにおけるメタンの気柱観測データと各排出シナリオを用いた際の計算結果を図 3.7 に示す。図 3.7 より CTL、BB、BBWL は気柱濃度が観測データに近いが、CTLE4 は 50 ppb から 60 ppb ほど観測データより高い。CTLE4 がこのようになる原因は人為起源排出データによるもので、2007 年までの大気中へのメタン貯留量が大きい影響が 2010 年結果に出ていることも考えられる。

CTL、BB、BBWL に注目すると、図 3.7 (a) 7 月 1 日は CTL と BB のバイオマス燃焼による違いが約 5 ppb、BB と BBWL の湿地による違いが約 5 ppb の差として現れており、図 3.7 (b) 9 月 21 日はバイオマス燃焼による違いが約 5 ppb の差としてあるものの、BB と BBWL の湿地による差はほとんどない。湿地排出による差はその季節性に対応する。また、これまでの結果ではバイオマス燃焼データ間の違いがあまりなかったが、西シベリアにおける気柱濃度にはその違いが現れた。本研究で用いた 2 種類のバイオマス燃焼によるメタンの主な排出領域は、図 2.4 よりアフリカ、インド、南アメリカが挙げられる。すなわち、西シベリア大気上空で、これらの赤道直下の大陸におけるメタン排出影響が出ることを示唆された (議論 4 章)。それゆえ、気柱濃度はグローバルなスケールでの各排出源の情報を持っており、その地点における物質の大気中濃度の指標となるといえる。

本研究で用いた排出シナリオは最も細かい時間分解能でも月ごとのデータであり (表 2.1)、ナッジングも 6 時間間隔で行なっていることから、観測に見られる数十分、数時間スケールでのメタン濃度の微小変化までは捉えていないが、この結果から、モデルのメタン気柱濃度の再現性は確かめられた。



(a) 7月1日



(b) 9月21日

図 3.7： メタン気柱濃度と各排出シナリオによるモデル計算結果

サイト：Kourovka (57.04°N, 59.55°E)、local time GMT + 6 h

期間：2010年

横軸：時間 [hour] (local time)

縦軸：メタン気柱濃度 [ppb/m²]

○点：観測データ (地上 FTS)

線：各シナリオに基づくモデル値 (1時間値)

数十分、数時間スケールでのメタン気柱濃度の変化が観測データに見られる。

気柱濃度は排出シナリオ間で大きく異なる。

4 西シベリアにおける大気中メタンの起源の解析

3章にて、国際的な枠組みに則ったメタン輸送実験 TransCom-CH₄ Experiment を実施した結果、NICAM-TM が他機関モデルと同等の性能を持つこととその特徴が確認された。本章では、本モデルを用いて西シベリアにおけるメタン濃度の鉛直プロファイルに焦点を当てた解析をした。3.5節にて季節的な特徴が見られた Novosibirsk (55°N, 83°E) において、各高度におけるメタン濃度増加に及ぼす各排出領域・排出要素の寄与率を評価した(参照 2.3.3節)。3.5節にて最も観測データに近い濃度プロファイルを示した CTLE4 シナリオを用いて、2007年夏・冬について評価した結果を図 4.1 に示す。

図 4.1 (a) 夏について、混合層の発達により地上付近から排出されたメタンは上層まで混ぜられ、高度 2.0 km までローカルな排出源である西シベリアからの排出が支配的である。高度 2.0 km における各領域の寄与率は、西シベリア 23.1 %、東シベリア 4.7 %、北アメリカ 13.9 %、ヨーロッパ 18.7 %、アジア 23.1 %、その他 16.5 %である。高度 2.0 km より上空ではアジアからの排出が支配的となり、高度 5.5 km における各領域の寄与率は、西シベリア 8.8 %、東シベリア 3.5 %、北アメリカ 17.1 %、ヨーロッパ 20.7 %、アジア 28.9 %、その他 21.1 %である。

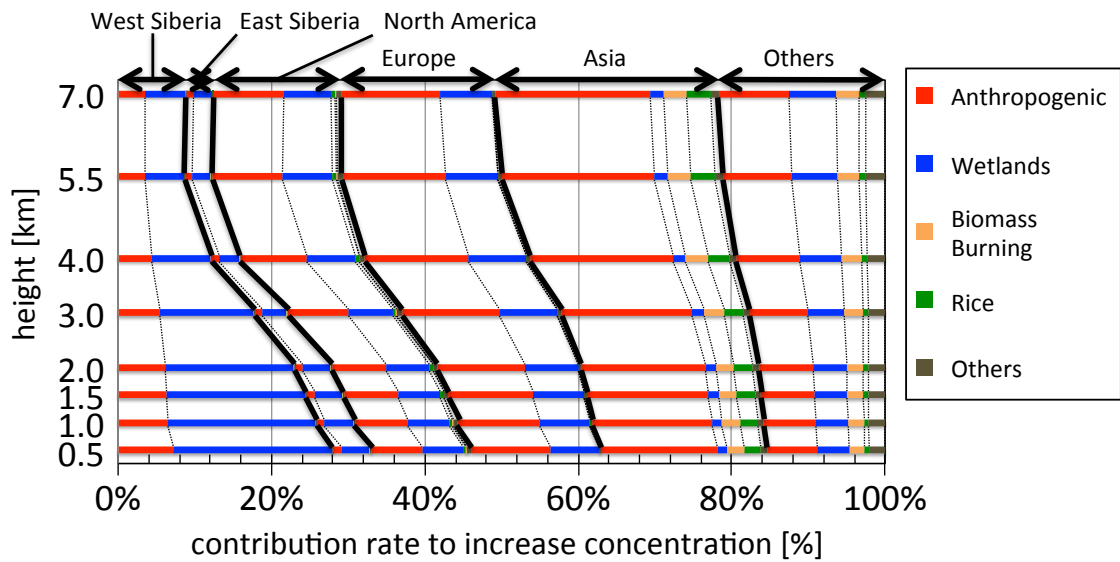
夏の西シベリアからのメタン排出による濃度増加に対する排出要素ごとの内訳は、高度 2.0 km において、人為起源 26.6 %、湿地 72.5 %、バイオマス燃焼 0 %、水田 0.03 %、その他 0.8 %であり、高度 5.5 km において、人為起源 40.9 %、湿地 57.9 %、バイオマス燃焼 0 %、水田 0.03 %、その他 1.1 %である。この結果から、夏の排出が大きい湿地からの排出による影響は下層にて大きいことがわかる。

図 4.1 (b) 冬について、安定成層により地上付近から排出されたメタンは鉛直方向にあまり混ざらないため、高度 0.5 km と高度 1.0 km の間における排出領域の寄与率の変化が特徴的である。高度 0.5 km における各領域の寄与率は、西シベリア 17.1 %、東シベリア 2.2 %、北アメリカ 10.1 %、ヨーロッパ 22.3 %、アジア 31.9 %、その他 16.4 %であり、高度 1.0 km においては、西シベリア 8.6 %、東シベリア 2.6 %、北アメリカ 12.9 %、ヨーロッパ 25.6 %、アジア 30.0 %、その他 20.2 %である。

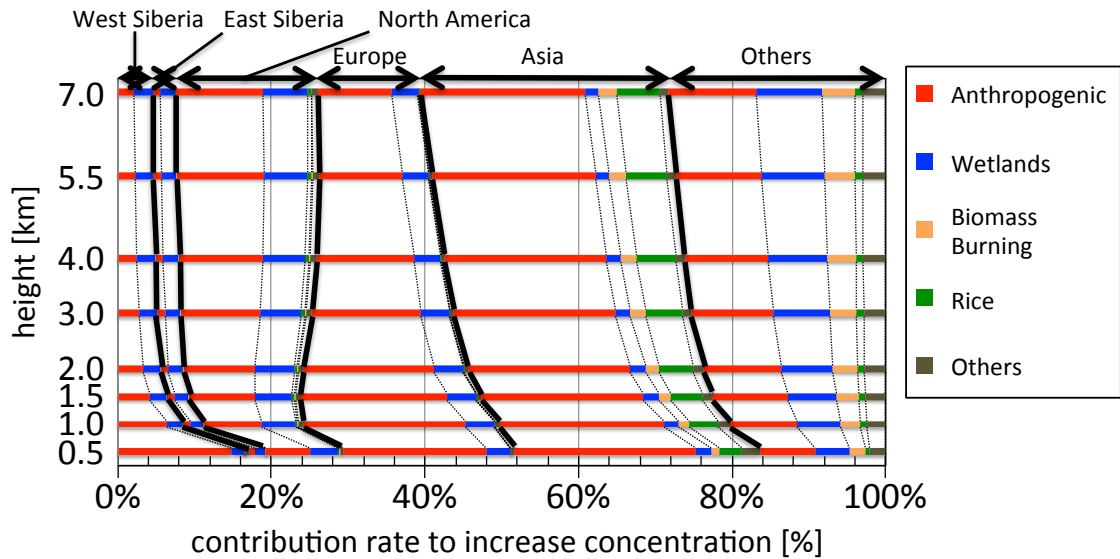
冬の西シベリアからのメタン排出による濃度増加に対する排出要素の内訳は、高度 0.5 km において、人為起源 86.3 %、湿地 10.0 %、バイオマス燃焼 0 %、水田 0.01 %、その他 3.6 %であり、高度 1.0 km において、人為起源 73.4 %、湿地 24.5 %、バイオマス燃焼 0 %、水田 0.02 %、その他 2.1 %である。この結果から、湿地からの排出が抑えられる冬に相対的に排出が大きくなる人為起源の排出による影響は下層にて大きいことがわかる。

以上より、メタン濃度の鉛直プロファイルの特徴は、鉛直輸送の季節変化と要素ごとの排出量の季節変化の兼ね合いで決まり、西シベリアにおいて、夏は混合層の発達により高度 2 km まで西シベリアのローカルな排出影響が支配的であり、その 72.5 %以上は湿地による排出であること、冬は安定成層と湿地による排出がほとんどなくなり、高度 0.5 km

では西シベリアのローカルな排出影響の 86.3 %は人為起源による排出であること、いずれの季節も上空になるにつれアジアをはじめとする他の領域の排出影響が支配的となることが明らかとなった。



(a) 夏 (JJA)



(b) 冬 (DJF)

図 4.1： 各排出領域、排出要素が西シベリアの大気中メタン濃度増加に及ぼす寄与率
サイト：Novosibirsk (55N°, 83E°)

期間：2007 年 (季節平均)

横軸：濃度増加への寄与率 [%]、縦軸：高度 [km]

シナリオ：CTLE4

5 西シベリアからのメタン排出が北極圏に与える影響の解析

4 章では西シベリアの大気中メタン濃度に対する各領域からの排出影響を定量的に評価した。本章では西シベリアからのメタン排出が他の地域に与える影響を評価する。本章では定量評価に気柱濃度を用いる。気柱濃度を用いる理由は、地上から上空にかけての平均的な濃度であるため、その地域の大気中メタンの代表的な値として評価できると考えたためである。対象地域を温暖化が懸念される北極圏（66.56°N 以北）とした時の結果を以下に示す。

まず、西シベリアをはじめとする各領域からのメタン排出影響が北極圏のメタン気柱濃度増加に占める寄与率を求めた。2007 年における各排出シナリオごとの計算結果を表 5.1 に示す。表 5.1 より、西シベリアからの排出が占める寄与率は全球の 6.0 ~ 7.5 % であり、これはいずれのシナリオにても最も大きい寄与率を示したアジアの約 0.25 倍、同じ緯度帯に属する北アメリカの約 0.33 倍、ヨーロッパの約 0.45 倍、東シベリアの約 1.46 倍であることがわかる。

続いて、西シベリアの排出のみによる北極圏のメタン気柱濃度増加に対する各排出要素の割合を図 5.1 に示す。図 5.1 より、シナリオによる違いはあるものの、西シベリアからの人為起源と湿地による排出が北極圏に与える影響は概ね同程度であり、いずれのシナリオも人為起源と湿地による排出が西シベリアからの排出影響のおよそ 98 % を占めることがわかる。

北極圏のメタン気柱濃度増加に対する全球からの各排出要素の影響のうち、西シベリアの各排出要素が占める割合を表 5.2 に示す。表 5.2 より、西シベリアの各排出要素は全球からの各排出要素の影響に対して、人為起源 6.02 ~ 6.41 %、湿地 8.5 ~ 13.6 %、バイオマス燃焼 0.00 ~ 0.57 %、水田 0.04 %、その他 1.66 % であることがわかる。表 5.1 より西シベリアからの排出が占める寄与率は全球の 6.0 ~ 7.5 % であったことから、排出要素としては湿地による影響が大きい地域であるといえる。

西シベリアは人為起源の排出源である天然ガスの 2010 年生産量世界第 2 位、確認埋蔵量世界第 1 位のロシアの 8 割を生産している地域であり、今後 2030 年までのエネルギー戦略として、2008 年度比で 33 ~ 42 % 天然ガス生産量増加を見込んでいることから、今後天然ガス採掘に伴う人為起源のメタン排出量の増加することは十分に考えられる。本研究の結果、2007 年時点で西シベリアからの排出が北極圏のメタン気柱濃度増加に占める寄与率は全球の 6.0 ~ 7.5 % という大きさをもつ地域であることから、今後もこの地域からのメタン排出をモニタリングしていくことは重要である。

表 5.1： 北極圏のメタン気柱濃度増加に対する各領域の寄与率 (%)

\ 排出領域 シナリオ	西シベリア	東シベリア	北アメリカ	ヨーロッパ	アジア	その他
CTL	7.5	5.3	21.7	16.5	26.1	22.9
CTLE4	7.2	4.7	17.4	16.5	30.2	24.0
BB	7.5	5.5	21.7	16.5	26.2	22.6
BBWL	6.0	3.8	25.4	13.4	29.3	22.2

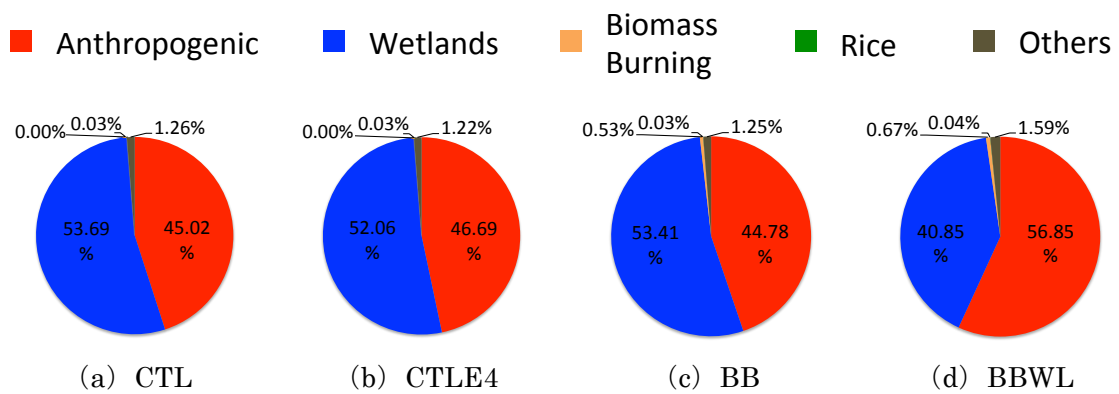


図 5.1： 西シベリアからの排出による北極圏のメタン気柱濃度増加に対する各要素の割合
期間：2007年（年間値）

西シベリアからのメタン排出が与える影響は人為起源と湿地による排出が支配的である。

表 5.2： 北極圏のメタン気柱濃度増加に対する全球からの各要素による影響のうち
西シベリアの各要素が占める割合 (%)

シナリオ\ 排出要素	人為起源	湿地	バイオマス燃焼	水田	その他
CTL	6.41	13.6	0.00	0.04	1.66
CTLE4	6.02	13.6	0.00	0.04	1.66
BB	6.41	13.6	0.57	0.04	1.66
BBWL	6.41	8.5	0.57	0.04	1.66

6 まとめ・今後の展望

本研究は、メタン排出源として重要な西シベリアにおける大気中メタンの起源に関する解析及び西シベリアからのメタン排出が北極圏に及ぼす影響を定量的に評価した。

まず、研究に用いる全球物質輸送モデル NICAM-TM のメタン輸送について、これまで一部の観測データとの比較にとどまっていたため、国際的な枠組みに則ったメタン輸送実験 TransCom-CH₄ Experiment を実施し、他機関モデルとの比較や観測データとの比較を行った。その結果、NICAM-TM の地上付近、上空におけるメタン濃度の季節変化の再現性をはじめ、地上付近の数週間スケールでの濃度変化や、季節的な鉛直プロファイルといった領域的なスケールに対する特性が確認され、本モデルが国際的にも通用する計算精度のモデルであることを確認できた。

そこで本モデルを用いて、メタンの排出領域・排出要素別シミュレーションを行い、西シベリアにおけるメタン濃度の季節変化・高度分布に対する各排出領域の影響を定量的に評価した。その結果、夏は混合層の発達により高度 2 km まで西シベリアのローカルな排出影響が支配的であり、高度 2 km での寄与率は 23 %で、その 73 %は湿地による排出であること、冬は安定成層により、高度 0.5 km における西シベリアの寄与率は 17 %で、その 86 %は人為起源による排出であることがわかった。いずれの季節も上空になるにつれ遠方の領域からの排出が支配的となり、最も寄与率が大いなのはアジアで、高度 7 km において夏は 29 %、冬は 32 %を占めることが明らかとなった。

続いて、西シベリアからのメタン排出が温暖化が懸念されている北極圏に与える影響について、排出要素間の違いに注目して定量的に評価した。その結果、2007 年における北極圏におけるメタン気柱濃度増加に対して、西シベリアからのメタン排出は全球の 6.0 ~ 7.5 %の寄与率をもっていたことがわかった。また、西シベリアの排出要素間での割合としては湿地と人為起源による排出影響が約 98 %であり、全球の各排出要素の影響に対する割合としては西シベリアの湿地は 8.5 ~ 13.6 %、人為起源は 6.02 ~ 6.41 %と、排出要素としては湿地による影響が大きい地域であることが明らかとなった。西シベリアは天然ガス採掘に伴う人為起源のメタン排出量の増加が予測されている地域であり、今後もメタン排出をモニタリングしていくことは重要である。

本研究にて、排出シナリオ間により北極圏における解析にて定量評価された寄与率に多少ばらつきが生じた。さらなる影響評価をしていく上では、より正確な排出源強度推定が不可欠である。今回 TransCom-CH₄ Experiment の結果、排出シナリオ間の相違から観測値との比較を通じて、より確からしい排出シナリオを推定できる可能性が示唆された。本研究で得られた西シベリアにおけるメタン濃度の鉛直プロファイルに対する、各排出領域・排出要素別の定量評価の結果を参照データとして、NICAM-TM を用いた航空機や衛星による観測データを併せたメタンのインバージョン解析を行なうことで、より確からしいメタンの排出源強度が推定可能になると考えられる。

謝辞

本研究では多くのデータを使用させていただきました。データを提供して下さいました皆様に心より御礼申し上げます。

TransCom-CH₄ Experiment の入力データおよび他機関モデル計算結果は Protocol for TransCom CH₄ intercomparison (Patra *et al.*, 2010) に掲載されている FTP サーバー (fxp.nies.go.jp) よりダウンロードさせていただきました。

Alert、与那国島、南鳥島、Cape Point における観測データはそれぞれ EC、JMA、JMA、SAWS により提供されたもので、WDCGG のサイト (http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg/jp/wdcgg_j.html) よりダウンロードさせていただきました。

GLOBALVIEW-CH₄, 2009 のデータは NOAA により提供されたもので、ftp://ftp.cmdl.noaa.gov/ccg/ch4/GLOBALVIEW/gv_ch4/ref_mbl_mtx.ch4 よりダウンロードさせていただきました。

CONTRAIL のデータは気象研究所松枝秀和氏より提供させていただきました。

シベリア鉛直プロファイルデータは環境研究所町田敏暢氏より提供させていただきました。

シベリア気柱濃度データは Ural Federal Univ. CEPL の Vyacheslav Zakharov 氏、Konstantin Gribanov 氏、Nikita Rokotyan 氏より提供させていただきました。

シベリアタワーデータは環境研究所笹川基樹氏より提供させていただきました。

大気輸送モデル NICAM-TM は東京大学大気海洋研究所気候システム研究系佐藤正樹教授、海洋研究開発機構富田浩文氏のモデル NICAM をベースとして気象研究所丹羽洋介氏により開発されたものであり、丹羽洋介氏より提供させていただきました。

本研究は、東京大学大気海洋研究所気候システム研究系今須良一准教授のご指導の下に行いました。今須先生には、本当に最後の最後まで温かくご指導いただき、深く心から感謝申し上げます。また、研究活動として、様々な機会を提供していただき、貴重な経験をすることができました。本当に有難うございました。

今須研究室の先輩である気象研究所の丹羽洋介氏には、本研究で用いたモデル計算のやり方を始め、研究の方向性に関しても、私の研究が行き詰まる度にいつも優しく丁寧に指導していただきました。深く心から感謝しております。本当に有難うございました。

気象研究所の松枝秀和氏、澤庸介氏、坪井一寛氏には、気象研究所を訪問する度にディスカッションにお付き合いいただき、研究に関する数々のご助言をいただきました。大気化学討論会にても心温かく接していただきました。本当に深く感謝申し上げます。有難うございました。

海洋研究開発機構 Prabir Patra 氏には、TransCom-CH₄ Experiment の代表者として本研究を進める上で多くのご助言をいただき、ディスカッションにもお付き合いいただきました。深く感謝申し上げます。有難うございました。

今須研究室の皆様には非常にお世話になりました。新井さんには飲み会の度に優しくしていただきました。染谷さんにはいつも優しく見守っていただきました。稲子谷さんには研究に対する真摯な姿勢を教えていただきました。小島さん、武田さん、永岡さんにはいつも明るく秘書室に迎えていただき、元気をいただきました。林さんには二年間様々な面からお世話になりました。プログラムの知識のない自分に計算機のことを一から教えていただき、発表の際にはいつも練習に付き合ってくださいました。研究活動だけでなく、視野の狭い私に様々な価値観や世界の広さを教えて下さいました。本当に皆様のおかげで有意義な研究生活を送ることができました。本当に有難うございました。

中島映至教授には2年間様々な面でお世話になりました。放射コロキウムでは研究の方向性について考えてくださり、放射グループとしての活動ではいつも素敵な環境を提供していただきました。中島研究室の皆様にも大変お世話になりました。皆様に深く感謝申し上げます。有難うございました。

気候システム研究系の皆様にも大変お世話になりました。荒金さんには壁にぶつかる私をいつも心温かく励ましていただきました。放射グループの先輩である五藤さんにはいつも優しくたくさんの面倒を見ていただきました。同グループの打田さんには英語の添削を

最後までしていただきました。また、同期の岩見君、出本君、永嶋君、西川君、廣田君、三澤君、宮地さんには大変お世話になりました。特に西川君と宮地さんには研究生生活だけでなく、私生活においても親しくしてもらいました。皆様のおかげで充実した研究生生活を送ることができました。本当に有難うございました。

自然環境学専攻の同期の皆様には居室が違いましたがいつも仲良く接していただき、飲み会などに誘っていただきました。皆様のおかげで楽しい大学院生活を送ることができました。本当に有難うございました。

皆様とここに書ききれないほどの多くの方々のおかげで、本当に充実した二年間の大学院生活を送ることができました。本当に心の底より、深く感謝申し上げます。

最後に、大学院進学に際し、新たな環境で学ぶことに理解を示し、25年間支えてくれた両親に感謝申し上げます。有難うございました。

参考文献

- Arakawa, A. and Schubert, W. (1974) : Introduction of cumulus cloud ensemble with the large-scale environment, Part I. *J. Atmos. Sci.*, 31 : 671–701.
- Bloom, A. A., P. I. Palmer, A. Fraser, D. S. Reay, and C. Frankenberg (2010) : Large - scale controls of methanogenesis inferred from methane and gravity spaceborne data. *Science*, 327 : 322-325.
- Bousquet, P., Ciais, P., Miller, J. B., Dlugokencky, E. J., Hauglustaine, D. A., Prigent, C., van der Werf, G. R., Peylin, P., Brunke, E.-G., Carouge, C., Langenfelds, R. L., Lathière, J., Papa, F., Ramonet, M., Schmidt, M., Steele, L. P., Tyler, S. C., and White, J. (2006) : Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability. *Nature*, 443 : 439–443.
- Brithish Petroleum (2011) : BP Statistical Review of World Energy 2011. <http://www.bp.com/sectionbodycopy.do?categoryId=7500&contentId=7068481>
- Chen, Y.-H., and R. G. Prinn (2006) : Estimation of atmospheric methane emissions between 1996 and 2001 using a threedimensional global chemical transport model. *J. Geophys. Res.*, 111, D10307, doi:10.1029/2005JD006058.
- Denning, A. S., M. Holzer, K. R. Gurney, M. Heimann, R. M. Law, P. J. Rayner, I. Y. Fung, S.-M. Fan, S. Taguchi, P. Friedlingstein, Y. Balkanski, J. Taylor, M. Maiss, and I. Levin. (1999) : Three-dimensional transport and concentration of SF₆: A model intercomparison study (TransCom 2). *Tellus*, 51B : 266–297.
- Etiopie, G. and Milkov, A. V. (2004) : A new estimate of global methane flux from onshore and shallow submarine mud volcanoes to the atmosphere. *Environ. Geol.*, 46, 997–1002.
- Fred Pearce (2005) : Climate Warning as Siberia Melts. *NewScientist.com*. <http://greenhouse.economics.utah.edu/pipermail/rad-green/2005-August/019074.html>
- Fung, I., John, J., Lerner, J., Matthews, E., Prather, M., Steele, L. P., and Fraser, P. J. (1991) : Three-dimensional model synthesis of the global methane cycle. *J. Geophys. Res.*, 96, 13033–13065.
- Goodland, R. (2005) : Oil and Gas Pipelines Social and Environmental Impact Assessment. IAIA 2005 Conference International Association of Impact Assessment 1330 23rd Street South, Suite C Fargo, ND 58103 USA.
- Huijnen, V., Williams, J., van Weele, M., van Noije, T., Krol, M., Dentener, F., Segers, A., Houweling, S., Peters, W., de Laat, J., Boersma, F., Bergamaschi, P., van Velthoven, P., Le Sager, P., Eskes, H., Alkemade, F., Scheele, R., Ndéléce, P., and Pätz, H.-W. (2010) : The global chemistry transport model TM5: description and

- evaluation of the tropospheric chemistry version 3.0. *Geosci. Model Dev.*, 3 : 445–473.
- Houweling, S., Kaminski, T., Dentener, F., Lelieveld, J., and Heimann, M. (1999) : Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model. *J. Geophys. Res.*, 104, 26137–26160.
- IPCC (2007) : *Climate Change 2007: The Physical Science Basis*, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment, Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge Univ. Press, New York.
- Lambert, G. and Schmidt, S. (1993) : Reevaluation of the oceanic flux of methane: uncertainties and long term variations. *Chemosph. Global Change Sci.*, 26, 579–589.
- Machida, T., and Coauthors. (2001) : Temporal and spatial variations of atmospheric CO₂ mixing ratio over Siberia. *Extended Abstracts, Sixth Int. Carbon Dioxide Conf.*, Vol. 1, Sendai, Japan, Organizing Committee of Sixth International Carbon Dioxide Conference, 15–20.
- Masarie, K.A. and P.P Tans. (1995) : Extension and Integration of Atmospheric Carbon Dioxide Data into a Globally Consistent Measurement Record. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 100, No. D6, p. 11593-11610.
- Matsueda, H., and H. Y. Inoue. (1996) : Measurements of atmospheric CO₂ and CH₄ using a commercial airliner from 1993 to 1994. *Atmos. Environ.*, 30, 1647–1655.
- Mellor, G. L. and Yamada, T. (1974) : A Hierarchy of Turbulence Closure Models for Planetary Boundary Layers. *J. Atmos. Sci.*, 31 : 1791–1806.
- Miura, H. (2007) : An upwind-biased conservative advection scheme for spherical hexagonal–pentagonal grids. *Mon. Weather Rev.*, 135 : 4038–4044.
- Nakanishi, M. and Niino, H. (2004) : An improved Mellor–Yamada level 3 model with condensation physics: its design and verification, *Bound.-Layer Meteor.*, 112 : 1–31.
- Noda, A. T., Oouchi, K., Satoh, M., Tomita, H., Iga, S.-I., and Tsushima, Y. (2009) : Importance of the Subgrid-scale Turbulent Moist Process of the Turbulent Transport: on Cloud Distribution in Global Cloud-Resolving Simulations. *Atmos. Res.*, 96 : 208–217.
- Niwa, Y. (2010) : Numerical study on atmospheric transport and surface source/sink of carbon dioxide. Ph.D. thesis, Center for Climate System Research, The University of Tokyo, Japan : 178 pp.
- Niwa, Y., H. Tomita, M. Satoh, and R. Imasu (2011a): A three-dimensional icosahedral grid advection scheme preserving monotonicity and consistency with continuity for atmospheric tracer transport, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 89, 255–268.

- Niwa, Y., Patra, P. K., Sawa, Y., Machida, T., Matsueda, H., Belikov, D., Maki, T., Ikegami, M., Imasu, R., Maksyutov, S., Oda, T., Satoh, M., and Takigawa, M. (2011b) : Three-dimensional variations of atmospheric CO₂: aircraft measurements and multi-transport model simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, 11 : 13359-13375.
- Niwa, Y., T. Machida, Y. Sawa, H. Matsueda, T. J. Schuck, C. A. M. Brenninkmeijer, R. Imasu, and M. Satoh. (2012) : Imposing strong constraints on tropical terrestrial CO₂ fluxes using passenger aircraft based measurements. *J. Geophys. Res.*, VOL. 117 : D11303 : doi:10.1029/2012JD017474, in press.
- Olivier, J. G. J. and Berdowski, J. J. M. (2001) : Global emissions sources and sinks, in: *The Climate System*. edited by: Berdowski, J., Guicherit, R., and Heij, B. J., ISBN 9058092550, A. A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Pub., Lisse, The Netherlands, 33–78.
- Onogi, K., Tsutsui, J., Koide, H., Sakamoto, M., Kobayashi, S., Hatsushika, H., Matsumoto, T., Yamazaki, N., Kamahori, H., Takahashi, K., Kadokura, S., Wada, K., Kato, K., Oyama, R., Ose, T., Mannoji, N., and Taira, R. (2007) : The JRA-25 Reanalysis, *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 85 : 369–432.
- Patra, P. K., Houweling, S., Krol, M., Bousquet, P., Bruhwiler, L., and Jacob, D. (2010) : Protocol for TransCom CH₄ intercomparison, Version 7. http://www.jamstec.go.jp/frcgc/research/d4/prabir/papers/TC_CH4protocol_v7.pdf (last access: 26 April 2010)
- Patra, P. K., Houweling, S., Krol, M., Bousquet, P., Belikov, D., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Corbin, K., Fortems-Cheiney, A., Fraser, A., Gloor, E., Hess, P., Ito, A., Kawa, S. R., Law, R. M., Loh, Z., Maksyutov, S., Meng, L., Palmer, P. I., Prinn, R. G., Rigby, M., Saito, R., and Wilson, C. (2011) : TransCom model simulations of CH₄ and related species: linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere. *Atmos Chem Phys*, 11 : 12813-12837.
- Ringeval, B., de Noblet-Ducoudré, N., Ciais, P., Bousquet, P., Prigent, C., Papa, F., and Rossow, W. B. (2010) : An attempt to quantify the impact of changes in wetland extent on methane emissions on the seasonal and interannual time scales. *Global Biogeochem. Cy.*, 24, GB2003.
- Sander, S. P., Golden, D. M., Kurylo, M. J., Moortgat, G. K., Keller-Rudek, H., Wine, P. H., Ravishankara, A. R., Kolb, C. E., Molina, M. J., Finlayson-Pitts, B. J., Huie, R. E., and Orkin, V. L. (2006) : Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies. Evaluation Number 15. JPL Publication 06-2 : 1-11.

- Sasakawa, M., Shimoyama, K., Machida, T., Tsuda, N., Suto, H., Arshinov, M., Davydov, D., Fofonov, A., Krasnov, O., Saeki, T., Koyama, Y. and Maksyutov, S. (2010) : Continuous measurements of methane from a tower network over Siberia. *Tellus*, 62B : 403–416.
- Satoh, M., Matsuno, T., Tomita, H., Miura, H., Nasuno, T., and Iga, S. (2008) : Nonhydrostatic icosahedral atmospheric model (NICAM) for global cloud resolving simulations. *J. Comput. Phys.*, 227 : 3486–3514.
- Spivakovsky, C., Logan, J. A., Montzka, S. A., Balkanski, Y. J., Foreman-Fowler, M., Jones, D. B. A., Horowitz, L. W., Fusco, A. C., Brenninkmeijer, C. A. M., Prather, M. J., Wofsy, S. C., McElroy, M. B. (2000) : Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: update and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 105 : 8931–8980.
- Tarasova, O.A., Brenninkmeijer, C.A.M., Assonov, S.S., Elansky, N.F., Hurst, D.F. (2005) : Methane variability measured across Russia during TROICA expeditions. *Environ. Sci.* 2(2–3) : 241–251.
- Tomita, H. and Satoh, M. (2004) : A new dynamical framework of nonhydrostatic global model using the icosahedral grid. *Fluid Dynam. Res.*, 34 : 357–400.
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and Arellano Jr., A. F. (2006) : Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441.
- Velders, G. (1995) : Description of the RIVM 2-dimensional stratosphere model. RIVM Report 722201002, The Netherlands.
- Walter, K. M, S. A. Zimov, J. P. Chanton, D. Verbyla, and F. S. Chapin III. (2006) : Methane bubbling from Siberian thaw lakes as a positive feedback to global warming. *Nature* 443 : 71-75.
- WMO (2012) : WMO GREENHOUSE GAS BULLETIN (2012) : The State of Greenhouse Gases in the Atmosphere Based on Global Observations through 2011. No. 8.
- Xiong, X., Barnet, D.C., Zhuang, Q., Machida, T., Sweeney, C. and Patra, P.K. (2010) : Mid - upper tropospheric methane in the high Northern Hemisphere: Spaceborne observations by AIRS, aircraft measurements, and model simulations. *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH*, VOL. 115, D19309, doi:10.1029/2009JD013796.
- Yan, X., Akiyama, H., Yagi, K., and Akimoto, H. (2009) : Global estimations of the inventory and mitigation potential of methane emissions from rice cultivation conducted using the 2006 intergovernmental panel on climate change guidelines.

Global Biogeochem. Cy., 23, GB2002.

Zimov, S. A., E. A. G. Schuur, and F. S. Chapin III. (2006) : Climate change: permafrost and the global carbon budget. *Science* 312 : 1612-1613.

安生哲也 (2008) : 大気中におけるメタンの化学輸送シミュレーションに関する研究.

東京大学大学院新領域創成科学研究科自然環境学専攻修士論文, 49pp.

気象庁 (2012) : 大気・海洋環境観測報告.

日本国際問題研究所 (2012) : ロシアにおけるエネルギー・環境・近代化., p.119-130.